



HAL
open science

**Etude théorique et expérimentale de quelques processus
de transfert quasi-résonant de l'excitation par collisions
en phase vapeur. Collisions en champ magnétique
intense**

Jean-Claude Gay

► **To cite this version:**

Jean-Claude Gay. Etude théorique et expérimentale de quelques processus de transfert quasi-résonant de l'excitation par collisions en phase vapeur. Collisions en champ magnétique intense. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris-Diderot - Paris VII, 1976. Français. NNT: . tel-00011823

HAL Id: tel-00011823

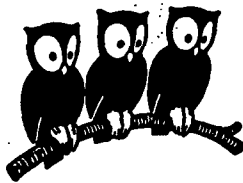
<https://theses.hal.science/tel-00011823>

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.

LABORATOIRE DE PHYSIQUE
DE L'ÉCOLE NORMALE
SUPÉRIEURE



THESE DE DOCTORAT D'ETAT ES SCIENCES

PHYSIQUES

présentée

A L'UNIVERSITE DE PARIS VII

par

Jean-Claude GAY

pour obtenir

le grade de DOCTEUR ES SCIENCES

Sujet de la thèse : Etude théorique et expérimentale de quelques processus de transfert quasi-résonnant de l'excitation par collisions en phase vapeur.
Collisions en champ magnétique intense.

Soutenue le : Avril 1976 devant la Commission d'Examen :

MM.	J. BROSEL	Président
	C. COHEN-TANNOUJJI	} Examineurs
	J.L. COJAN	
	J.P. DESCOUBES	
	S. FENEUILLE	
	A. OMONT	

N° d'enregistrement
au C.N.R.S.

THESE DE DOCTORAT D'ETAT

ès Sciences Physiques

présentée à

l'Université Pierre et Marie Curie
(Paris 7)

par M. Jean-Claude GAY

pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences

Sujet de la thèse :

"Etude théorique et expérimentale de quelques processus
de transfert quasi-résonnant de l'excitation par collisions
en phase vapeur. Collisions en champ magnétique intense".

soutenue le 7 AVRIL 1976

devant le Jury composé de :

MM. J. BROSSEL

Président

C. COHEN-TANNOUJJI)
J.L. COJAN)
J.P. DESCOUBES)
S. FENEUILLE)
A. OMONT)

Examineurs

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'E.N.S. au cours des années 1971-1975. Je remercie vivement Messieurs les Professeurs A. KASTLER et J. BROSSEL de m'avoir accueilli dans leur groupe de recherches.

Je voudrais exprimer toute ma gratitude à Alain OMONT qui a assumé la direction de ce travail et qui m'a toujours prodigué son aide et ses encouragements. Sa participation aux expériences réalisées au Service National des Champs Intenses fut en particulier essentielle.

J.P. DESCUBES a accepté avec une très grande gentillesse de relire et de critiquer le manuscrit. Je le remercie vivement pour les nombreuses suggestions et améliorations qu'il m'a proposées et pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail.

Mes remerciements vont aussi tout particulièrement à W. SCHNEIDER de l'Université de Marburg pour l'aide amicale qu'il m'a apportée au cours de ses séjours au Laboratoire, pour le dynamisme et l'habileté qu'il a mis à concevoir et à réaliser le montage et les expériences sur le Sodium décrits dans la troisième partie.

Je remercie également G. MEUNIER, V.M. ERMATCHENKO et l'ensemble de mes camarades chercheurs et techniciens particulièrement G. GOUËDARD, G. FLORY, J. QUILBEUF et L. ROBIN qui à des titres divers ont contribué à la réalisation de ce travail.

Madame HEYVAERTS a eu la lourde tâche de dactylographier ce texte. Je la remercie de la patience et de l'art qu'elle y a mis. Je remercie également Madame AUDOIN qui en a effectué le tirage dans des conditions difficiles.

Mes remerciements iront aussi à Monsieur F. MEUNIER du Laboratoire R. BERNAS, à la direction et au personnel du Service National des Champs Intenses pour leur accueil et les conseils qu'ils nous ont aimablement prodigués lors des expériences réalisées à Grenoble, au personnel du Service des Basses Températures, à M. P. FEAUTRIER et aux personnels de l'Atelier d'Informatique et du Centre de Calcul de Physique Nucléaire de l'IN²P³.

P L A N

PREMIERE PARTIE - *Collisions quasi-résonnantes $Hg^*(6^3P_1)$ - $Hg(6^1S_0)$ en champ magnétique intense*

<u>I-A</u>	<u>Introduction</u>	1
<u>I-B</u>	<u>Collisions quasi-résonnantes entre atomes identiques en champ fort.</u> <u>Etude théorique pour une transition $J=1 \rightarrow J=0$ de résonance</u>	3
	1 - Introduction	6
	2 - Position du problème et notations	7
	3 - Symétries de la relaxation	17
	4 - Méthodes de calcul des coefficients de relaxation	25
	5 - Résultats	29
	6 - Quelques ordres de grandeur	34
	7 - Conclusions	38
	Références - Légendes des figures et tableaux	42
	Appendice 1 - Relation entre les coefficients de relaxation dans les deux bases de l'espace de Liouville	43
	Appendice 2 - Principe du calcul asymptotique des coefficients de relaxation	45
	Appendice 3 - Approximation séculaire	48
	Annexe 1 - Comparaison à l'approximation d'Omont	51
	Annexe 2 - Tableaux des taux de transfert $\Pi_{qq'}^{kk'}(i)$ dans la base tensorielle	53
<u>I-C</u>	<u>Etude expérimentale du transfert d'excitation entre les sous-niveaux $m = 0$ et $m = \pm 1$ en fonction du champ magnétique.</u>	54
	1 - Principe de l'expérience	55
	2 - Dispositif expérimental	62
	3 - Tests du montage	69
	4 - Description et analyse des effets parasites observés	84
	5 - Résultat des expériences - Variations avec le champ magnétique du taux de transfert par collisions résonnantes	
	6 - Comparaison aux prévisions théoriques	106
<u>I-D</u>	<u>Conclusions et extensions</u>	115
	Légendes des figures et des tableaux	116

DEUXIEME PARTIE - *Collisions non résonnantes $Hg^*(6^3P_1)$ -gaz rares en champ magnétique intense*

<u>II-A</u>	<u>Introduction</u>	II/1
<u>II-B</u>	<u>Collisions non résonnantes en champ intense</u>	5
	<u>Modèle théorique pour une interaction de Van der Waals</u>	
	1 - Introduction et hypothèses du modèle	7
	2 - Symétries de la relaxation	8
	3 - Méthodes de calcul des coefficients de relaxation	13
	4 - Résultats	14
	5 - Discussion des hypothèses du modèle	16
	6 - Anisotropie de la relaxation	17
	7 - Applications	19
	8 - Conclusions	22
	Légendes des figures et des tableaux	
	Appendice 1 - Relations entre les coefficients de relaxation dans les deux bases de l'espace de Liouville	23
	Appendice 2 - Formes asymptotiques des coefficients de relaxation	24
	Annexe 1 - Calcul asymptotique de la différence entre les taux de transfert $m=0$ $m=\pm 1$	29
	Annexe 2 - Etude numérique des probabilités de transfert $m=0$ $m=\pm 1$	30
	Annexe 3 - Démonstration quantique des relations de symétrie	35
	Annexe 4 - Bilan détaillé en présence d'un champ magnétique	37
	Annexe 5 - Symétrisation des résultats de la théorie semi-classique	42
<u>II-C</u>	<u>Collisions non-résonnantes $Hg^*(6^3P_1)$-gaz rares - Etude expérimentale</u>	45
	1 - Conditions de l'étude expérimentale	46
	2 - Expériences réalisées entre 0 et 80 kG sur He, Kr, Xe	47
	3 - Expériences réalisées entre 0 et 200 kG au service national des champs intenses	53
	4 - Comparaison des résultats des deux séries d'expériences Quelques ordres de grandeur théorique	63
	5 - Analyse des résultats à basse température	66
	6 - Résultats des mesures à température ambiante	76
<u>II-D</u>	<u>Conclusions et extensions possibles</u>	78
	Légendes des figures et des tableaux.	81

TROISIEME PARTIE - *Collisions résonnantes et non résonnantes sur le Sodium en champ fort*

<u>III-A</u>	<u>Introduction</u>	III/1
<u>III-B</u>	<u>Principe des expériences et description du montage</u>	4
<u>III-C</u>	<u>Etude expérimentale des collisions Na-Na[*] en champ fort</u>	10
<u>III-D</u>	<u>Etude des collisions sodium-gaz rares</u>	18
<u>III-E</u>	<u>Extensions</u>	22
	Annexe	23
	Légendes des figures	28

QUATRIEME PARTIE - *Diffusion multiple en champ intense*

<u>IV-A</u>	<u>Traitement analytique approché de la diffusion multiple en champ fort</u>	IV/3
<u>IV-B</u>	<u>Principe de l'étude par la méthode de MONTE CARLO</u>	8
<u>IV-C</u>	<u>Comparaison aux résultats expérimentaux</u>	10
	Légendes des figures	17

CINQUIEME PARTIE - *Collisions quasi-résonnantes entre deux isotopes*

APPENDICES GENERAUX

Appendice 1 - Expression de l'intensité des signaux de fluorescence

Appendice 2 - Structure fine de la configuration (6s,6p) du Mercure - Découplage de \vec{L} et \vec{S} et modification de la durée de vie des niveaux en champ intense (isotope pair).

INTRODUCTION

Ce travail est consacré à l'étude théorique et expérimentale de quelques processus de transfert quasi-résonnant de l'excitation dans les collisions entre atomes aux énergies thermiques. Ces études ont été plus particulièrement développées dans le cas des collisions en champs magnétiques intenses.

I - LES COLLISIONS AUX ENERGIES THERMIQUES

Les collisions entre atomes, aux énergies thermiques constituent l'une des plus anciennes voies de recherche en physique ⁽¹⁾-⁽⁷⁾, l'une des plus importantes également puisque ces phénomènes interviennent dans des situations aussi différentes que la formation des raies spectrales en astrophysique, le fonctionnement des lasers à gaz, les plasmas et leurs diagnostics ou plus simplement dans les perturbations apportées aux mesures effectuées sur les atomes supposés sans interactions.

L'effet des collisions sur les états atomiques excités se traduit en particulier par des perturbations de la forme des raies optiques de fluorescence qui sont élargies et déplacées ⁽¹⁾ ⁽²⁾ et par une dépolarisation des raies ⁽⁸⁾ ⁽⁹⁾. Ces phénomènes ont, très tôt, été mis en évidence par des méthodes de spectroscopie traditionnelles. Puis la méthode de dépolarisation magnétique ⁽¹⁰⁾ a constitué un outil de choix pour l'étude de la perturbation par collision de l'état excité de l'atome en permettant d'obtenir des informations complémentaires de celles fournies par l'étude de la perturbation des raies optiques. Enfin, l'apparition des techniques de double résonance ⁽¹¹⁾ et le développement de l'étude systématique des croisements

de niveaux (¹²) ont permis de renouveler le sujet en suscitant de nombreuses études de relaxation par collision dans les états fondamentaux (¹³) ou excités (¹⁴). Parallèlement, le développement de méthodes théoriques particulièrement bien adaptées à la symétrie sphérique de la relaxation en phase vapeur (¹⁵)(¹⁶)(¹⁷) a conduit à une description sophistiquée des processus de collisions thermiques.

Les deux aspects complémentaires de l'étude des collisions en phase vapeur sont d'une part la mesure des sections efficaces ou des taux de transfert caractérisant le processus, d'autre part la déduction d'informations sur le mécanisme physique de la collision. Mais les résultats expérimentaux obtenus en phase vapeur sont des résultats moyennés et il n'est pas possible en général d'en déduire beaucoup d'informations sur la forme des potentiels d'interaction. Cependant, on peut tester à l'aide de modèles la validité des hypothèses théoriques en comparant les prévisions aux valeurs expérimentales. Cette méthode a permis depuis 1960 l'interprétation d'un grand nombre de résultats expérimentaux pour diverses catégories de collisions en phase vapeur à l'aide d'hypothèses raisonnables concernant le mécanisme physique de la collision (¹⁸). Cependant, une interprétation complète et satisfaisante de la plupart des processus de collision reste actuellement au-delà des possibilités théoriques et expérimentales. Il faut donc développer de nouvelles études théoriques (¹⁹) (²⁰) permettant l'estimation des courbes de potentiel pour les divers systèmes et de nouvelles techniques expérimentales (²¹)(²²) pour progresser dans la compréhension de ces collisions et de leurs mécanismes. L'étude des collisions en champ magnétique intense que nous avons réalisé dans diverses situations nous semble répondre à ces critères et nous a permis d'obtenir un grand nombre d'informations qualitatives et quantitatives nouvelles.

II - PRINCIPE DES ETUDES THEORIQUES ET EXPERIMENTALES

Nous nous sommes attachés à effectuer l'étude théorique et expérimentale de quelques processus de transfert quasi-résonnants de l'excitation dans le cas des collisions résonnantes entre atomes identiques et dans le cas des collisions non résonnantes entre un atome excité dans un niveau de résonance et un perturbateur sans structure.

La qualification de "collisions résonnantes" est réservée aux processus ⁽²³⁾(²⁸) qui se produisent lors de l'interaction entre deux atomes identiques dont l'un est excité dans un niveau de résonance à l'état initial. La collision avec le second atome à l'état fondamental conduit à l'échange de l'excitation entre les deux atomes. En première approximation, le potentiel d'interaction lors de la collision est le potentiel dipôle-dipôle au premier ordre en R^{-3} . Les sections efficaces associées à ces processus sont très grandes (10^{-12} à 10^{-13} cm²). Le temps de collision est long (10^{-11} à 10^{-12} s).

Le terme "collisions non résonnantes" recouvre en général tous les processus de collision où il n'existe pas de possibilités de transfert résonnant de l'excitation entre les atomes. Il s'agit en général des processus où l'état excité de moment cinétique J de l'élément considéré est perturbé par les collisions avec des atomes d'espèces différentes ⁽¹⁸⁾ (²⁹). La forme explicite du potentiel n'est généralement pas connue. Lorsque les collisions se produisent à longue distance on peut admettre que le potentiel peut être approché par l'interaction dipôle-dipôle au second ordre qui varie en R^{-6} avec la distance. Lorsque les collisions se produisent à courte distance la situation est plus compliquée puisque les effets de l'échange sont essentiels pour l'évaluation de la forme du potentiel. On doit donc se contenter en général de formes phénoménologiques diverses.

Le principe des études que nous avons effectuées ⁽²⁶⁾(³⁰) ⁽³¹⁾ est de mettre en évidence les caractères différents de la pertur-

bation par collision de l'état des atomes selon que sont ou non vérifiées les conditions de validité de l'approximation soudaine vis à vis de certaines grandeurs caractéristiques de l'évolution des états atomiques considérés. L'un des paramètres essentiels de nos études, quelles qu'en soient les conditions est donc la grandeur x définie par

$$x = \omega \cdot T_c$$

où T_c caractérise la durée de la collision et ω est une fréquence caractéristique de l'évolution des grandeurs du système atomique, qui peut être la fréquence de Larmor du niveau de l'atome soumis à un champ intense, l'écart dû à la structure isotopique entre les niveaux de deux atomes en interaction ou encore la constante de structure fine ou hyperfine du niveau considéré.

Selon la valeur du paramètre x , les effets de la collision sur l'état excité des atomes seront profondément différents. On peut distinguer a priori et de manière très schématique, deux cas limites essentiels correspondant au domaine de validité des approximations soudaine et adiabatique.

- $x \ll 1$ - L'approximation soudaine est valable. L'évolution de la grandeur atomique caractérisée par la fréquence ω est négligeable pendant la durée de la collision.
- $x \gg 1$ - L'approximation adiabatique est valable. La durée de collision est suffisamment longue à l'échelle de la période de l'évolution atomique pour que le système perturbé par le potentiel d'interaction évolue de manière quasi-adiabatique. L'état du système après la collision ne sera donc pas modifié de façon notable encore que cette façon de décrire les phénomènes suppose que les collisions se produisent à longue distance en l'absence de croisements ou d'anticroisements des courbes de potentiel.
- Lorsque le paramètre x vaut de l'ordre de quelques unités, l'atome évolue pendant la collision sous les effets combinés du potentiel d'interaction et du hamiltonien atomique non perturbé (caractérisé par l'énergie $\hbar\omega$). La situation théorique est donc beaucoup plus complexe que dans les deux cas limites précédents mais en

contrepartie, elle offre de riches possibilités de comparaison avec les résultats d'une étude expérimentale du moins lorsque la valeur de x peut être modifiée de façon continue de quelques ordres de grandeur. En particulier, l'emploi de champs magnétiques intenses apparaît comme un moyen particulièrement commode pour réaliser cette condition.

Nous avons envisagé plus particulièrement les aspects suivants de l'idée générale précédente :

- Les collisions thermiques entre deux isotopes d'une même espèce chimique⁽²⁶⁾. Le paramètre ω est alors la différence d'énergies entre l'état initial du système des deux atomes dont l'un est excité, et leur état final après transfert d'excitation. C'est donc la valeur du déplacement isotopique pour les niveaux considérés.
- Une autre possibilité est de faire varier non pas la valeur de ω mais la valeur T_c de la durée de l'interaction, par exemple, pour un élément donné A en changeant la nature de l'atome perturbateur X. Dans le cas où ω est la constante de structure fine de A dans son état excité, \vec{L} et \vec{S} auront plus ou moins le temps de se coupler pendant la durée T_c de la collision A-X. La perturbation de l'état excité de A présentera donc des caractéristiques profondément différentes suivant la nature du perturbateur.
- Les collisions thermiques en champ magnétique intense⁽³⁰⁾ ; le paramètre ω est alors la fréquence de Larmor de l'état excité de l'atome. Selon la valeur de x et donc de ω comparé à $(T_c)^{-1}$ le transfert par collisions entre les sous-niveaux Zeeman de l'atome sera plus ou moins important. Lorsque $\omega \gg T_c^{-1}$, les amplitudes des composantes de Fourier du spectre du potentiel (dépendant du temps dans l'approximation d'impact) seront trop faibles pour induire des transitions entre les sous-niveaux Zeeman. Les taux de transfert par collision seront alors nuls ou petits.

III - LES CHAMPS INTENSES EN PHYSIQUE ATOMIQUE

La production de champs magnétiques très intenses a suscité depuis le début du siècle de nombreux travaux. Les plus marquants sont ceux de DESLANDRES et PEROT qui obtenaient avant 1914, 60 kG dans une bobine sans fer et ceux de COTTON qui aboutissaient à l'installation en 1928 de l'électroaimant de BELLEVUE (50 kG). Puis KAPITZA (³²) et BITTER (³³) proposaient et utilisaient les deux techniques essentiellement utilisées de nos jours. Les grandes catégories d'installations sont actuellement les suivantes :

- Les champs statiques sont produits par des bobines supraconductrices ($H \leq 250$ kG), par des bobines de BITTER dans la forme améliorée par MONTGOMERY (³⁴) ($H \leq 250$ kG) ou par des bobines de WOOD (³⁵).

- Les champs transitoires dont la technique a été proposée et utilisée par KAPITZA (³²) dès 1927 sont utilisés dans deux types d'installation :

- . Les champs pulsés où l'énergie est stockée dans un banc de condensateurs que l'on décharge à travers un solénoïde. Les champs obtenus sont de l'ordre de 0,5 MG pour une durée utile de la décharge variant de quelques μ s à quelques ms.

- . Les champs implosés obtenus par compression mécanique ou électrodynamique d'un cylindre ont permis d'atteindre des champs de 25 MG (³⁶) pendant quelques μ s.

Si l'on excepte la production de champs intenses à l'aide de bobines supraconductrices, les diverses techniques utilisées nécessitent donc des équipements spéciaux (M.I.T. - S.N.C.I. Grenoble).

L'effet Zeeman est à l'origine de nombreuses études effectuées sur l'atome et a motivé les premiers travaux des pionniers du développement des champs magnétiques intenses. Un premier aspect de leur utilisation en physique atomique peut être la détermination des caractéristiques des niveaux d'énergie, des fonctions d'onde, durées de vie de l'atome ou de la molécule (³⁷). Les champs continus disponibles en laboratoires correspondent à des énergies de 10^{-3} eV : c'est

l'ordre de grandeur de l'écart d'énergie entre les niveaux consécutifs de l'atome pour $n \approx 25$. Ils offrent donc la possibilité de modifier de manière importante la disposition des niveaux d'énergie et les fonctions d'ondes des états très excités (³⁸). Pour $n \approx 100$, la perturbation magnétique est de l'ordre de grandeur de l'énergie de liaison de l'électron dans le champ coulombien du proton. Des phénomènes analogues à ceux observés en physique du solide comme la condensation en niveaux de Landau (³⁹) apparaissent alors (⁴⁰).

Toutefois l'utilisation systématique des champs magnétiques intenses en physique atomique est actuellement peu développée en raison probablement des difficultés de la production dans le cadre des laboratoires. Mais surtout, les contraintes géométriques propres à l'optique ou à la physique atomique traditionnelles (expériences réalisées dans des milieux dilués) imposent des volumes d'utilisation importants et des accès relativement aisés souvent peu compatibles avec les contraintes propres à la réalisation de bobines supraconductrices ou même de bobines de Bitter. Il est cependant probable que la généralisation de l'utilisation des lasers accordables fera tomber les limitations provenant des conditions géométriques ou de la faible puissance des sources utilisées jusqu'alors en physique atomique.

L'utilisation des champs intenses peut également être très fructueuse pour l'étude de l'atome en interaction avec d'autres atomes en phase vapeur. C'est essentiellement à cet aspect que sont consacrées les études expérimentales que nous avons réalisées. Pour pallier en partie certains des inconvénients des études en phase vapeur on peut en effet imaginer de soumettre le milieu à un champ magnétique (³⁰) intense dont le double rôle est le suivant :

a) *Il apparaît comme un moyen extrêmement commode de faire varier de manière continue la différence d'énergie entre les sous-niveaux Zeeman de l'état excité de l'atome.*

Comme nous l'avons vu précédemment, en faisant varier la valeur du champ on modifiera le caractère du transfert de l'excitation

entre les sous-niveaux Zeeman et l'on pourra dans une certaine mesure déterminer l'extension $(T_c)^{-1}$ du spectre de Fourier du potentiel ⁽³¹⁾, et effectuer la comparaison des résultats expérimentaux et théoriques dans une très large gamme de fréquences. L'ordre de grandeur des champs nécessaires est fourni en unités de fréquences par $(T_c)^{-1}$. Selon le type de collision étudié, la nature et les caractéristiques des niveaux des atomes en présence, des valeurs du champ de 2 à plusieurs centaines de kG seront nécessaires.

b) En présence d'un champ magnétique intense, la relaxation en phase vapeur devient anisotrope.

Elle ne possède plus en effet que l'invariance de rotation autour de la direction du champ magnétique et l'invariance dans le produit du renversement du temps et de la symétrie dans un plan contenant le champ. Il peut ainsi apparaître des effets nouveaux qui fournissent des informations sur la forme du potentiel d'interaction. Par exemple, pour un niveau de moment cinétique J , le taux de transfert par collision entre les sous-niveaux Zeeman m_1 et m_2 repérés par rapport à la direction du champ peut être différent du taux de transfert entre les sous-niveaux $(-m_1)$ et $(-m_2)$. L'élargissement et le déplacement des composantes de la raie optique issues des sous-niveaux Zeeman du niveau J pourront également prendre des valeurs différentes en champ magnétique intense.

Ces deux aspects complémentaires de l'action d'un champ magnétique intense apparaissent dans les études théoriques et expérimentales que nous avons effectuées sur quelques systèmes particuliers.

IV - CARACTERES GENERAUX DES ETUDES THEORIQUES ET EXPERIMENTALES

** Principe des études théoriques*

On résoud l'équation de Schrödinger pendant la collision en tenant compte de l'évolution atomique sous l'action du champ magné-

tique ou de l'écart isotopique. La résolution a été effectuée pour des transitions de résonance $J=1 \rightarrow J=0$ en traitant la collision dans l'approximation semi-classique à trajectoire rectiligne. Le potentiel d'interaction utilisé est selon les cas le potentiel dipôle-dipôle en R^{-3} ou le potentiel de Van Der Waals en R^{-6} .

Dans le cas des collisions en champ magnétique intense, il est nécessaire puisque la relaxation est anisotrope de résoudre l'équation de Schrödinger pour toutes les orientations des plans de collision par rapport au champ magnétique. Cette démarche est considérablement simplifiée par l'utilisation des propriétés de symétrie du problème qui permettent de prévoir certaines des caractéristiques de la relaxation résultant de l'invariance du système dans les rotations autour de la direction du champ, et de l'invariance dans le produit du renversement du temps et de la symétrie dans des plans contenant le champ. Ces méthodes ont été employées de façon systématique lors de l'étude des différents problèmes que nous avons abordés.

★ Principe des études expérimentales

Les études expérimentales en champ magnétique intense ont été effectuées sur le Mercure puis étendues par W. SCHNEIDER au Sodium. On excite optiquement un sous-niveau Zeeman de l'état excité de l'atome. L'excitation est transférée par collisions dans les autres sous-niveaux Zeeman de l'état excité. La mesure des intensités de fluorescence réémises par les différents sous-niveaux permet de déterminer les taux de transfert et leurs variations en fonction du champ magnétique. Les champs magnétiques utilisés sont produits par une bobine supraconductrice (80 kG) ou les bobines de Bitter du Service National des Champs Intenses de Grenoble (150 et 200 kG)

Le plan de ce travail est le suivant :

PREMIERE PARTIE : *Collisions quasi-résonnantes $Hg^*(6^3P_1) - Hg(6^1S_0)$ en champ magnétique intense.*

Cette partie est consacrée à l'exposé des résultats de l'étude théorique et expérimentale des variations en fonction du champ magnétique des taux de transfert par collisions entre les sous-niveaux Zeeman d'un isotope pair du Mercure.

• La partie théorique est constituée d'un article soumis au Journal de Physique, complété par quelques annexes et appendices. La situation envisagée est celle des collisions entre atomes identiques ⁽²⁴⁾⁽²⁷⁾⁽²⁸⁾. L'interaction responsable du transfert de l'excitation entre les deux atomes pendant la collision est le potentiel dipôle-dipôle en R^{-3} . On suppose le champ magnétique assez élevé pour que la fréquence de Larmor ω soit comparable à l'inverse T_c^{-1} de la durée moyenne de la collision mais qu'il est assez petit pour ne pas découpler \vec{L} et \vec{S} . L'originalité du traitement réside dans le fait que l'on ne néglige pas la précession de Larmor de l'état excité pendant la durée de la collision. On démontre que, en présence du champ magnétique, la matrice de relaxation possède certaines propriétés de symétries et en particulier que les taux de transfert du sous-niveau $m = 0$ vers les sous-niveaux $m = 1$ et $m = -1$ sont égaux dans ce cas. On met en évidence la décroissance en fonction du champ des taux de transfert entre les sous-niveaux Zeeman. On donne pour divers éléments chimiques les ordres de grandeur des champs nécessaires (entre 2 et 50 kG) pour observer effectivement cette décroissance.

• L'étude expérimentale dans des champs de 80 kG ⁽⁴¹⁾ a été faite sur le niveau 6^3P_1 d'un isotope pair du Mercure. Ce choix est imposé par l'existence d'une transition de résonance $J=1 \rightarrow J=0$, l'absence de découplage important de L et S à 80 kG et la facilité de l'utilisation de cet élément. L'essentiel des hypothèses du modèle théorique est vérifié dans ce cas où l'interprétation des résultats expérimentaux est simple de surcroît.

Le principe de l'étude expérimentale est d'exciter le sous-niveau Zeeman $m=0$ de l'isotope 198 à l'aide d'une lampe à décharge placée en champ nul. On enregistre en fonction du champ la lumière de fluorescence de polarisation σ réémise par les sous-niveaux $m = \pm 1$ et provenant du transfert de l'excitation par collisions. La réalisation

de l'expérience a exigé l'élimination de différents phénomènes parasites dûs par exemple à des gaz résiduels dans les cellules et aux effets de l'inhomogénéité du champ sur l'emprisonnement dans la vapeur. L'étude expérimentale a permis de vérifier pleinement les prévisions de notre modèle théorique (décroissance d'un facteur 3 des taux de transfert entre 0 et 80 kG). On peut en définitive conclure à la validité du potentiel dipôle-dipôle en R^{-3} pour décrire l'effet des collisions résonnantes sur le niveau 6^3P_1 du Mercure dans une gamme de fréquences supérieure à 160 GHz.

DEUXIEME PARTIE : *Collisions non-résonnantes $Hg^*(6^3P_1)$ -gaz rares en champ magnétique intense.*

L'étude des collisions $Hg^*(6^3P_1)$ -gaz rares en champ magnétique intense pose un grand nombre de problèmes théoriques en ce qui concerne la forme du potentiel à adopter, et les hypothèses à admettre pour traiter la collision. Nous avons choisi d'effectuer l'étude théorique dans le cas où l'anisotropie du potentiel varie en R^{-6} avec la distance, avec un modèle semi-classique à trajectoires rectilignes ; ce choix est déterminé par le fait que ce modèle semble acceptable pour décrire les collisions du Mercure avec les gaz rares lourds et polarisables en champ magnétique nul.

• L'étude théorique est dans le principe très voisine de celle effectuée dans la première partie. En champ non nul, on montre que la relaxation est anisotrope. L'une des différences essentielles par rapport aux résultats théoriques obtenus dans la première partie est l'existence de taux de transfert différents entre les sous-niveaux Zeeman $m=0$ et $m = \pm 1$. Le signe de la différence entre ces taux de transfert dépend du signe de l'anisotropie du potentiel et de la valeur du champ (⁴²). Ceci offre donc une possibilité de détermination directe de l'un des paramètres du potentiel. Les résultats de l'étude théorique sont exposés sous la forme d'un article soumis au Journal de Physique, complété par quelques appendices et annexes.

• L'étude expérimentale a été effectuée au cours de deux séries d'expériences dont l'une a été réalisée au SNCI à Grenoble ⁽⁴¹⁾⁽⁴³⁾. Bien que les résultats expérimentaux soient peu précis en raison en particulier du mauvais rapport signal sur bruit dans les expériences réalisées à basse température ils permettent de mettre en évidence l'essentiel des effets prévus théoriquement. Conformément à nos prévisions, on a montré que pour tous les gaz rares, les taux de transfert du sous-niveau Zeeman $m = 0$ vers les sous-niveaux $m = 1$ et $m = -1$ sont différents et que les variations de leur rapport avec le champ diffèrent profondément selon la nature du gaz rare. On a ainsi pu conclure que pour les gaz rares lourds et polarisables, l'anisotropie du potentiel dans la région intervenant dans ces collisions aux énergies thermiques est telle que l'énergie du niveau Σ soit supérieure à celle des niveaux Π ce qui correspond pour le niveau 6^3P_1 du Mercure à la région du potentiel attractif à longue distance. Pour les gaz rares légers on trouve une anisotropie de signe opposé à la précédente ce qui indique que la région répulsive des courbes de potentiel joue dans ce cas un rôle essentiel. De la comparaison théorie-expériences, on peut conclure que les hypothèses de potentiel variant en R^{-6} avec la distance et de trajectoires rectilignes ne sont pas totalement justifiées dans le cas des collisions avec les gaz rares lourds (Xe, Kr), les variations des taux de transfert avec le champ sont en effet plus faibles que celles prévues.

TROISIEME PARTIE : *Collisions résonnantes et non résonnantes sur le sodium en champ magnétique intense.*

Le montage expérimental décrit dans cette partie et la plupart des expériences ont été réalisées par W.B. SCHNEIDER lors de ses séjours au Laboratoire.

Le sodium est excité dans un sous-niveau Zeeman des niveaux 3^2P à l'aide d'un laser accordable. On peut ainsi mesurer tous les coefficients de transfert entre les divers sous-niveaux Zeeman.

• Collisions résonnantes $\text{Na}(^2\text{S}_{1/2}) - \text{Na}^*(^3\text{P}_{1/2})$

On a mis en évidence une décroissance de plus d'un facteur 3 du taux de transfert du sous-niveau Zeeman $m = -1/2$ vers $m = 1/2$ lorsqu'on augmente la valeur du champ de 0 à 80 kG. Ceci est dû, pour l'essentiel à l'augmentation de la différence d'énergie entre les sous-niveaux Zeeman (comme dans le cas $\text{Hg}-\text{Hg}^*$). Cependant nous montrons que dans ce cas l'analyse des expériences est beaucoup plus compliquée.

• Collisions non résonnantes $\text{Na}(^3\text{P})$ -gaz rares

- En champ magnétique faible l'étude expérimentale des collisions du sodium avec les 5 gaz rares a permis de mesurer directement pour la première fois, l'ensemble des sections efficaces de transfert entre les sous-niveaux Zeeman (⁴⁴). Dans l'hypothèse où l'interaction est de nature purement orbitale, la collision ne peut modifier l'état de spin électronique que par l'intermédiaire du couplage ($\vec{L} \cdot \vec{S}$). Lorsque la durée de la collision est courte L et S n'ont pas le temps de se coupler et le transfert entre les sous-niveaux Zeeman $m = -3/2$ et $m = 3/2$ est impossible puisqu'il nécessite le renversement du spin électronique. Lorsqu'au contraire la durée de collision est longue, L et S ont le temps de se coupler et le transfert $m = -3/2 \rightarrow m = 3/2$ est très probable. C'est ce qu'on a observé expérimentalement : le taux de transfert entre $m = -3/2$ et $m = 3/2$ croît lorsqu'on passe de l'Hélium au Xénon.

- Contrairement au cas des collisions résonnantes $\text{Na}-\text{Na}^*$, la variation des taux de transfert en fonction du champ est faible et de l'ordre de grandeur de celle provenant des effets de découplage de \vec{L} et \vec{S} par le champ magnétique.

QUATRIEME PARTIE : *Diffusion multiple en champ fort.*

La quatrième partie discute quelques effets de la diffusion multiple qui interviennent dans l'interprétation des résultats obtenus dans les trois premières parties. Nous y rappelons les caractéristiques

du phénomène d'emprisonnement de la lumière de résonance en champ intense. Nous discutons l'effet de l'inhomogénéité du champ sur ce phénomène ainsi que l'effet de la dispersion anormale de la vapeur. Enfin, les résultats expérimentaux sont comparés aux prévisions faites par OMONT (⁴⁵) à l'aide d'un calcul de MONTE CARLO.

CINQUIEME PARTIE : *Collisions quasi-résonnantes entre deux isotopes.*

Nous donnons les résultats de l'étude théorique du transfert de l'excitation par collisions entre deux isotopes d'une même espèce chimique pour une transition $J=1 \rightarrow J=0$ de résonance. Cette partie reprend la matière de deux articles précédemment publiés au Journal de Physique. Le premier article (⁴⁶) traite d'un aspect particulier que nous avons développé en raison de sa simplicité (système à 2 niveaux couplés par un potentiel en R^{-3}) et de rapports étroits avec divers problèmes de la théorie des collisions.

Le second article (⁴⁷) donne du problème des collisions quasi-résonnantes un traitement exact. Nous avons montré qu'il conduit à des prévisions différentes de celles que donne la méthode de TSAO et CURNUTTE (⁴⁸) couramment utilisée dans le domaine des collisions moléculaires (transfert par collision entre niveaux de rotation et de vibration).

REFERENCES

- (1) Lord RAYLEIGH : Phil. Mag. 27, 298 (1889)
- (2) MICHELSON A.A. : Astrophys. J. 2, 251 (1895)
- (3) LORENTZ H.A. : Kon. Acad. Wetesch. Amsterdam Proc. 8, 591 (1906)
- (4) WOOD R.W. : Astrophys. J. 26, 41 (1907)
- (5) ROSSI R. : Astrophys. J. 34, 299 (1911)
- (6) VOIGT W. : Math. Phys. Akad. Wiss. München 603 (1912)
- (7) HOLTSMARK : Ann. Phys. Leipzig 58, 577 (1919)
Physik. Z. 20, 162 (1919)
- (8) WOOD R.W. : Phil. Mag. 44, 1107 (1922)
- (9) VON KEUSSLER V. : Ann. der Phys. 82, 793 (1927)
- (10) HANLE W. : Z. F. Phys. 41, 164 (1927)
- (11) BROSSEL J. et KASTLER A. : CRAS, 229, 1213 (1949)
- (12) COLEGROVE F.O., FRANKEN P.A., LEWIS R.R. et SANDS R.A. : Phys. Rev. Lett. 3, 420 (1959)
- (13) BOUCHIAT M.A. : Thèse - Paris (1965)
- (14) OMONT A. : Thèse - Paris (1967)
- (15) FANO U. : Rev. Mod. Phys. 29, 74 (1957)
- (16) FANO U. : Phys. Rev. A 131, 259 (1963)
- (17) BARANGER M. : Phys. Rev. 111, 481, 494 (1958)
- (18) pour une revue, voir par exemple :
 NIKITIN E.E. : The excited state in chemical physics J.W. Mc Gowan NY (1975)
 OMONT A. : à paraître - Prog. Quantum Electronics (1976)
- (19) BAYLIS W.E. : J. Chem. Phys. 51, 2665 (1969)
- (20) PASCALE J. et VAN DE PLANQUE : J. Chem. Phys. 60, 2278 (1974)
- (21) HEDGES R.E.M., DRUMMOND D.L. et GALLAGHER A. : Phys. Rev. A6, 1519 (1972)
- (22) CARTER G.M. , PRITCHARD D.E., KAPLAN M. and DUCAS T.W. : Phys. Rev. Lett. 35, 1144 (1975)
- (23) FURSOV V.S. et VLASOV A.A. : Phys. Z. Sowjetunion 10, 378 (1936)
- (24) DYAKONOV M.I. , PEREL V.I. : JETP 21, 227 (1965)
- (25) OMONT A. : J. Phys. 26, 26 (1965)
- (26) OMONT A. : Thèse - Paris (1967)
- (27) OMONT A. et MEUNIER J. : Phys. Rev., 169, 92 (1968)

- (²⁸) BERMAN P.R. et LAMB W.E. : Phys. Rev. 187, 221 (1969)
- (²⁹) FAROUX J.P. : Thèse Paris (1969)
- (³⁰) OMONT A. : Thèse 3ème cycle - Paris (1961)
- (³¹) GALLAGHER A. in Physics of the one and the two electron atoms - North Holland (1969)
- (³²) KAPITZA P. : Proc. Roy. Soc. A 115, 658 (1927)
- (³³) BITTER F. : Rev. Sci. Instr. 7, 482 (1936)
- (³⁴) MONTGOMERY D.B. : Rep. progr. phys. 26, 69 (1963)
- (³⁵) WOOD M.F. : Cryogenics 2, 297 (1962)
- (³⁶) SAKHAROV et LYNDREV : Dokl. Akad. Nank. SSSR 165, 65 (1965)
- (³⁷) JOST R. , DEROUARD J. et LOMBARDI M. : dans "Physique sous champs magnétiques intenses" Colloque CNRS N° 242 (Grenoble 1974)
- (³⁸) PRADDAUDE H.C. : Phys. Rev. A 6, 1321 (1972)
- (³⁹) LANDAU L. : Z. Phys. 64, 629 (1930)
- (⁴⁰) GARTON W.R.S. et TOMKINS F.S. : Astrophys. J. 158, 839 (1969)
- (⁴¹) GAY J.C. et SCHNEIDER W.B. : J. Phys. Lett. 36, L185 (1975)
- (⁴²) GAY J.C. : J. Phys. Lett. 36, L239 (1975)
- (⁴³) GAY J.C. et OMONT A. : J. Phys. Lettres avril 1976
- (⁴⁴) GAY J.C. et SCHNEIDER W.B. : soumis à Z.F. Physik
- (⁴⁵) OMONT A. : non publié (1976)
- (⁴⁶) GAY J.C. et OMONT A. : J. Phys. 35 , 9 (1974)
- (⁴⁷) GAY J.C. : J. Phys. 35, 813 (1974)
- (⁴⁸) TSAO C.J. et CURNUTTE B. : J.Q.S.R.T., 2, 41 (1962)

PREMIERE PARTIE

COLLISIONS QUASI-RESONNANTES $\text{Hg}^*(6^3\text{P}_1) - \text{Hg}(6^1\text{S}_0)$

EN CHAMP MAGNETIQUE INTENSE

- A -

INTRODUCTION

Cette partie est consacrée à l'exposé des résultats de l'étude théorique et expérimentale des variations en fonction du champ magnétique des taux de transfert par collisions entre les sous-niveaux Zeeman d'un isotope pair du Mercure.

La partie théorique est constituée d'un article soumis au Journal de Physique, complété par quelques annexes et appendices. La situation envisagée est celle des collisions entre atomes identiques. L'un des atomes est, avant la collision, dans un niveau excité $J=1$ de résonance et l'atome perturbateur est dans l'état fondamental ($J=0$). Il est bien connu, dans ce cas, cf. par exemple les travaux de DYAKHONOV et PEREL (1964), OMONT (1965, 1967, 1968) BERMAN et LAMB (1969), que l'interaction responsable du transfert de l'excitation entre les deux atomes pendant la collision est le potentiel dipôle-dipôle en R^{-3} et que l'hypothèse de trajectoires rectilignes est bien justifiée en raison de la très forte valeur des sections efficaces (10^{-12} à 10^{-13} cm^2).

On suppose que l'ordre de grandeur du champ magnétique est suffisant pour provoquer la levée de la dégénérescence Zeeman du niveau excité $J=1$ des atomes de sorte que la fréquence de Larmor ω soit comparable à l'inverse T_c^{-1} de la durée moyenne de la collision mais qu'il est cependant suffisamment petit pour que \vec{L} et \vec{S} restent couplés. L'originalité essentielle du traitement effectué dans l'approximation d'impact à trajectoires rectilignes réside dans le fait que l'on ne néglige pas la précession de Larmor de l'état excité pendant la durée de la collision.

Notre traitement met en évidence la décroissance en fonction du champ des taux de transfert entre les sous-niveaux Zeeman et l'anisotropie du processus de relaxation. On démontre cependant qu'il existe un certain nombre de symétries et de relations entre les éléments de la matrice de relaxation et qu'en particulier les taux de transfert du niveau $m=0$ vers les niveaux $m=\pm 1$ sont égaux dans ce cas. On donne également quelques ordres de grandeur pour divers éléments de manière à

caractériser les champs nécessaires pour obtenir une décroissance importante des taux de transfert par collisions résonnantes.

L'étude expérimentale a été faite sur le niveau 6^3P_1 d'un isotope pair du Mercure, dans des champs de 80 kG au maximum. Le choix d'un isotope pair du Mercure est dicté par des considérations diverses, telle l'existence d'une transition de résonance $J=1 \rightarrow J=0$, l'absence de découplage important de \vec{L} et \vec{S} à 80 kG et la facilité de l'utilisation de cet élément. L'essentiel des hypothèses du modèle théorique est vérifié dans ce cas où l'interprétation des résultats expérimentaux est simple de surcroît. Il n'en est pas de même par exemple dans le cas des niveaux 3^2P_J de structure fine du Sodium (cf. § III).

L'étude expérimentale que nous avons effectuée a pleinement permis de vérifier les prévisions de notre modèle théorique. Le principe est d'exciter le sous-niveau Zeeman $m=0$ de l'isotope 198, non déplacé en première approximation par le champ magnétique (cf. appendice 1), à l'aide d'une lampe à décharge placée en champ nul. On enregistre en fonction du champ, la lumière de fluorescence de polarisation σ réémise par les sous-niveaux $m = \pm 1$ et provenant du transfert de l'excitation par collisions. Le principe de l'expérience est donc extrêmement simple mais sa réalisation a exigé l'élimination de différents effets parasites provoqués par exemple par la présence de gaz résiduels dans les cellules et par l'existence d'effets de l'inhomogénéité du champ sur l'emprisonnement dans la vapeur.

Le plein accord observé en définitive, entre les prévisions théoriques et les mesures permet de conclure à la validité du potentiel dipôle-dipôle en R^{-3} pour décrire l'effet des collisions résonnantes sur le niveau 6^3P_1 du Mercure dans une gamme de fréquences supérieure à 160 GHz. L'étude n'a pas permis de mettre en évidence d'écarts prouvant l'existence d'effets des termes d'ordre supérieur en R^{-1} de l'interaction entre les atomes. Ceux-ci sont donc petits dans le cas du niveau 6^3P_1 du Mercure, pour les collisions avec un atome identique à l'état fondamental.

Le plan de la première partie est le suivant :

Le modèle théorique est exposé dans la partie B sous la forme d'un article, complété de plusieurs appendices et annexes.

L'étude expérimentale et la comparaison aux prévisions théoriques sont développées dans la partie C. Dans la partie D nous mentionnons les extensions possibles de notre étude.

- B -

COLLISIONS QUASI-RESONNANTES ENTRE ATOMES IDENTIQUES EN CHAMP FORT
 ETUDE THEORIQUE POUR UNE TRANSITION $J=1 \rightarrow J=0$ DE RESONANCE

Le principe de l'étude qui généralise celle effectuée par OMONT (1967) en champ magnétique nul est de résoudre l'équation de Schrödinger en tenant compte de l'évolution de l'état excité des atomes sous l'action du champ magnétique et du potentiel d'interaction qui traduit l'effet de la collision. On se place dans l'hypothèse où les collisions sont bien séparées dans le temps et binaires, et peuvent être traitées dans l'approximation d'impact à trajectoires rectilignes. On suppose de surcroît que les modifications d'énergie de l'état interne des atomes sont petites comparées à kT ce qui permet de découpler le mouvement relatif et l'évolution de l'état interne.

Lorsque la distribution des vitesses relatives des atomes est isotrope dans l'espace et c'est en général le cas, la relaxation sous l'effet des collisions en champ magnétique nul possède la symétrie sphérique. Ce n'est plus vrai lorsque le système est soumis à un champ extérieur qui privilégie une direction de l'espace. A priori, il faut donc résoudre l'équation de Schrödinger pour toutes les orientations possibles dans l'espace du paramètre d'impact et de la vitesse relative. On démontre cependant qu'il existe un certain nombre de symétries du problème qui permettent de simplifier la résolution et de prévoir les symétries de la matrice de relaxation.

La plus grande partie des notations utilisées a été introduite dans des articles déjà parus au Journal de Physique et que l'on a repris dans la partie V. Le paramètre p est le carré de l'élément de matrice réduit du dipôle électrique correspondant à la transition $J=1 \rightarrow J=0$ considérée. Il caractérise en quelque sorte la force du potentiel dipôle-dipôle. Après passage à un système de coordonnées réduites pour décrire la collision, le paramètre p est remplacé par q ($q=p/b^2v$) où b est le paramètre d'impact, v la vitesse relative des atomes. q contient

en champ nul toute la dépendance en b et v du problème. De manière générale, un choix analogue ($q_n = p/b^{n-1} \cdot v$) est toujours possible pour des interactions variant en R^{-n} avec la distance. L'évolution de l'état excité des atomes dans le champ magnétique est décrit par la fréquence de Larmor $\omega = g_J \mu_B \cdot B$ ($\hbar = 1$). Le passage aux coordonnées réduites ($x = vt/b$) permet d'introduire naturellement la variable $\eta = \omega b/v$ qui dépend donc du paramètre d'impact et de la vitesse relative et que l'on peut exprimer en fonction de q sous la forme $\eta \propto \tau/q^{1/2}$ où τ est un paramètre sans dimensions qui dépend de ω , de la vitesse relative, et des caractéristiques des niveaux considérés. τ a l'expression :

$$\tau = \omega / \omega_a$$

avec

$$\omega_a = (v^3 / p \sqrt{\mu})^{1/2} \quad \text{où } \mu = 8/27.$$

La fréquence ω_a caractérise pour une vitesse relative fixée l'ordre de grandeur des écarts d'énergie entre les sous-niveaux Zeeman conduisant à des effets appréciables du champ. A cette fréquence caractéristique, on associe une valeur critique du champ pour laquelle $\tau \approx 1$.

La résolution est effectuée pour une valeur de τ , en fonction de q . Après sommation sur q , les expressions obtenues pour les taux de relaxation dépendent de ω et v par l'intermédiaire de τ . La moyenne sur les vitesses permet d'obtenir ensuite des expressions ne dépendant plus que du champ magnétique, des caractéristiques des niveaux atomiques considérés et des paramètres macroscopiques (température) caractérisant le système étudié.

L'article est complété de trois appendices auxquels renvoie le texte. La référence 8 du texte constitue la partie théorique II-B, et la référence 2 est reprise sous une forme légèrement modifiée dans la partie V (article II).

Nous complétons l'exposé par deux Annexes en fin de partie qui concernent d'une part la comparaison de nos résultats à ceux de l'approximation analytique développée par OMONT (Thèse 1967) (on pourra trouver l'exposé de la méthode dans la partie V §7-2) d'autre part les valeurs en fonction de τ des coefficients de relaxation exprimés dans la base tensorielle.

1 - INTRODUCTION

2 - POSITION DU PROBLEME ET NOTATIONS

2-1-Définition

2-2-Forme de l'équation de Schrödinger

2-3-Propriétés de la matrice de collision

2-4-Relations entre $\Sigma(\pm, \varphi, \theta, \gamma)$ et $\Sigma(\pm, \varphi', \theta', \gamma')$

2-4-1-Rotations d'axe OZ

2-4-2-Réflexions dans des plans contenant OZ

2-4-3-Autres relations

3 - SYMETRIES DE LA RELAXATION

3-1-Utilisation des propriétés des matrices de collision

3-2-Moyennes angulaires

3-3-Coefficients de relaxation pour le dipôle optique

3-4-Relaxation de l'ensemble des atomes.

4 - METHODES DE CALCUL DES COEFFICIENTS DE RELAXATION

4-1-Caractères généraux

4-2-Calcul des contributions asymptotiques

4-3-Méthodes numériques

4-4-Sommation sur le paramètre d'impact

4-5-Moyenne sur la vitesse

5 - RESULTATS

5-1-Comportement des coefficients en fonction de q et τ

5-2-Variations avec τ des taux de transfert par collision

5-3-Remarques

6 - QUELQUES ORDRES DE GRANDEUR - DISCUSSION

6-1-Généralisations possibles

6-2-Applications

6-3-Ordre de grandeur des énergies caractéristiques
pour quelques éléments

6-4-Résultats de l'étude expérimentale sur le Mercure (6^3P_1)

7 - CONCLUSIONS

- APPENDICE 1 - Relation entre les coefficients de relaxation dans les deux bases de l'espace de Liouville
- APPENDICE 2 - Principe du calcul asymptotique des coefficients de relaxation
- APPENDICE 3 - Approximation séculaire

- ANNEXE 1 - Comparaison à l'approximation d'OMONT
- ANNEXE 2 - Tableaux des taux de transfert $\Pi^{kk'}_{qq'}(i)$ dans la base tensorielle.

R É S U M É

On étudie les effets d'un champ magnétique intense sur la relaxation et le transfert d'excitation par collisions résonnantes entre atomes identiques en phase vapeur. On suppose que le potentiel pendant la collision qui est traitée dans l'approximation d'impact à trajectoire rectiligne, est le potentiel dipôle-dipôle en R^{-3} . On se limite au cas de transitions de résonance $J=1 \rightarrow J=0$. On suppose que l'ordre de grandeur du champ magnétique est tel que la précession de Larmor de l'état excité $J=1$ des atomes ne peut pas être négligée pendant la durée de la collision. Dans notre modèle, les effets liés au caractère fini de la durée de l'interaction comparée à la période de Larmor sont donc pris en compte.

Le champ est d'autre part supposé assez faible pour que la levée de dégénérescence Zeeman de l'état excité puisse être considérée comme petite comparée à l'énergie thermique kT des atomes. Cette approximation permet de simplifier le problème théorique en découplant le mouvement relatif des atomes de l'évolution de l'état interne.

On montre qu'en présence du champ magnétique, la matrice de relaxation ne possède plus la symétrie sphérique mais conserve néanmoins certaines propriétés de symétrie. Les variations avec le champ des taux de relaxation et de transfert par collisions entre atomes et entre sous-niveaux Zeeman sont calculés par résolution numérique de l'équation de Schrödinger.

Diverses applications et extensions de ce travail sont mentionnées et l'on compare les prévisions aux résultats de récentes expériences.

★◆◆◆◆◆◆◆

1 - INTRODUCTION

Les études théoriques consacrées aux collisions résonnantes ou non résonnantes en phase vapeur supposent en général que l'on peut séparer l'évolution par collision des états atomiques des autres causes de leur évolution ⁽¹⁾ : par exemple émission spontanée, précession de Larmor. La durée moyenne des collisions T_c définie par exemple par $v^{-1}(\sigma/\pi)^{1/2}$ où σ est la section efficace est donc supposée courte devant les autres temps caractéristiques intervenant dans le problème. Cette hypothèse est bien vérifiée dans un grand nombre de situations expérimentales.

Il existe cependant un certain nombre de situations physiques où elle n'est pas justifiée : par exemple lorsque la structure fine ou hyperfine des états atomiques considérés est de l'ordre de T_c^{-1} ⁽²⁾ ou lorsque les atomes sont soumis à des champs magnétiques ou électriques assez intenses pour que la levée de dégénérescence des niveaux impliqués dans le processus de collision soit de l'ordre de T_c^{-1} .

Nous présentons les résultats de l'étude de l'un de ces cas, lorsque l'évolution supplémentaire pendant la collision est due à un champ magnétique H suffisamment intense pour que la fréquence ω de la précession atomique dans les niveaux mis en jeu par la collision vérifie $\omega \cdot T_c \gg 1$. Des situations de cette espèce peuvent intervenir dans les conditions du laboratoire ainsi que nous l'avons récemment rapporté ⁽³⁾.

L'effet du champ magnétique est de créer une différence d'énergie entre les sous-niveaux Zeeman avec comme corollaire la modification des taux de relaxation et de transfert par collision et l'apparition d'une anisotropie dans la relaxation.

Nous limitons cette étude au cas des collisions entre atomes identiques. L'un des deux atomes est excité avant la collision dans un niveau de résonance. Le second atome est dans l'état fondamental. Le potentiel pendant la collision est le dipôle-dipôle en R^{-3} . Ces collisions

"résonnantes" sont caractérisées par de grandes valeurs des sections efficaces (10^{-12} à 10^{-13} cm²) et la durée de la collision est en général longue. Il suffira donc a priori de champs magnétiques relativement faibles pour réaliser la condition $\omega \cdot T_c \gg 1$.

Le traitement théorique simultané des effets du champ et des collisions complique considérablement le problème à résoudre. Un certain nombre d'approximations en général justifiées ont donc été faites. Elles sont exposées dans le § 2-1.

Nous donnons au § 2-2 les symétries de la matrice de collision. Elles sont peu nombreuses en raison de la non invariance du hamiltonien par renversement du temps. Nous développons cependant une méthode qui permet de relier les matrices de collision associées à différentes orientations du paramètre d'impact et de la vitesse relative dans l'espace. Les relations obtenues sont valables en définitive lorsque le potentiel a le caractère d'un alignement dans la direction internucléaire. Nous déduisons au §3 les symétries de la relaxation à l'aide des relations démontrées au §2. Aux §4 et 5, nous donnons la méthode utilisée pour le calcul des taux de relaxation et leur dépendance en fonction de la valeur du champ. Le §6 est consacré au calcul de quelques ordres de grandeur pour divers éléments et à un bref exposé des résultats d'une récente étude expérimentale.

2 - POSITION DU PROBLEME ET NOTATIONS

2-1-Définition

Les hypothèses de notre étude sont analogues à celles explicitées dans une publication précédente (2). On considère deux atomes identiques ^{*} en interaction en phase vapeur, aux énergies thermiques. Nous supposons que l'un des deux atomes désigné par l'indice 1 est excité dans un niveau de résonance avant la collision et que le second atome désigné par l'indice 2 est dans l'état fondamental. Nous supposons que l'état excité des atomes a un moment cinétique $J=1$ et l'état fondamental $J=0$, la transition entre

^{*} Note : On ne considère pas les effets liés à l'indiscernabilité dans la mesure où les atomes interagissent à longue distance et sont peu déviés.

l'état excité et l'état fondamental étant une transition optique de résonance. L'essentiel des relations de symétrie déduites au §2-3 se généralise en fait sans difficulté à des moments cinétiques quelconques.

Le potentiel pendant la collision est le potentiel dipôle-dipôle en R^{-3} . Du point de vue de l'état interne des atomes, il présente les éléments de symétrie d'un alignement dans la direction de l'axe internucléaire (¹).

Les collisions sont traitées dans l'approximation d'impact à trajectoire rectiligne. On suppose les états fondamentaux peu perturbés par les processus de collision.

Le champ magnétique modifie l'efficacité du transfert de l'excitation entre les sous-niveaux Zeeman en levant leur dégénérescence de la quantité $m\hbar\omega$. Le rôle du champ présente donc une certaine analogie avec celui joué par l'écart d'énergie ΔE dans le problème résolu dans la référence 2. Les deux situations ne sont cependant pas totalement équivalentes. En particulier, le champ crée une direction privilégiée dans l'espace ce qui entraîne l'anisotropie de la relaxation. Ces effets seront évidemment appréciables lorsque la condition $\omega.T_c \approx 1$ sera vérifiée.

Nous admettons enfin, que l'écart d'énergie entre les sous-niveaux Zeeman reste petit devant kT . Cette dernière hypothèse permet de découpler le mouvement relatif des atomes et l'évolution de leur état interne.

2-2-Forme de l'équation de Schrödinger

La nécessité de tenir compte du champ magnétique pendant la collision impose de résoudre l'équation de Schrödinger pour chaque collision particulière dans l'espace. On peut caractériser une collision par un référentiel associé (cf. FIG 1) tel que Ox soit parallèle au paramètre d'impact \vec{b} , Oy à la vitesse relative \vec{v} et Oz perpendiculaire au plan de la collision. Ce référentiel se déduit d'un référentiel fixe de l'espace où l'axe OZ est parallèle au champ magnétique \vec{H} par la rotation $\mathcal{R}^{-1}(\varphi, \theta, \gamma)$ (⁴) où $(\varphi, \theta, \gamma)$ correspondent à la détermination suivante des angles d'Euler :

$$\begin{aligned}
 0 &\leq \varphi \leq 2\pi \\
 0 &\leq \theta \leq \pi \\
 -\pi &\leq \gamma \leq \pi
 \end{aligned}$$

Le groupe des rotations étant continu, on déduit par la transformation $\mathcal{R}^{-1}(\varphi, \theta, \gamma)$ l'ensemble des orientations possibles de \vec{b} et \vec{v} dans l'espace. Nous adopterons une base standard (4) dans la direction \vec{H} pour décrire l'évolution de l'état interne des atomes. La direction \vec{H} étant la seule direction privilégiée de l'espace, la relaxation aura une expression plus simple dans cette base.

Avec les conventions précédentes, les angles polaires de \vec{H} dans le référentiel Oxyz lié à une collision sont θ et φ et ceux de Oz dans le référentiel fixe sont θ , $\pi - \gamma$.

La forme explicite de l'interaction est la suivante :

$$V_{12}(\vec{R}) = -\frac{1}{R^3} [3(\vec{P}_1 \cdot \vec{u})(\vec{P}_2 \cdot \vec{u}) - \vec{P}_1 \cdot \vec{P}_2]$$

(\vec{P}_i représente le moment dipolaire électrique de l'atome i , \vec{u} le vecteur unitaire décrivant la position relative des deux atomes au cours de la collision).

L'effet du champ magnétique sur l'état excité $J=1$ des atomes est décrit par le hamiltonien Zeeman ($\hbar=1$) :

$$H_Z = g_J \cdot \mu_B \cdot J_Z \cdot B = \omega \cdot J_Z$$

On suppose donc que la structure fine éventuelle de l'état excité est grande.

On se limitera lors du traitement de l'effet de la collision sur le système à deux atomes aux états où l'un des deux atomes est excité et l'autre à l'état fondamental, l'indice i dans $|\psi_i\rangle$ repérant

l'atome excité. L'origine des énergies est choisie de sorte que le sous-niveau Zeeman $m = 0$ de l'état excité ait l'énergie 0.

L'équation de Schrödinger s'écrit :

$$i \frac{d}{dt} |\psi_{\pm} \rangle = H_Z |\psi_{\pm} \rangle + V_{12} |\psi_{\mp} \rangle \quad (1)$$

Les atomes étant identiques, le hamiltonien est invariant dans l'échange ce qui conduit à la forme plus simple :

$$i \frac{d}{dt} |\psi_{\pm} \rangle = (H_Z \pm V_{12}) |\psi_{\pm} \rangle \quad (2)$$

où $|\psi_{\pm} \rangle$ a pour définition :

$$|\psi_{\pm} \rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\psi_1 \rangle \pm |\psi_2 \rangle)$$

L'indice \pm repère la parité dans l'échange des atomes. (Etats g et u en notations moléculaires).

L'équation précédente est formellement analogue à celle obtenue dans le cas d'une interaction entre un atome excité et un perturbateur sans structure (8).

On définit les matrices de collision S_{\pm} par la relation :

$$|\psi_{\pm}^{(+\infty)} \rangle = S_{\pm} |\psi_{\pm}^{(-\infty)} \rangle$$

Elles s'expriment en fonction de S_{\pm} matrices de collision associées à l'équation (2) par :

$$S_{\pm} = \frac{1}{2} (S_+ \pm S_-)$$

On paramétrise le potentiel à l'aide d'une trajectoire rectiligne et on effectue parallèlement des changements de variable dans l'équation (2).

Ceux-ci ont déjà été décrits dans la référence (2).

$$\text{On pose } R^2 = b^2 + v^2 t^2 = b^2 (1 + x^2)$$

$$x = vt/b = \text{tg } \psi$$

$$r^2 = 1 + x^2 = 1/\cos^2 \psi$$

b est le paramètre d'impact et v la vitesse relative, ψ l'angle de rotation de l'axe internucléaire au cours de la collision (cf. FIG 1).

$$\text{On pose } q = p/b^2 v$$

$$\omega_a = (v^3/p\sqrt{\mu})^{1/2} \quad \mu = 8/27$$

$$\tau = \omega/\omega_a$$

$$\eta = \omega b/v = \tau/(q^{1/2} \cdot \mu^{1/4})$$

où ω est la fréquence de Larmor et p le carré de l'élément de matrice réduit du dipôle électrique de la transition

$$p = |\langle 0 \| \vec{p} \| 1 \rangle|^2 = \frac{9}{4} \frac{\Gamma}{k_0^3}$$

Le paramètre τ dépend de la fréquence de Larmor et de la vitesse relative. Il caractérise pour un niveau atomique donné, le degré de couplage du moment cinétique \vec{J} et du champ.

On se place en représentation d'interaction par rapport au hamiltonien Zeeman et on adopte pour décrire l'évolution de l'état interne de l'atome une base standard dans la direction du champ magnétique et les opérateurs tensoriels irréductibles $\{T_q^k\}$ construits sur cette base (6,9).

L'équation de Schrödinger s'écrit après ces transformations ^{*} :

$$i \frac{d}{dx} \{ \mathcal{A}_{\pm}(x) \} = \pm e^{i\eta J_H x} V(x) e^{-i\eta J_H x} \{ \mathcal{A}_{\pm}(x) \} \quad (3)$$

avec

$$V(x) = q \sum_{q_1} (-)^{q_1} U_{-q_1}^2(\varphi, \theta, \gamma, x) \cdot T_{q_1}^2$$

$$U_{q_1}^2(\varphi, \theta, \gamma, x) = \sum_{q_2} u_{q_2}^2(x) R_{q_2 q_1}^{(2)}(\varphi, \theta, \gamma)$$

$(\varphi, \theta, \gamma)$ repèrent les orientations des axes associés à une collision particulière par rapport au référentiel fixe de l'espace et les coefficients $u_{q_1}^2(x)$ caractérisent la forme de l'interaction dans le référentiel de la collision. Lorsque l'interaction est invariante par renversement du temps et par réflexion dans le plan de la trajectoire les paramètres $u_{q_1}^2(x)$ vérifient les relations :

$$u_{\pm 2}^2(x) = u_{\mp 2}^{2*}(x) = u_{\mp 2}^2(-x)$$

$$u_{\pm 1}^2(x) = 0$$

$$u_0^2(x) = u_0^{2*}(x) = u_0^2(-x)$$

Dans le cas du potentiel dipôle-dipôle en R^{-3} , les valeurs de ces coefficients sont les suivantes :

$$u_{\pm 2}^2(x) = \frac{1}{2r^5} (1 \pm ix)^2$$

$$u_0^2(x) = -\frac{1}{\sqrt{6}} \frac{1}{r^3}$$

^{*}NOTE : $\{ \mathcal{A}_{\pm}(x) \}$ représente le vecteur colonne dont les composantes sont les coefficients de la projection de $|\psi_{\pm}\rangle$ sur la base standard liée au champ magnétique. Les raisonnements effectués dans la suite ne font appel qu'aux représentations matricielles dans cette base.

L'expression des $U_q^2(\varphi, \theta, \gamma, \mathbf{x})$ est alors :

$$U_2^2(\varphi, \theta, \gamma, \mathbf{x}) = \frac{e^{-2i\gamma}}{4r^3} [(1+\cos^2\theta) \cdot \cos 2(\psi-\varphi) - \sin^2\theta + 2i \sin 2(\psi-\varphi) \cdot \cos \theta]$$

$$U_1^2(\varphi, \theta, \gamma, \mathbf{x}) = -\frac{e^{-i\gamma}}{2r^3} \sin \theta [\cos 2(\psi-\varphi) \cdot \cos \theta + \cos \theta + i \sin 2(\psi-\varphi)]$$

$$U_0^2(\varphi, \theta, \gamma, \mathbf{x}) = \frac{\sqrt{6}}{4r^3} [\sin^2\theta \cdot \cos 2(\psi-\varphi) + \sin^2\theta - \frac{2}{3}]$$

avec $U_q^{2*} = (-)^q U_{-q}^2$ (Hermiticité du potentiel d'interaction)

Les matrices de collision associées à l'équation (3) sont notées $\Sigma(\pm, \varphi, \theta, \gamma)$.

Le hamiltonien en représentation d'interaction s'écrit :

$$P(\varphi, \theta, \gamma, \mathbf{x}) = e^{i\eta J_H \mathbf{x}} V(\mathbf{x}) e^{-i\eta J_H \mathbf{x}} = \sum_{q_1} (-)^{q_1} U_{-q_1}^2 \cdot e^{i\eta q_1 \mathbf{x}} T_{q_1}^2 \quad (4)$$

L'équation de Schrödinger pour des états excités $J=1$ est donc équivalente à un système différentiel de 3 équations couplées dépendant de 5 paramètres $(\varphi, \theta, \gamma, q, \tau)$ et d'un indice discret \pm selon que l'on considère les états symétriques ou antisymétriques.

2-3-Propriétés de la matrice de collision

Pour une collision quelconque dans l'espace, la matrice $\Sigma(\pm, \varphi, \theta, \gamma)$ est unitaire et unimodulaire. Elle ne possède pas dans le cas général de propriétés remarquables. En raison de l'existence d'un champ magnétique le hamiltonien n'est pas invariant par renversement du temps ce qui apparaît sur la figure 2 où l'on a représenté les niveaux d'énergie adiabatiques du système durant la collision. Ceux-ci ne sont pas symétriques par rapport à la valeur $\psi=0$. On remarque également l'existence d'anticroisements des niveaux d'énergie dans cette situation particulière. Lorsque le plan de collision est perpendiculaire au champ magnétique, la matrice Σ possède quelques propriétés remarquables qui sont contenues dans les relations que nous démontrons ci-dessous.

Pour une collision définie par $(\varphi, \theta, \gamma)$, il faut donc, dans le cas général, intégrer l'équation de Schrödinger avec deux conditions initiales pour obtenir la matrice Σ unitaire.

2-4-Relations entre $\Sigma(\pm, \varphi, \theta, \gamma)$ et $\Sigma(\pm, \varphi', \theta', \gamma')$

L'absence de symétrie de Σ pour une collision déterminée est liée à des considérations générales telle la non invariance du hamiltonien par renversement du temps ou par réflexion dans le plan de symétrie de la trajectoire. On peut cependant relier entre elles les matrices de collision associées à certaines valeurs des angles d'Euler, correspondant à des orientations de \vec{b} et \vec{v} différentes dans l'espace. Ceci a le double intérêt de permettre de prévoir les symétries de la matrice de relaxation (après moyenne sur toutes les orientations possibles de \vec{b} et \vec{v} dans la vapeur), et de réduire la durée de l'évaluation numérique ou de fournir des tests de la précision lors de l'intégration.

2-4-1-Rotation d'axe OZ

La matrice associée à la rotation d'angle β autour de OZ est

$$R_Z(\beta) = e^{-i\beta J_Z}$$

$$R_Z(\beta) P(x, \varphi, \theta, \gamma) R_Z^\dagger(\beta) = P(x, \varphi, \theta, \gamma - \beta)$$

Cette relation est évidente puisque le problème physique ne dépend que des deux angles φ et θ repérant la position du champ H par rapport au trièdre de la collision. On en déduit :

$$\Sigma(\pm, \varphi, \theta, \gamma - \beta) = R_Z(\beta) \Sigma(\pm, \varphi, \theta, \gamma) R_Z^\dagger(\beta) \quad (5.1)$$

2-4-2-Réflexions dans les plans contenant OZ

On note $T(\xi)$ l'opérateur associé à la réflexion dans un plan passant par OZ et faisant l'angle ξ avec le plan XOZ. Il est représenté, dans la base standard précédemment définie par la matrice :

$$T(\xi) = T(\xi)^\dagger = e^{-2i\xi} T_2^2 + e^{2i\xi} T_{-2}^2 + \frac{\sqrt{6}}{3} T_0^2 - \frac{\sqrt{3}}{3} T_0^0$$

avec $\forall \xi \quad T(\xi) \cdot T_q^k \cdot T(\xi) = (-)^{k+q} e^{2iq\xi} \cdot T_{-q}^k \quad (6)$

On obtient alors par l'action sur la matrice représentant le potentiel compte tenu du fait que les éléments de matrice des T_q^k sont réels dans la base adoptée :

$$T(\xi) \cdot P(x, \varphi, \theta, \gamma) \cdot T(\xi) = P(x, \varphi, \theta, \gamma + 2\xi)^\star$$

L'action de la même transformation sur l'équation de Schrödinger entraîne après conjugaison complexe de l'équation :

$$-i \frac{d}{dx} T(\xi)^\star \{ \mathcal{A}_\pm(x) \}^\star = \pm P(x, \varphi, \theta, \gamma + 2\xi) T(\xi)^\star \{ \mathcal{A}_\pm(x) \}^\star$$

Si $\{ \mathcal{A} \}$ est solution de l'équation pour $(\varphi, \theta, \gamma)$ et le potentiel des états symétriques, $T(\xi)^\star \{ \mathcal{A} \}^\star$ vérifie l'équation pour une autre trajectoire $(\varphi, \theta, \gamma + 2\xi)$ et le potentiel des états antisymétriques. Donc

$$\Sigma(\pm, \varphi, \theta, \gamma) = T(\xi) \Sigma(\mp, \varphi, \theta, \gamma + 2\xi)^\star T(\xi) \quad (5.2)$$

où la conjugaison complexe est à prendre dans la base standard déjà définie.

La relation (5.2) entraîne que les solutions du problème mathématique pour le système symétrique dans l'échange des atomes et le système antisymétrique sont liées.

2-4-3-Autres relations

On utilise les propriétés du potentiel dans des transformations simples des angles d'Euler.

- Transformation $\varphi \rightarrow \pi + \varphi$ $U_q^2(\varphi, \theta, \gamma) = U_q^2(\pi + \varphi, \theta, \gamma)$

$$\text{d'où } P(x, \pi + \varphi, \theta, \gamma) = P(x, \varphi, \theta, \gamma)$$

Elle correspond physiquement à la réflexion par rapport à l'origine. Les deux trajectoires se correspondent dans cette transformation qui laisse par ailleurs le champ magnétique invariant. Le hamiltonien électrostatique qui a les éléments de symétrie d'une droite est le même pour les deux trajectoires ainsi associées au même "instant" ψ .

- Transformation $(\varphi, \theta, \gamma, x) \rightarrow (\pi - \varphi, \theta, -\gamma, -x)$

$$U_q^2(\pi - \varphi, \theta, -\gamma, -x) = (-)^q U_{-q}^2(\varphi, \theta, \gamma, x) = U_q^2(\varphi, \theta, \gamma, x) \star$$

$$\text{soit } P(-x, \pi - \varphi, \theta, -\gamma) = P(x, \varphi, \theta, -\gamma) \star$$

- On déduit de ces deux relations

$$P(-x, 2\pi - \varphi, \theta, \gamma) = P(x, \varphi, \theta, -\gamma) \star$$

La dernière relation associe deux trajectoires symétriques par rapport au plan XOZ, à des "instants" ψ et $-\psi$ opposés dans le temps. La symétrie dans le plan XOZ ne laisse pas le champ invariant mais le renversement du temps qu'on lui associe ensuite assure cette invariance.

L'utilisation de ces propriétés conduit après des transformations simples de l'équation de Schrödinger aux relations :

$$\Sigma(\pm, \varphi, \theta, \gamma) = \tilde{\Sigma}(\pm, 2\pi - \varphi, \theta, -\gamma) \quad (5.3)$$

$$\Sigma(\pm, \varphi, \theta, \gamma) = \overset{\sim}{\Sigma}(\pm, \pi - \varphi, \theta, -\gamma) \quad (5.4)$$

$$\Sigma(\pm, \varphi, \theta, \gamma) = \Sigma(\pm, \pi + \varphi, \theta, \gamma) \quad (5.5)$$

Rappelons que parmi les relations (5), celles faisant intervenir la conjugaison complexe ne sont valables que dans la base standard associée au champ H. Les relations faisant intervenir le changement de ψ en $-\psi$ sont valables pour des trajectoires présentant un axe de symétrie en $x=0$ et ne sont pas limitées au cas d'une trajectoire rectiligne. Les relations obtenues sont en général étroitement liées aux symétries de l'interaction (caractère d'un alignement dans la direction de l'axe internucléaire), et à celles du champ magnétique.

Dans le cas où il n'existe pas de champ magnétique ou lorsque son effet durant la collision est négligeable, rappelons que la relation suivante est vérifiée :

$$\Sigma(\pm, \varphi, \theta, \gamma) = R(\varphi, \theta, \gamma) \Sigma(\pm, 0, 0, 0) R(\varphi, \theta, \gamma)^\dagger$$

relation beaucoup plus générale qui permet de déduire du calcul d'une matrice de collision par une rotation $R(\varphi, \theta, \gamma)$ l'ensemble des matrices associées à toutes les orientations de \vec{b} et \vec{v} . Les relations (5) sont beaucoup plus limitées en raison de la présence du champ magnétique qui rompt l'isotropie de l'espace.

3 - SYMETRIES DE LA RELAXATION

On déduit des relations (5), les symétries de la matrice de relaxation dans la base standard liée au champ.

Les probabilités de relaxation ou de transfert pour la collision d'angles d'Euler $(\varphi, \theta, \gamma)$ sont données par :

$$\Pi_{qq'}^{kk'}(i)(\varphi, \theta, \gamma) = \delta_{i1} \cdot \delta_{kk'} \cdot \delta_{qq'} - \text{Tr} [T_q^{k+} \Sigma_i(\varphi, \theta, \gamma) T_q^{k'} \Sigma_i^\dagger(\varphi, \theta, \gamma)] \quad (7)$$

avec

$$\Sigma_1 = \frac{1}{2} (\Sigma_+ \pm \Sigma_-)$$

L'expression des probabilités de relaxation pour une vapeur où l'on suppose vérifiée l'hypothèse d'isotropie de la distribution des vitesses relatives et du paramètre d'impact est :

$$\Pi_{qq'}^{kk'}(i) = \frac{1}{8\pi^2} \int_0^{2\pi} d\varphi \int_{-\pi}^{+\pi} d\gamma \int_0^\pi \sin \theta \cdot \Pi_{qq'}^{kk'}(i)(\varphi, \theta, \gamma) \cdot d\theta \quad (8)$$

On déduit les conséquences des relations (5) pour les coefficients $\Pi_{qq'}^{kk'}(i)(\varphi, \theta, \gamma)$ puis les coefficients $\Pi_{qq'}^{kk'}(i)$ après moyennes angulaires.

3-1-Utilisation des propriétés des matrices de collision

Les relations entre les coefficients $\Pi_{qq'}^{kk'}(i)(\varphi, \theta, \gamma)$ pour diverses valeurs des angles d'Euler sont obtenues à l'aide des relations (5) et de la définition (7).

La relation (5.1) conduit à

$$\Pi_{qq'}^{kk'}(i)(\varphi, \theta, \gamma) = e^{i\beta(q-q')} \Pi_{qq'}^{kk'}(i)(\varphi, \theta, \gamma - \beta)$$

La relation (5.2) donne

$$T(\xi) \cdot \Sigma_1(\varphi, \theta, \gamma) T(\xi) = \pm \Sigma_1(\varphi, \theta, \gamma + 2\xi) \star$$

Puis en introduisant dans la trace de l'expression (7) l'identité $T(\xi) \cdot T(\xi) = I$ et en utilisant la relation (6), on obtient :

$$\Pi_{qq'}^{kk'}(i)(\varphi, \theta, \gamma) = (-)^{k+k'+q+q'} e^{-2i\xi(q-q')} \Pi_{-q-q'}^{kk'}(i)(\varphi, \theta, \gamma + 2\xi)$$

Les relations (5.3) à (5.5) sont utilisables sans difficulté en transposant lorsqu'il le faut l'expression dans la trace de la définition (7).

A ces relations déduites de (5), on adjoint la relation générale

$$\Pi_{qq}^{kk'}(i)(\varphi, \theta, \gamma)^* = (-)^{q+q'} \Pi_{-q-q}^{kk'}(\varphi, \theta, \gamma)$$

qui traduit l'hermiticité de la matrice densité décrivant le système.

L'ensemble des relations précédentes conduit aux formules :

$$\Pi_{qq}^{kk'}(i)(\varphi, \theta, \gamma) = e^{i\gamma(q-q')} \Pi_{qq}^{kk'}(i)(\varphi, \theta, 0)$$

$$\Pi_{qq}^{kk'}(i)(\varphi, \theta, \gamma) = (-)^{k+k'} \Pi_{qq}^{kk'}(i)(\varphi, \theta, \gamma)$$

(9)

$$\Pi_{qq}^{kk'}(i)(\varphi, \theta, \gamma) = (-)^{q+q'} \Pi_{-q-q}^{kk'}(\varphi, \theta, \gamma)^*$$

$$\Pi_{qq}^{kk'}(i)(\varphi, \theta, \gamma) = e^{2i\gamma(q-q')} \Pi_{q',q}^{k',k}(\frac{2\pi-\varphi}{\pi-\varphi}, \theta, \gamma)$$

$$\Pi_{qq}^{kk'}(i)(\varphi, \theta, \gamma) = \Pi_{qq}^{kk'}(i)(\pi+\varphi, \theta, \gamma)$$

3-2-Moyennes angulaires

La première des relations (9) permet d'effectuer facilement la moyenne sur l'angle γ . Le résultat obtenu confirme que seuls sont non nuls les coefficients de relaxation pour lesquels $q = q'$ ce qui traduit l'invariance de la relaxation dans les rotations autour de la direction \vec{H} .

L'ensemble des relations (8) et (9) permet d'obtenir les relations (10) qui caractérisent la relaxation dans les collisions résonnantes entre atomes identiques en champ magnétique intense :

$$\Pi_{qq'}^{kk'}(i) = \delta_{qq'} \cdot \Pi_q^{kk'}(i) \quad (10.1)$$

$$\Pi_q^{kk'}(i) = \Pi_{-q}^{kk'}(i) \star \quad (10.2)$$

$$\Pi_q^{kk'}(i) = \Pi_q^{k'k}(i) \quad (10.3)$$

$$\Pi_q^{kk'}(i) = (-)^{k+k'} \Pi_q^{kk'}(i) \quad (10.4)$$

Rappelons qu'en l'absence de champ magnétique, la relaxation présente l'invariance de rotation et l'on a :

$$\Pi_{qq'}^{kk'}(i) = \delta_{kk'} \cdot \delta_{qq'} \cdot \Pi^k$$

L'interprétation des relations (10) est la suivante : la relation (10.1) traduit l'invariance de rotation du milieu extérieur autour de la direction du champ. La relation (10.2) est tout à fait générale et provient de l'hermiticité de la matrice densité décrivant le système.

La relation (10.3) est d'interprétation moins simple que les précédentes. Elle traduit l'invariance du milieu extérieur (les sources du champ magnétique) dans le produit des transformations suivantes : renversement du temps et réflexion plane XOZ. Il est clair que le milieu extérieur n'est pas invariant dans chacune de ces transformations séparément puisque le champ est renversé dans les deux cas, mais qu'il l'est dans le produit des deux. La relaxation doit donc posséder cette invariance. Cette relation est valable en général pour les problèmes de relaxation en présence d'un champ magnétique comme on peut le montrer de façon beaucoup plus générale en s'affranchissant des restrictions et complications inhérentes à l'utilisation de l'approximation d'impact. (5) (6)

La relation (10.4) présente quelque analogie (à une conjugaison complexe près) avec celle que l'on obtient dans le cas où le milieu extérieur est invariant par réflexion plane (7). Tel n'est pas le cas en présence

d'un champ magnétique appliqué au système. Elle est liée à l'invariance dans l'échange des atomes et ne se généralise pas dans le cas par exemple de collisions entre un atome excité et un perturbateur sans structure ⁽⁸⁾. Il s'agit donc d'une particularité des collisions entre atomes identiques plus que d'une propriété générale. Le point fondamental pour l'établissement de (10.4) et en définitive que la définition des coefficients de relaxation par la relation (7) pour chaque classe 1 et 2 d'atomes ait un sens ce qui implique que les corrélations introduites par la collision entre l'état des atomes ne soient pas observables et que les effets liés à l'indiscernabilité des particules ne soient pas importants. Remarquons en effet que la trace partielle utilisée dans (7) suppose que les atomes soient discernables au cours de la collision. Mais c'est là une des conditions essentielles de la validité de l'ensemble des résultats exposés, et les interactions s'effectuant à longue distance avec des trajectoires pratiquement rectilignes, il n'y a pas de raison de la remettre en question.

Les relations (10) sont obtenues dans le cadre d'un traitement de la collision dans l'approximation d'impact avec trajectoires rectilignes. Il est bien connu qu'un tel traitement conduit en ce qui concerne les lois de conservation et d'invariance (renversement du temps) en l'absence de champ extérieur à des formulations souvent beaucoup plus compliquées que celles obtenues dans le cadre d'une approche purement quantique ⁽⁵⁾. La plupart des relations que nous venons d'obtenir en présence d'un champ magnétique appliqué au système sont ainsi plus simples à démontrer et à interpréter en utilisant une formulation quantique du problème ⁽⁶⁾.

Les conséquences des relations (10) pour la description de la relaxation par collisions résonnantes en champ intense sont les suivantes : seuls seront couplés les multipôles d'ordre k et k' des deux atomes tels que $(k+k')$ soit pair. Pour des niveaux excités de moments cinétiques $J=1$ il pourra donc exister des termes Π_0^{02} de couplage entre alignement et population. D'après (10.2), les coefficients $\Pi_0^{kk'}$ seront de plus réels.

En définitive, 13 quantités indépendantes permettront de décrire la relaxation de l'état excité de chaque atome ou le transfert de l'atome 1 à l'atome 2. En l'absence de champ magnétique, 5 quantités suffiraient en raison de l'isotropie de la relaxation.

Bien que la relaxation en champ intense ne soit plus isotrope, on doit donc remarquer que les propriétés de symétrie s'expriment encore de façon extrêmement simple dans la base de l'espace de Liouville constituée par les opérateurs $\{T_q^k\}$. Cependant dans la mesure où la description de l'état initial ou final d'un système physique est plus simple dans la base $|m\rangle\langle p|$ construite à partir des états standards dans la direction du champ, il est intéressant d'exprimer dans cette autre base de l'espace de Liouville les propriétés de symétrie de la matrice de relaxation. On passe de l'une à l'autre représentation de la relaxation par une transformation unitaire simple (cf. Appendice 1). On définit les probabilités de relaxation ou de transfert dans la base Zeeman de la manière usuelle :

$$\Pi^{(rr')(pp')}(i) = \delta_{il} \cdot \delta_{rp} \cdot \delta_{r'p'} - \{ \langle r | \Sigma_i | p \rangle \langle p' | \Sigma_i^+ | r' \rangle \}$$

ANG

Les relations (10) se traduisent alors par :

$$\begin{aligned} \Pi^{(rr')(pp')} &= \delta_{r-r', p-p'} \cdot \Pi^{(rr')(pp')} \\ \Pi^{(rr')(pp')} &= \Pi^{(pp')(rr')} \\ \Pi^{(rr')(pp')} &= \Pi^{(r'r)(p'p)}^* \\ \Pi^{(rr')(pp')} &= \Pi^{(-r-r')(-p-p')}^* \end{aligned} \tag{11}$$

3-3-Coefficients de relaxation pour le dipôle optique

Le coefficient décrivant la relaxation de la composante m du dipôle optique est défini par :

$${}_{ef}\Pi^{(mm)}(i) = \delta_{i1} - \{ \langle m | \Sigma_i | m \rangle \}_{ANG}$$

La relation (5.2) conduit à :

$${}_{ef}\Pi^{(mm)}(1) = {}_{ef}\Pi^{(-m-m)}(1)^\star$$

$${}_{ef}\Pi^{(mm)}(2) = - {}_{ef}\Pi^{(-m-m)}(2)^\star$$

L'élargissement et le déplacement des raies optiques issues des différents sous-niveaux Zeeman dépendent de la valeur de m à la différence des résultats que l'on obtient lorsque le champ est nul. Rappelons que les expressions précédentes supposent que la perturbation de l'état fondamental est négligeable au cours de la collision.

3-4-Relaxation de l'ensemble des atomes.

Les atomes étant identiques on n'observe pas en général 1 ou 2 séparément. Les probabilités de relaxation $\Pi(1+2)$ pour l'ensemble des atomes identiques paraissent les seules quantités réellement observables. Leur définition usuelle est (9) :

$$\Pi(1+2) = \Pi(1) + \Pi(2)$$

Avec cette définition on néglige implicitement les corrélations entre les atomes 1 et 2, ce qui est parfaitement légitime dans ce modèle où les deux atomes sont infiniment éloignés après la collision. Les relations (10) restent valables pour les coefficients $\Pi_{qq}^{kk'}(1+2)$. Il existe des relations supplémentaires traduisant la conservation de la population après la collision. On a en effet :

$$\begin{aligned} \Pi_{qq}^{kk'}(1+2) &= \delta_{kk'} \cdot \delta_{qq'} - \text{Tr} \{ T_q^{k\dagger} \Sigma_1 T_{q'}^{k'} \Sigma_1^\dagger \} - \text{Tr} \{ T_q^{k\dagger} \Sigma_2 T_{q'}^{k'} \Sigma_2^\dagger \} \\ &= \delta_{kk'} \cdot \delta_{qq'} - \frac{1}{2} \text{Tr} \{ T_q^{k\dagger} \Sigma_+ T_{q'}^{k'} \Sigma_+^\dagger \} - \frac{1}{2} \text{Tr} \{ T_q^{k\dagger} \Sigma_- T_{q'}^{k'} \Sigma_-^\dagger \} \end{aligned}$$

Les matrices Σ_+ et Σ_- sont unitaires et l'on déduit sans difficultés que :

$$\forall k \quad \Pi_0^{0k}(1+2) = \Pi_0^{k0}(1+2) = 0$$

Par conséquent, pour un état excité $J=1$, les probabilités de relaxation non nulles sont de la forme Π_q^k , avec :

$$\Pi_q^k(1+2) = \Pi_{-q}^k(1+2)^* = \Pi_q^{kk}(1) + \Pi_q^{kk}(2)$$

Les différences essentielles avec les relations obtenues en champ nul sont donc qu'il peut exister un terme imaginaire dans les coefficients traduisant un déplacement de la fréquence d'évolution des cohérences hertziennes (pour $q \neq 0$) et que pour une valeur de k donnée, les coefficients dépendent de la valeur de q . Pour k fixé, la matrice de relaxation ne sera donc plus proportionnelle à la matrice unité.

En ce qui concerne le dipôle optique, on obtient de la même façon :

$$\begin{aligned} e_f \Pi^{(mm)}(1+2) &= e_f \Pi^{(mm)}(1) + e_f \Pi^{(mm)}(2) \\ &= 1 - \{ \langle m | \Sigma_+ | m \rangle \}_{ANG} \end{aligned}$$

Les caractéristiques, élargissement et déplacement des composantes de la raie optique ne dépendent donc que de l'évolution des états symétriques dans l'échange. Il est bien connu en effet dans la théorie de la superradiance que les états antisymétriques ne rayonnent pas dans la mesure où $k_0 r \ll 1$. Notons qu'une contribution non nulle au déplacement provient du terme $e^{ik_0 r} / r$ à longue distance (¹⁰), négligé ici.

4 - METHODES DE CALCUL DES COEFFICIENTS DE RELAXATION

4-1-Caractères généraux

Les méthodes employées sont proches de celles développées dans des publications précédentes (5). Le problème à résoudre est cependant plus compliqué dans la mesure où le système différentiel dépend de 5 paramètres outre le temps. Il faut en effet résoudre l'équation de Schrödinger pour chaque orientation de \vec{b} et \vec{v} par rapport au champ puisque les moyennes angulaires ne peuvent pas être faites analytiquement.

La seconde difficulté de ce problème a déjà été rencontrée précédemment (2). Elle est due aux oscillations qu'entraîne la différence d'énergie entre les niveaux lors de la résolution numérique en fonction du temps. Ceci est évidemment lié aux conditions initiales admises où la préparation de l'état excité a lieu au temps $t = -\infty$ à partir duquel commence la précession de Larmor.

Un troisième problème est posé par le choix des méthodes à adopter pour traiter la région des petits paramètres d'impact. En effet, lors de la résolution de problèmes analogues sans champ magnétique, les auteurs (1) admettent divers types d'approximations pour traiter la région de collisions rapprochées : coupure à partir d'une valeur du paramètre d'impact correspondant au rayon de Weisskopf puis hypothèses d'équipartition des populations (7), ou choix d'approximations analytiques obtenues à l'aide de l'approximation adiabatique (où les atomes sont traités pendant la collision comme une pseudo-molécule). Ces traitements sont en général justifiés excepté pour les taux de transfert par collision. Néanmoins, les contributions à longue distance au transfert sont généralement assez grandes pour que les résultats obtenus soient significatifs malgré le caractère très phénoménologique du traitement des collisions rapprochées.

On retrouve dans la présente étude ces difficultés mais elles sont aggravées par deux faits nouveaux : l'absence pour les petits paramètres

d'impact d'approximations simples qui permettraient de tenir compte du potentiel d'un point de vue essentiellement mathématique et la décroissance rapide avec le champ de la contribution à longue distance au transfert d'excitation entre sous-niveaux Zeeman. Nous avons été conduits à adopter une méthode numérique analogue à celle décrite dans la référence (2) qui permet d'évaluer l'ordre de grandeur des contributions à courte distance avec le potentiel en R^{-3} . Un traitement physique acceptable du problème dans la région des petits paramètres d'impact suppose la connaissance des courbes de potentiel dans cette région.

Les probabilités de transfert ont été évaluées en distinguant 3 régions de paramètre d'impact et de vitesse relative. La variable q étant d'un emploi plus naturel, ces régions correspondent aux valeurs de q et approximations suivantes :

- pour $q \leq 0,1$ on utilise une évaluation asymptotique de la matrice de collision obtenue par un développement de perturbations au 2ème ordre (9).

- Entre $q = 0,1$ et $q = 20$, on résoud numériquement l'équation de Schrödinger.

- On utilise pour la région $q > 20$ une méthode de moyenne sur les oscillations dans la région $q \approx 100$. Ceci permet d'obtenir un ordre de grandeur des contributions de la région de petits paramètres d'impact avec le modèle mathématique utilisé pour le potentiel.

4-2-Calcul des contributions asymptotiques

Le calcul de la partie réelle des coefficients a été effectué par OMONT (9). On se ramène à des expressions établies par TSAO et CURNUTTE (11) pour le traitement d'un problème similaire. On a rappelé dans l'appendice 2 le principe de ce calcul facilement généralisable à des moments cinétiques J_e et J_f quelconques et les expressions des taux de transfert et de relaxation.

4-3-Méthodes numériques

On résoud l'équation de Schrödinger avec deux conditions initiales pour des valeurs convenablement choisies des paramètres $(\tau, q, \theta, \varphi)$. La variable d'intégration utilisée est l'angle ψ de rotation de l'axe internucléaire (cf. FIG 1 - $-\frac{\pi}{2} \leq \psi \leq \frac{\pi}{2}$). L'intégration est effectuée avec les méthodes employées dans la référence (2). Compte tenu des relations de symétrie (cf. §3) il n'est nécessaire de résoudre que pour des valeurs de φ telles que $0 \leq \varphi \leq \frac{\pi}{2}$. Nous avons préalablement testé numériquement la validité des relations (5), (9), (10) dans le cas le plus général.

Le choix des valeurs (θ_i, φ_i) est guidé par l'adoption de méthodes de Gauss à 7 points en θ et 5 points en φ pour effectuer les moyennes angulaires. Parallèlement, l'interpolation à partir des points (θ_i, φ_i) et la sommation par des méthodes à pas constant permet de vérifier la précision de la sommation. Enfin, pour $\tau = 0$, la dépendance en θ et φ des coefficients $\Pi(\theta, \varphi)$ peut être déterminée analytiquement et est en excellent accord avec les valeurs obtenues numériquement. Cet accord est confirmé après moyenne angulaire.

Enfin, les relations de symétrie et de conservation sont en général vérifiées à mieux de 10^{-3} et l'accord avec les formes asymptotiques pour $q \leq 0,1$ est excellent.

4-4-Sommation sur le paramètre d'impact

Pour $q \leq 0,1$ où est valable l'approximation asymptotique, la sommation sur b est faite analytiquement (2) excepté pour les déplacements des raies optiques ou de radiofréquence. Ceci est décrit dans l'appendice 2.

Dans la région où q est compris entre 0,1 et 20, nous avons adopté une méthode de Gauss à 10 points qui donne une excellente précision excepté dans les régions où les coefficients oscillent fortement où nous employons

la méthode de GREGORY. Le résultat des sommations dépend en définitive peu de la méthode employée, et nous estimons la précision à quelques 10^{-3} dans cette région.

Dans la région $q > 20$, la méthode utilisée est de prendre la moyenne autour de $q \approx 100$ sur quelques oscillations. On somme ensuite cette valeur moyenne de 20 à l'infini. Ceci donne une estimation des contributions à cette région avec un potentiel dipôle-dipôle en R^{-3} .

On obtient en définitive les taux de relaxation qui dépendent par l'intermédiaire du paramètre τ de la vitesse relative des atomes et du champ magnétique. Leur définition (2) est la suivante (α et β repèrent les états excité ou fondamental de l'atome) :

$$\alpha\beta g_q^{kk'}(i, \tau) = 2\pi Nv \int_0^\infty \alpha\beta \Pi_q^{kk'}(i) \cdot b \cdot db \quad (12)$$

et

$$\alpha\beta g^{(mm')(pp')}(i, \tau) = 2\pi Nv \int_0^\infty \alpha\beta \Pi^{(mm')(pp')}(i) \cdot b \cdot db \quad (13)$$

Pour comparer aux résultats des références (1), (2) et (8), on définit les coefficients sans dimension $K_q^{kk'}$ et $K^{(mm')(pp')}$ par la relation suivante :

$$\alpha\beta K^{(\gamma)} = \frac{3\sqrt{3}}{2p\pi N} \alpha\beta g^{(\gamma)} \quad (14)$$

4-5-Moyenne sur la vitesse

Les coefficients obtenus dans les relations (12) (13) (14) dépendent de la vitesse relative des atomes par l'intermédiaire de τ . La comparaison aux résultats expérimentaux exige en général d'effectuer la moyenne sur la vitesse relative, ce qui peut être fait en utilisant une distribution de Maxwell Boltzmann selon la méthode développée dans un article précédent (relations 23 à 27 de la référence (2)). Ceci pose néanmoins le problème du comportement des taux de transfert et de relaxation aux grandes valeurs

de τ pour lesquelles nous n'avons pu obtenir d'expression analytique. Le modèle de potentiel adopté peut d'autre part devenir irréaliste. C'est pourquoi nous ne donnerons pas systématiquement ces résultats qui pourront être obtenus selon la situation physique envisagée par la méthode donnée dans la référence (2).

5 - RESULTATS

5-1-Comportement des coefficients en fonction de q et de τ .

D'une manière générale le comportement des probabilités de transfert ou de relaxation en fonction de τ est très analogue à celui décrit dans la référence (2). Il existe un déplacement du maximum de la première oscillation (cf. FIG 3) vers les petits paramètres d'impact associé à une diminution des probabilités à longue distance, lorsque τ croît. Ceci est directement lié à l'augmentation de la différence d'énergie entre les sous-niveaux Zeeman qui entraîne une moindre efficacité des processus de collision. Ce point est illustré dans le cas du transfert entre les sous-niveaux Zeeman $m=0$ et $m=1$ pour $i=1+2$, sur la figure 3. On constate également l'atténuation des oscillations lorsque la valeur de τ croît. Cette caractéristique est probablement liée à la disparition d'un des processus contribuant au transfert de l'excitation en champ nul. Elle est assez analogue en effet à des processus de modification de la période de l'oscillation qui ont été étudiés et interprétés en termes de couplage radial et rotationnel dans la référence (2), à l'aide de l'approximation adiabatique.

En champ non nul, les grandeurs transversales et longitudinales ont des comportements différents en fonction de q . Ceci est déjà apparent dans l'expression des formes asymptotiques (cf. Appendice 2). De la même façon, il apparaît des parties imaginaires dans les taux de relaxation. Elles représentent, selon la grandeur tensorielle concernée des déplacements des raies optiques ou de radiofréquences. Leur apparition est liée au caractère non résonnant de l'interaction lorsque le champ croît (cf. référence (2)).

5-2-Variations avec τ des taux de transfert par collision

Nous donnons dans les tableaux 1,2,3,4 , les coefficients K définis par la relation (14) en fonction de la valeur de τ . Aux très grandes valeurs du champ, le comportement des coefficients peut être prévu en utilisant l'approximation séculaire. On fait l'hypothèse, pour chaque orientation de \vec{b} et \vec{v} dans l'espace, que les termes non diagonaux du potentiel sont négligeables. Ce modèle autorise le transfert entre sous-niveaux Zeeman de mêmes valeurs de m des deux atomes. La matrice de collision associée à une collision est donc diagonale dans la base $\{\vec{H}\}$ standard. Ce modèle est développé dans l'appendice 3 et permet de prévoir les valeurs de saturation des taux de relaxation. Il est par contre insuffisant pour obtenir le comportement des déplacements des raies optiques ou de radiofréquences et des taux de transfert aux fortes valeurs de τ . On pourrait le raffiner en incorporant l'effet des transitions virtuelles entre sous-niveaux Zeeman, mais cette procédure conduit à des calculs numériques qui en limitent singulièrement l'intérêt.

5-2-1-Coefficients relatifs à l'atome 1

Les taux de relaxation des populations des 3 sous-niveaux Zeeman décroissent lorsque la valeur de τ augmente (cf. FIG 4). Cela traduit en particulier la diminution des probabilités de transfert par collisions vers les sous-niveaux Zeeman du 2ème atome. La valeur de saturation en champ fort est évidemment non nulle puisqu'il subsiste toujours un sous-niveau Zeeman de l'atome 2 pour lequel le transfert de l'excitation est résonnant. Pour $\tau=10$, les valeurs de saturation calculées dans l'approximation séculaire (Appendice 3) sont très proches de celles obtenues numériquement .

La relaxation des cohérences hertziennes présente les mêmes caractéristiques. La valeur de saturation est non nulle puisqu'il peut y avoir transfert résonnant vers les niveaux du second atome d'une partie de cette cohérence. Les taux de relaxation des cohérences hertziennes comportent une partie imaginaire qui interviendrait dans l'expression du déplacement

des raies de résonance magnétique. Ces termes imaginaires sont nuls en champ nul et passent par un maximum en champs intermédiaires pour tendre ensuite lentement vers 0. Le comportement aux fortes valeurs du champ pourrait être prévu à l'aide du modèle développé dans l'appendice 3 en autorisant des transitions virtuelles entre les sous-niveaux Zeeman. Néanmoins il n'est pas possible d'en donner une expression analytique en fonction de τ . L'existence et les variations en fonction de τ de ces déplacements peuvent être interprétés de la façon suivante : dans une première région, une partie des processus contribuant à la relaxation des cohérences hertziennes cesse d'être résonnant et il apparaît un déplacement croissant en fonction de τ qui provient des contributions des grands paramètres d'impact et est donc caractéristique du potentiel en R^{-3} (cf. formes asymptotiques, appendice 2). Aux grandes valeurs de τ , le déplacement est dû au potentiel en R^{-6} que l'on peut calculer en autorisant des transitions virtuelles vers d'autres sous-niveaux Zeeman (Appendice 3).

Les taux de transfert des cohérences hertziennes ou de la population entre les sous-niveaux Zeeman de l'atome 1 décroissent en fonction du champ ce qui traduit la croissance de l'écart d'énergie entre les niveaux (cf. FIG 5). Les valeurs de saturation, nulles aux fortes valeurs du champ ne sont pas tout à fait atteintes pour $\tau = 10$.

5-2-2-Coefficients relatifs à l'atome 2

La décroissance en fonction de τ des taux de transfert est beaucoup plus rapide que dans le cas précédent ; en particulier pour le transfert de la population du niveau $m = -1$ de 1 vers le niveau $m = +1$ de 2. La plus grande sensibilité à l'action du champ des taux de transfert de l'atome 2 peut s'expliquer de la façon suivante : à longue distance ($q < 1$) les processus de transfert pour l'atome 2 sont d'ordre 2 en q , tandis que pour l'atome 1, ils sont d'ordre 4 car ils exigent un passage virtuel intermédiaire dans les sous-niveaux Zeeman de l'atome 2. Dans la mesure où le transfert provient de la région à longue distance, l'atome 1 voit donc un potentiel "effectif"

en q^2 petit comparé au potentiel en q vu par l'atome 2. Dès lors, l'intensité du champ nécessaire pour réaliser la condition $\omega.T_c \approx 1$ sera plus faible pour l'atome 2. Ainsi pour $\tau < 0,5$, les taux de transfert de l'atome 2 décroissent tandis que les coefficients relatifs à l'atome 1 sont légèrement croissants (cf. FIG 5).

Les coefficients de relaxation de l'atome 2 (FIG 6) présentent pour $\tau < 2$ un aspect en général croissant avec apparition de déplacements non nuls des fréquences d'évolution des grandeurs transversales. La croissance est ensuite plus lente pour les quantités réelles et la saturation à des valeurs non nulles aux fortes valeurs du champ est interprétée à l'aide de l'approximation séculaire (Appendice 3). La situation est en effet analogue à celle décrite pour l'atome 1 puisqu'il subsiste toujours un sous-niveau Zeeman de 1 ayant la même énergie.

5-2-3-Coefficients relatifs à l'ensemble des atomes.

Le comportement des coefficients de relaxation est très analogue à celui décrit précédemment. La valeur de saturation en champ fort des coefficients de relaxation de la population est 0 puisque pour l'ensemble des deux atomes il n'y a plus de transfert vers d'autres sous-niveaux Zeeman (cf. FIG 7). Le coefficient de relaxation de la cohérence hertzienne entre les niveaux $m=1$ et $m=-1$ tend lentement vers 0 en fonction du champ tandis que le coefficient de relaxation de la cohérence hertzienne entre 1 et 0 tend vers une valeur non nulle. Les déplacements associés à ces quantités prennent comme on le voit sur la figure 7 des valeurs importantes en champ non nul.

Les taux de transfert décroissent très vite en fonction du champ spécialement le transfert entre sous-niveaux Zeeman +1 et -1. Pour $\tau \approx 1$, la décroissance obtenue est de l'ordre de 50% dans ce cas (FIG 8).

5-2-4-Dipôle optique

L'élargissement et le déplacement des 3 raies issues des sous-niveaux Zeeman sont portés sur la figure 8. Ils sont différents selon le sous-niveau considéré ce qui illustre l'anisotropie de la relaxation. La différence entre l'élargissement des raies issues des niveaux $m=\pm 1$ et $m=0$ est en particulier très importante et les valeurs de saturation en haut champ prévues sont pour l'élargissement de $m=0$ doubles de celles pour $m=\pm 1$ (Appendice 3).

Le déplacement des raies optiques est très faible pour $m=0$. Il prend des valeurs notables (comparé aux élargissements) et sensiblement opposées pour $m=\pm 1$.

L'existence de ces déplacements importants des raies optiques est une manifestation du caractère non résonnant de l'interaction et avait été déjà trouvée dans une situation analogue (2).

En conclusion, l'effet du champ sur la relaxation ou le transfert d'excitation dans les collisions de Holtzmark (entre atomes identiques) est caractérisé par la décroissance très rapide des taux de transfert par collision $\Pi^{(mm)}(pp)_{(1+2)} (p \neq m)$ lorsque le champ croît et l'apparition de déplacements des raies optiques ou de radiofréquences comparables dans certains cas aux élargissements. Effectuer une moyenne sur les vitesses ne modifierait pas ces conclusions. L'effet essentiel serait pour les taux de transfert une diminution plus rapide pour $\tau \ll 1$ en fonction du champ et une décroissance plus lente aux fortes valeurs du champ ($\tau \approx 5$).

5-3-Remarques

L'incidence sur les résultats que l'on vient de présenter de la non conservation de l'énergie dans notre modèle est difficile à analyser. Admettre que la trajectoire des atomes est rectiligne et décrite à vitesse constante au cours de la collision revient à permettre aux atomes de subir des modifications d'énergie de leur état interne (transitions entre les

sous-niveaux Zeeman) qui ne perturbent pas la trajectoire. Ceci est donc en contradiction avec le principe de conservation de l'énergie totale. En général, la condition $\hbar\omega \ll kT$ est réalisée dans les situations expérimentales usuelles. Par exemple, pour le niveau 6^3P_1 du Mercure $\hbar\omega/kT$ est de l'ordre de $2 \cdot 10^{-2}$ à 80 kG. Dans ces conditions les relations de symétrie et les valeurs des taux de transfert que nous venons de donner sont valables à une très bonne approximation. Introduire la conservation de l'énergie dans le modèle précédent revient à admettre que l'évolution de l'état interne et le mouvement relatif orbital sont couplés. Il faut donc abandonner la notion de trajectoire et traiter quantiquement le problème. Les coefficients de transfert obtenus satisferont alors le principe de bilan détaillé ⁽⁸⁾

$$g^{(mm)}(pp) = e^{-\frac{\hbar\omega}{kT}}{}^{(m-p)} g^{(pp)}(mm)$$

auquel ne satisfont pas les relations (8)

6 - QUELQUES ORDRES DE GRANDEUR - DISCUSSION

6-1-Généralisations possibles

Le traitement effectué précédemment l'a été dans l'hypothèse où les atomes sont identiques et dans l'état fondamental $J=0$ ou l'état excité $J=1$. De plus nous avons supposé que la structure fine n'était pas affectée par le champ. Dans l'hypothèse où les atomes ne sont pas identiques, mais sont isotopes d'une même espèce chimique, il est bien clair que les résultats précédents pourront être utilisés ou non selon les ordres de grandeur de l'écart isotopique ΔE comparé à l'énergie caractéristique définie par

$$\Delta E_a = (v^3/p\sqrt{\mu})^{1/2}$$

si $\Delta E/\Delta E_a$ est de l'ordre de 1 ou inférieur et c'est en général le cas ⁽²⁾, les évaluations précédentes sont applicables comme cas limite où $\Delta E = 0$.

C'est pourquoi nous avons donné les valeurs des taux de relaxation pour les atomes 1 et 2 qui en toute rigueur s'ils sont identiques ne peuvent être distingués expérimentalement. S'ils sont isotopes différents d'une même espèce chimique, il existe des situations où les rayonnements émis par 1 et 2 après la collision peuvent être distingués (2) (9). Il est possible que la non invariance du système dans l'échange des atomes puisse modifier quelques caractéristiques de la relaxation (la relation 10.4 n'est plus valable) mais il s'agira essentiellement d'effets faibles à la limite $\Delta E \ll \Delta E_a$.

La valeur des moments cinétiques de l'état fondamental et de l'état excité est par contre une limitation du traitement précédent. En effet on ne déduit de nos résultats que les quantités analogues pour un état excité $J=1/2$ et un état fondamental $1/2$ dans le cas très particulier où les facteurs de Landé de ces états sont égaux ce qui offre peu d'intérêt. La méthode est de recoupler selon la procédure indiquée dans la référence 12, les moments cinétiques de l'état fondamental et de l'état excité.

Dans le cas général J_e, J_f , il faudra donc effectuer une nouvelle résolution numérique.

On peut cependant généraliser les résultats précédents dans le cas où la structure fine ou hyperfine est petite comparée à l'énergie caractéristique ΔE_a et à la différence d'énergie entre les sous-niveaux Zeeman. Selon les cas, L ou J seront seuls affectés pendant la collision et l'on obtiendra les taux de transfert entre sous-niveaux Zeeman par un recouplage de moments angulaires à partir des résultats décrits précédemment (9). Les cas intermédiaires où la structure fine ou hyperfine est de l'ordre de ΔE_a ou découplée par le champ exigeront une nouvelle résolution.

6-2-Applications

L'étude expérimentale du déplacement et de l'élargissement des raies optiques en fonction du champ pose essentiellement un problème de résolution. Cependant les techniques développées récemment de spectroscopie à 2 photons sans effet Doppler (¹⁰) pourraient y apporter une solution élégante lorsque la gamme des colorants employés aura été élargie. (Pour des transitions de résonance dipolaires électriques liées au potentiel en R^{-3} il faudrait évidemment employer 3 photons.)

Les quantités les plus aisées à obtenir expérimentalement sont actuellement les taux de transfert entre sous-niveaux Zeeman pour l'ensemble (1+2) des atomes identiques. Une telle étude permet un test du potentiel sur une gamme de champs étendue et fournit donc des méthodes de comparaison avec la théorie beaucoup plus sérieuses qu'une simple évaluation des sections efficaces en champ nul. Cela permet donc en premier lieu de définir pour les collisions résonnantes le domaine de validité du potentiel dipôle-dipôle en R^{-3} . On peut également évaluer l'ordre de grandeur des contributions aux taux de transfert des termes suivants du potentiel puisque l'effet du dipôle-dipôle est très diminué en champ fort. Ces termes d'ordre supérieur provenant de l'effet des autres niveaux des atomes et des effets d'échange ont une contribution en champ nul faible et varient peu avec le champ dans la région où la contribution du dipôle-dipôle varie beaucoup. En champ fort, leur poids relatif aura donc augmenté.

6-3-Ordre de grandeur des énergies caractéristiques pour quelques éléments

Les effets du champ sur le transfert par collision deviennent importants pour des valeurs de la fréquence de Larmor de l'ordre de ω_a correspondant à τ de l'ordre de 1. Les valeurs du champ magnétique nécessaires à l'obtention d'effets appréciables sont donc définies par

$$B_a \approx \omega_a / g_J \mu_B$$

où g_J est le facteur de Landé du niveau considéré.

L'expression du champ critique est ainsi :

$$B_a = 0,398 \cdot 10^{10} \cdot g_J^{-1} \left[\left(\frac{T}{M} \right)^{3/2} \frac{1}{\Gamma \lambda^3} \right]^{1/2} \quad (15)$$

où B_a est en kG, M est la masse atomique de l'élément considéré en grammes et λ est la longueur d'onde de la raie de résonance exprimée en Å. Nous avons pris pour valeur de v avec cette définition :

$$v = u = \left(\frac{2kT}{m} \right)^{1/2}$$

où m est la masse réduite des atomes identiques.

L'ordre de grandeur de B_a est donné ci-dessous à $T = 300^\circ\text{K}$ pour les niveaux de résonance de quelques éléments.

Pour le mercure ($6^3P_1 - \lambda = 2537 \text{ \AA}$) le champ critique est de l'ordre de 10 kG, et de 1,7 kG pour le mercure dans le niveau 6^1P_1 ($\lambda = 1849 \text{ \AA}$). Cela est confirmé dans le premier cas par une étude expérimentale récente (3). Le cas du Cadmium ($5^3P_1 - \lambda = 2288 \text{ \AA}$) paraît aussi très favorable. Le champ critique est de l'ordre de 2 kG. Par contre, le Cadmium dans le niveau 5^3P_1 exigerait des champs de l'ordre de 45 kG. Dans ce cas la force d'oscillateur de la transition est faible et la partie la plus importante de la section efficace de collision en champ nul provient des interactions non résonnantes.

De nombreuses autres études pourraient être faites avec des champs compris entre 1 et 100 kG. Citons par exemple celle des collisions résonnantes sur les niveaux (3p) du Sodium qui est en cours (15). Ce cas ne relève pas du traitement théorique précédent puisque la structure fine des niveaux doit être traitée au même titre que l'effet du champ magnétique. Cependant, bien que la situation soit compliquée on peut estimer par le modèle précédent l'ordre de grandeur des champs nécessaires à 6 kG. De fait l'étude expérimentale du transfert d'excitation entre les sous-niveaux Zeeman du niveau $P_{1/2}$ montre qu'il existe une variation importante du transfert avec le champ dès cette valeur.

Une des limitations expérimentales de ces études du transfert d'excitation pour les collisions résonnantes est l'existence de la diffusion multiple du rayonnement de résonance, phénomène important dès que les collisions sont appréciables. Cela entraîne un certain nombre de difficultés qui sont décrites dans la référence 3.

6-4-Résultats de l'étude expérimentale sur le Mercure (6^3P_1).

En l'absence de sources accordables à 2537 Å, l'expérience a dû être réalisée en excitant le sous-niveau Zeeman $m=0$ du niveau 6^3P_1 d'un isotope pair avec une lampe à décharge en champ nul. On étudie le transfert par collisions résonnantes du sous-niveau Zeeman $m=0$ vers les sous-niveaux $m=\pm 1$. Les résultats expérimentaux ⁽³⁾ obtenus concernent donc le coefficient $g^{(11)(00)}$. Les variations expérimentales avec le champ sont de l'ordre d'un facteur 3 entre 0 et 80 kG. La comparaison aux prévisions théoriques révèle un accord satisfaisant sur toute la gamme de champ utilisée dans l'étude. Aux fortes valeurs du champ, l'accord est meilleur lorsque l'on effectue une comparaison avec les valeurs de $g^{(11)(00)}$ moyennées sur la vitesse relative. Les résultats montrent en définitive dans ce cas la validité de la forme de l'interaction adoptée pour décrire les effets des collisions résonnantes dans un domaine de fréquence de 160 GHz et l'absence d'effets notables provenant des termes du potentiel que notre traitement théorique ignore.

L'interprétation des résultats expérimentaux obtenus sur le Sodium ⁽¹⁵⁾ exigera une nouvelle évaluation des taux de transfert selon les méthodes exposées précédemment en tenant compte du découplage de la structure fine que l'on ne peut pas négliger dans ce cas.

7 - CONCLUSIONS

Le traitement théorique que nous venons de donner des effets d'un champ magnétique intense sur les processus de relaxation en phase vapeur,

dans le cas d'atomes identiques en interaction par le potentiel dipôle-dipôle en R^{-3} révèle nombre d'effets nouveaux dont une grande partie se situe au-delà des possibilités de vérifications expérimentales actuelles.

Les résultats théoriques essentiels sont les suivants :

En présence du champ, la relaxation n'est plus isotrope. Il apparaît par exemple que la description de la relaxation ou du transfert des multipôles d'ordre k de l'état excité des atomes nécessite dans le cas général la connaissance de $(k+1)$ constantes qui ne sont pas reliées entre elles de manière simple. En l'absence de champ, une seule constante g^k suffit. On prévoit également l'existence d'un terme de couplage $g_0^{20}(i)$ entre l'alignement et la population dont la mise en évidence suppose que l'on puisse par une méthode quelconque séparer les atomes de classes 1 et 2. Un peuplement isotrope éventuel de l'état excité des atomes 1 par un terme source extérieur serait suivi de l'apparition pour les deux classes d'atomes d'un alignement de l'état excité.

La mise en évidence par résonance magnétique d'effets de ce type est difficile dans la mesure où les champs intenses disponibles sont en général très inhomogènes. Il sera donc difficile de mettre en évidence expérimentalement la plupart des effets révélant l'anisotropie de la relaxation des composantes transverses des observables de l'état excité.

Il apparaît une partie imaginaire dans les coefficients de relaxation ou de transfert. Ces termes traduisent un déplacement des raies de résonance magnétique ou optique selon le cas. Ceci peut être considéré comme une des manifestations du caractère non résonnant des processus en présence du champ qui lève la dégénérescence de rotation de l'état excité.

Enfin les taux de relaxation ou de transfert par collision dépendent de la valeur du champ ce qui traduit le couplage plus ou moins grand du moment cinétique \vec{J} de l'état excité avec le champ au cours de la collision. A la limite des très grandes valeurs du champ, les collisions perturbent faiblement l'état de l'ensemble des deux atomes bien que le transfert

de l'excitation entre les atomes subsiste en raison de l'existence de sous-niveaux Zeeman possédant la même énergie. Mais dans ces conditions, il n'existe plus de dépolarisation par collisions et les taux de transfert entre sous-niveaux Zeeman différents tendent vers 0. De ce point de vue, l'évolution de l'état excité des atomes est quasi-adiabatique sous l'action du seul champ magnétique (limite $\omega.T_c \gg 1$).

Le mode de décroissance des taux de transfert avec la valeur du champ est d'autre part directement lié à la forme adoptée pour l'interaction. Cet aspect permet une comparaison intéressante avec les résultats expérimentaux. De plus, la valeur de l'écart d'énergie entre les sous-niveaux Zeeman peut être continûment modifiée de sorte que les comparaisons théorie-expérience ne sont plus limitées à un seul point. Ceci permet une comparaison beaucoup plus précise entre les effets attendus et les effets observés.

Enfin, le calcul de chaque collision particulière révèle que plus le champ croît, plus la région importante pour l'évaluation du taux de transfert se déplace vers les petits paramètres d'impact (cf. FIG 3 par exemple). Cela signifie que l'on peut par cette méthode tester des régions des courbes de potentiel inaccessibles dans les conditions normales en éliminant graduellement la contribution à longue distance au transfert. Une présentation équivalente est de dire que pour des valeurs croissantes du champ, on sera sensible de plus en plus à la contribution aux taux de transfert des collisions pour lesquelles la condition $\omega.T_c(v) \ll 1$ est réalisée, c'est-à-dire aux collisions pour lesquelles la vitesse relative est grande et où les atomes ont une grande probabilité d'effectuer des collisions à courte distance. On réalise ainsi de manière indirecte une sélection sur le module de la vitesse relative des atomes. Cet aspect est intimement lié à l'existence d'anisotropies de la relaxation. L'existence d'anisotropies signifie que dans la vapeur où la distribution des vitesses est supposée isotrope, l'action du champ est de donner un plus grand poids à certaines orientations des plans de collisions. On peut ainsi montrer que les situations où le plan de collision contient le champ magnétique jouent un rôle privilégié.

L'idée essentielle est en définitive que pour obtenir le maximum d'informations sur les processus en phase vapeur, il faut briser la symétrie sphérique de la relaxation qui masque les résultats les plus importants. Un champ magnétique intense appliqué sur le système peut ainsi, dans certains cas, révéler des effets nouveaux directement liés aux caractéristiques des courbes de potentiel ⁽⁸⁾.

◆◆◆◆◆◆◆◆◆◆

★ REFERENCES ★

- (1) OMONT A. and MEUNIER J. : Phys. Rev. 169, 92 (1968)
 DYAKHONOV M.I. et PEREL V.I. : Sov. Phys. JETP 21, 227 (1965)
 BERMAN P.R. et LAMB W.E. : Phys. Rev. 187, 221 (1969) et références
 citées dans cet article
- (2) GAY J.C. : Journal de Physique, 35, 813 (1974)
- (3) GAY J.C. et SCHNEIDER W.B. : Journal de Physique Lettres, 36
 L-185 (1975)
- (4) On adopte pour les rotations les notations de
 MESSIAH A. - Mécanique quantique - Dunod (Paris)
- (5) GERJUOY E. - Case studies in Atomic Physics 3,1 (1972)
- (6) OMONT A. : à paraître, Progress in Quantum Electronics (1976)
 GAY J.C. : Thèse, Paris (1976), à paraître
- (7) LOMBARDI M. : Thèse, Grenoble (1969)
 Journal de Physique, 30, 631 et 789 (1969)
- (8) GAY J.C. : Lettres au Journal de Physique, 36 L 239 (1975)
 GAY J.C. : en préparation (Journal de Physique)
- (9) OMONT A. : Thèse, Paris (1967)
- (10) FRIEDBERG R., HARTMANN S.R., MANASSAH J.T. : Physics Reports
3, 101 (1973)
- (11) TSAO C.J. et CURNUTTE B. : J.Q.S.R.T., 2, 41 (1962)
- (12) CARRINGTON C.G., STACEY D.N. and COOPER J. : J. Phys. B6, 417 (1973)
- (13) CAGNAC B., GRYNBERG G. et BIRABEN F. : J. de Physique 34, 845 (1973)
- (14) OMONT A. : J. de Physique 26, 26 (1965)
 BYRON F.W. and FOLEY H.M. : Phys. Rev., 134 A, 625 (1964)
- (15) SCHNEIDER W.B. and GAY J.C. : soumis à Z. Für Physik

★ LEGENDE DES FIGURES ★

FIG 1 - Définition des axes (oxyz) associés à la collision $(\varphi, \theta, \gamma)$. La ligne pointillée représente la trajectoire de l'atome pendant la collision.

FIG 2 - Forme des niveaux d'énergie adiabatiques du système antisymétrique dans l'échange (unités d'énergie arbitraires) pour une valeur et une orientation du champ par rapport aux axes de collision $(\theta = \frac{\pi}{2}, \varphi = \frac{\pi}{4})$.
L'échelle est linéaire en $\psi = \text{Arc tg } x$. Pour $\psi = \pm \frac{\pi}{2}$, les états propres correspondants sont les états standard dans la direction de \vec{H} . L'absence de symétrie des niveaux d'énergie par rapport à $\psi = 0$ provient de la non invariance du système par renversement du temps.

FIG 3 - Probabilité de transfert ($i = 1+2$) entre les sous-niveaux Zeeman $m = 0$ et $m = 1$ en fonction de $q \propto b^{-2}$ pour différentes valeurs de τ .

FIG 4 - Taux de relaxation $K^{(mp)(mp)}_{(1)}$ de l'atome 1 en fonction de τ .
a) $K^{(00)(00)}_{(1)}$ b) $K^{(10)(10)}_{(1)}$ R c) $K^{(1-1)(1-1)}_{(1)}$ R
d) $K^{(11)(11)}_{(1)}$ e) $K^{(1-1)(1-1)}_{(1)}$ I f) $K^{(10)(10)}_{(1)}$ I

FIG 5 - Taux de transfert $K^{(mm)(pp)}_{(i)}$ pour les atomes 1 et 2. Pour $i=2$, on a changé de signe les coefficients.
a) $-K^{(11)(00)}_{(2)}$ b) $-K^{(11)(-1-1)}_{(2)}$ c) $K^{(11)(-1-1)}_{(1)}$
d) $K^{(11)(00)}_{(1)}$

FIG 6 - Taux $K^{(mp)(mp)}_{(2)}$ de l'atome 2. Les coefficients sont changés de signe excepté $K^{(10)(10)}_{(2)}$ R
a) $-K^{(00)(00)}_{(2)}$ b) $-K^{(11)(11)}_{(2)}$ c) $K^{(10)(10)}_{(2)}$ R
d) $-K^{(1-1)(1-1)}_{(2)}$ R e) $-K^{(10)(10)}_{(2)}$ I

FIG 7 - Taux de relaxation pour $i = 1+2$. L'échelle vers le haut est différente de l'échelle vers le bas

$$\begin{array}{lll} \text{a) } K^{(10)(10)}_{(1+2)} R & \text{b) } K^{(1-1)(1-1)}_{(1+2)} R & \text{c) } K^{(00)(00)}_{(1+2)} R \\ \text{d) } K^{(11)(11)}_{(1+2)} & \text{e) } K^{(10)(10)}_{(1+2)} I & \text{f) } K^{(1-1)(1-1)}_{(1+2)} I \end{array}$$

FIG 8 - Taux de transfert des populations (changés de signes) et de la cohérence $\Delta m = 1$ pour $i = 1+2$.

$$\text{a) } -K^{(11)(00)}_{(1+2)} \quad \text{b) } -K^{(11)(-1-1)}_{(1+2)} \quad \text{c) } K^{(10)(0-1)}_{(1+2)} R$$

FIG 9 - Elargissement et déplacement des raies optiques

$$\begin{array}{lll} \text{a) } {}_{ef}K^{(00)}_{(1+2)} R & \text{b) } {}_{ef}K^{(-1-1)}_{(1+2)} R & \text{c) } {}_{ef}K^{(11)}_{(1+2)} R \\ \text{d) } {}_{ef}K^{(11)}_{(1+2)} I & \text{e) } {}_{ef}K^{(00)}_{(1+2)} I & \text{f) } {}_{ef}K^{(-1-1)}_{(1+2)} I \end{array}$$

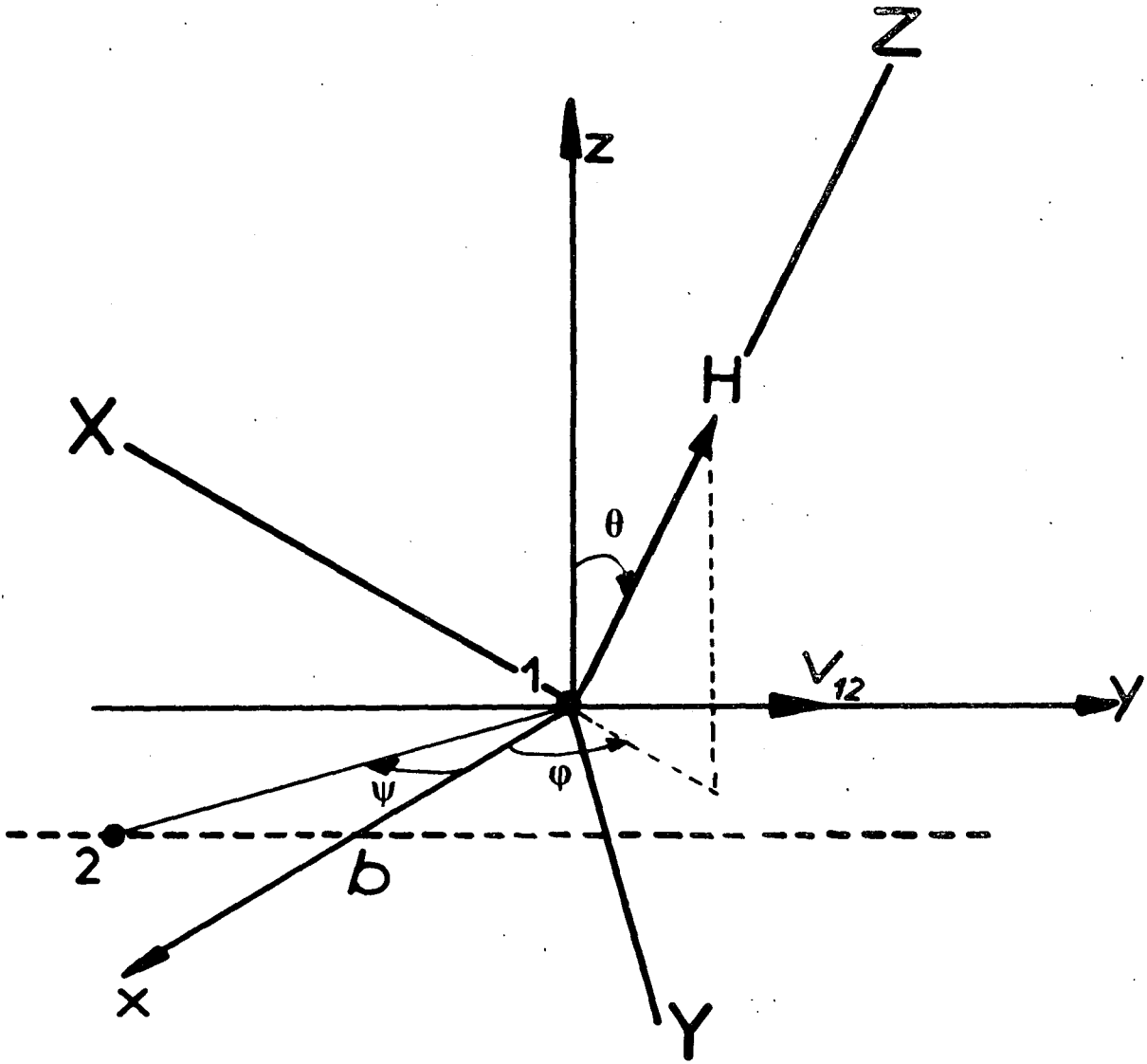
* LEGENDE DES TABLEAUX *

TABLEAU 1 - Coefficients $K^{(mm')}(pp')_{(1)}$ définis par les relations (13) et (14) en fonction de τ (proportionnel à $B.v^{-3/2}$). Les lettres R et I suivant les coefficients en désignent la partie réelle et imaginaire.

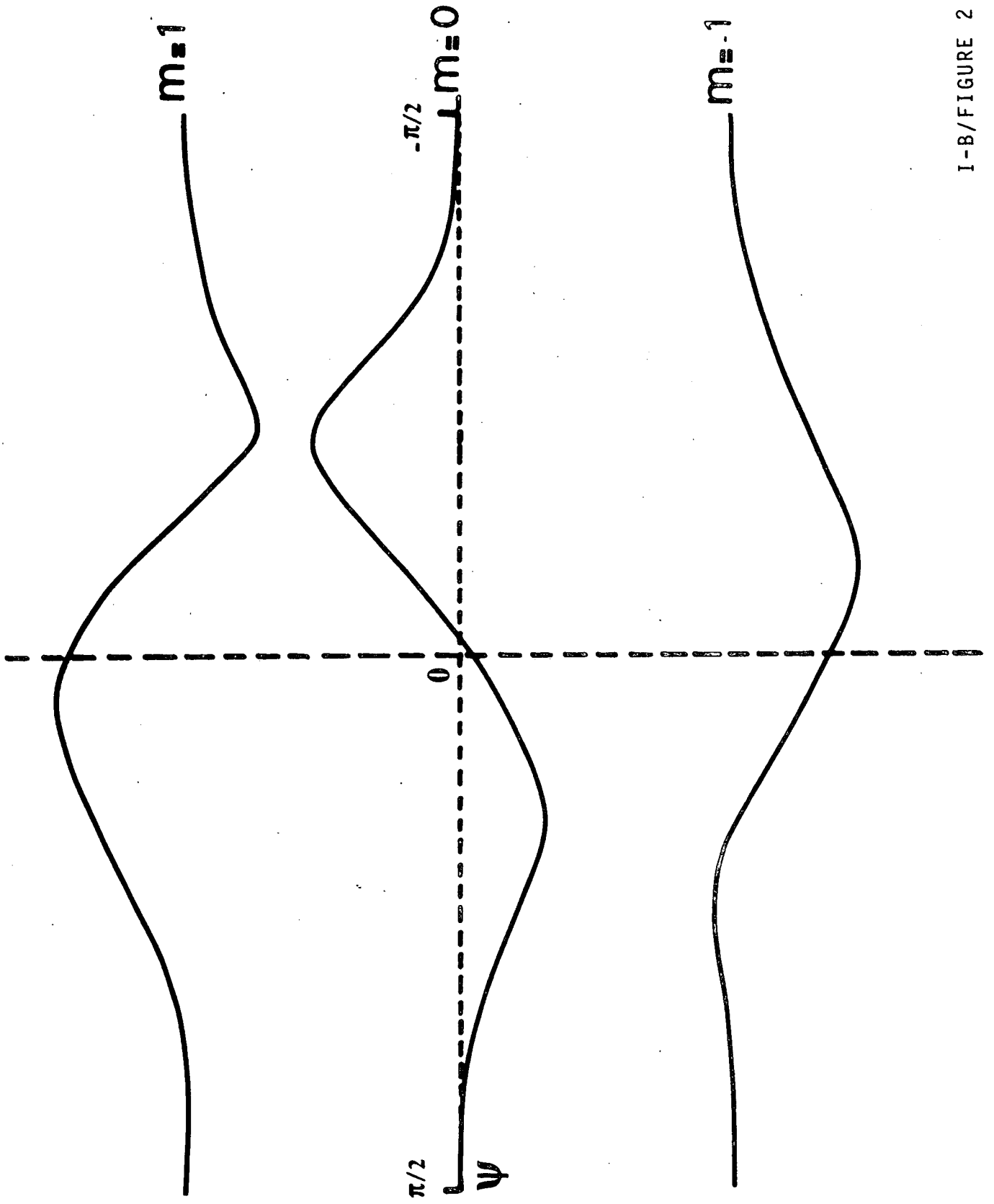
TABLEAU 2 - Coefficients $K^{(mm')}(pp')_{(2)}$

TABLEAU 3 - Coefficients $K^{(mm')}(pp')_{(1+2)}$

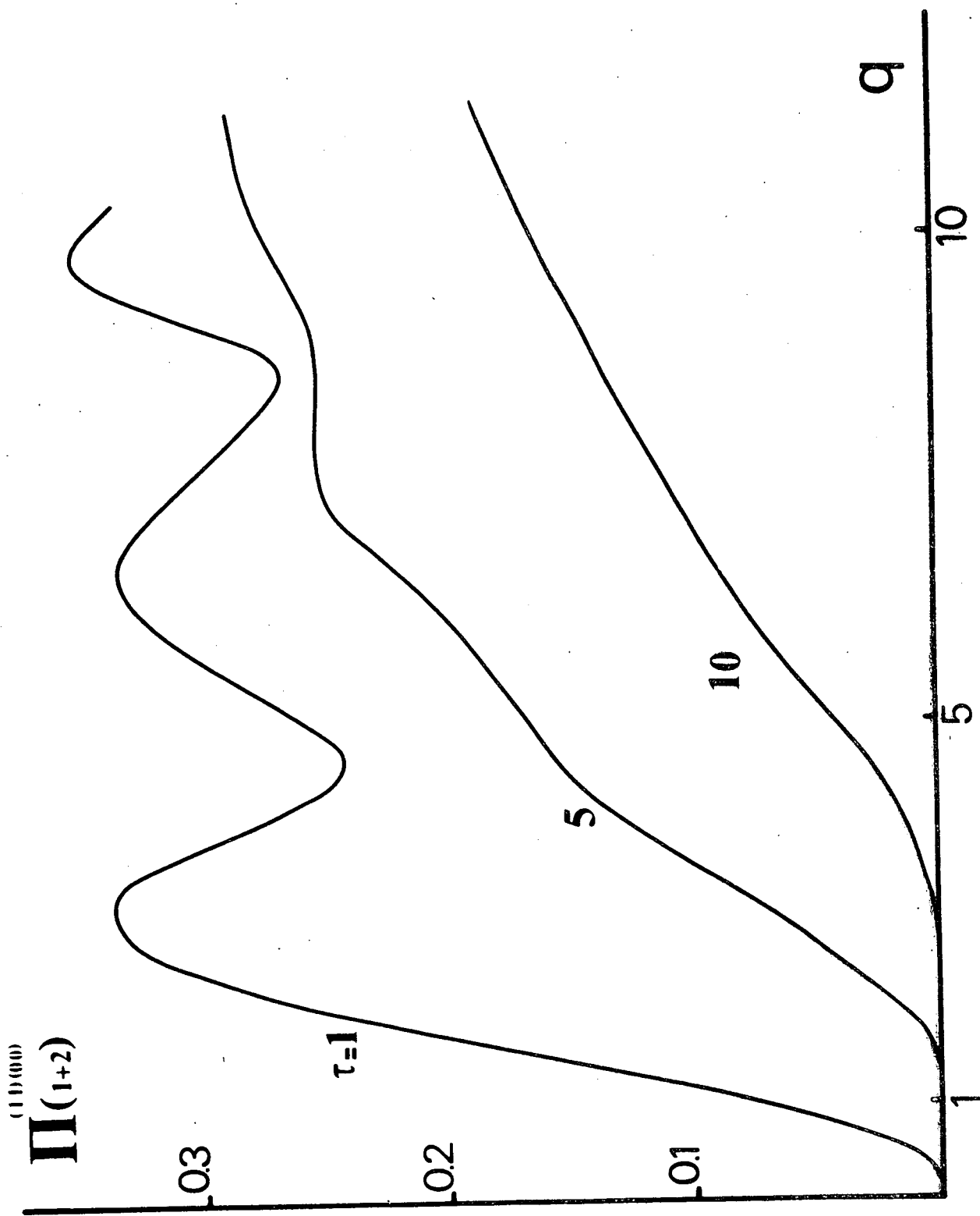
TABLEAU 4 - Coefficients ${}_{ef}K^{(mm)}(i)$ pour $i = 1, 2, 1+2$ pour le dipôle optique.

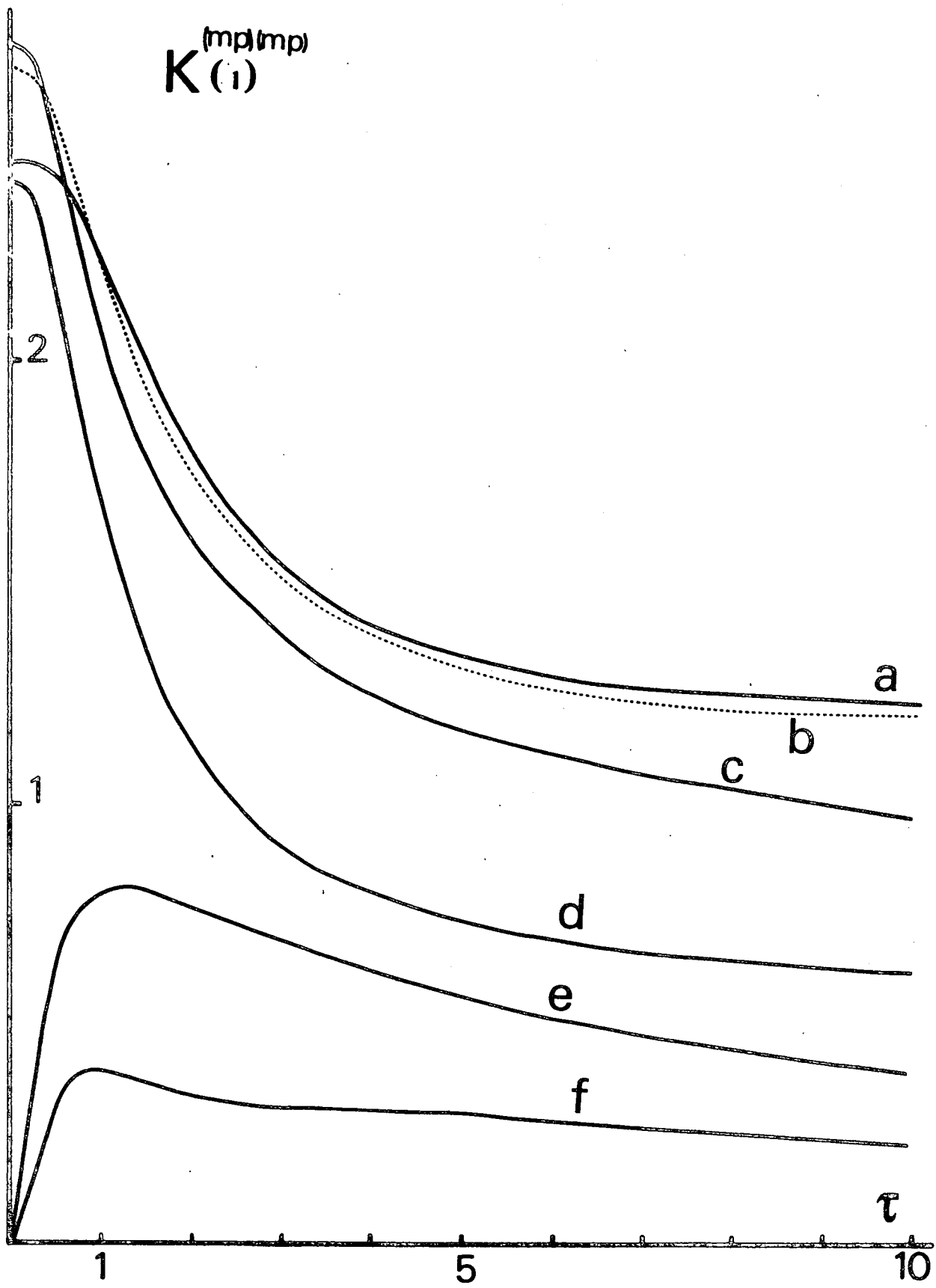


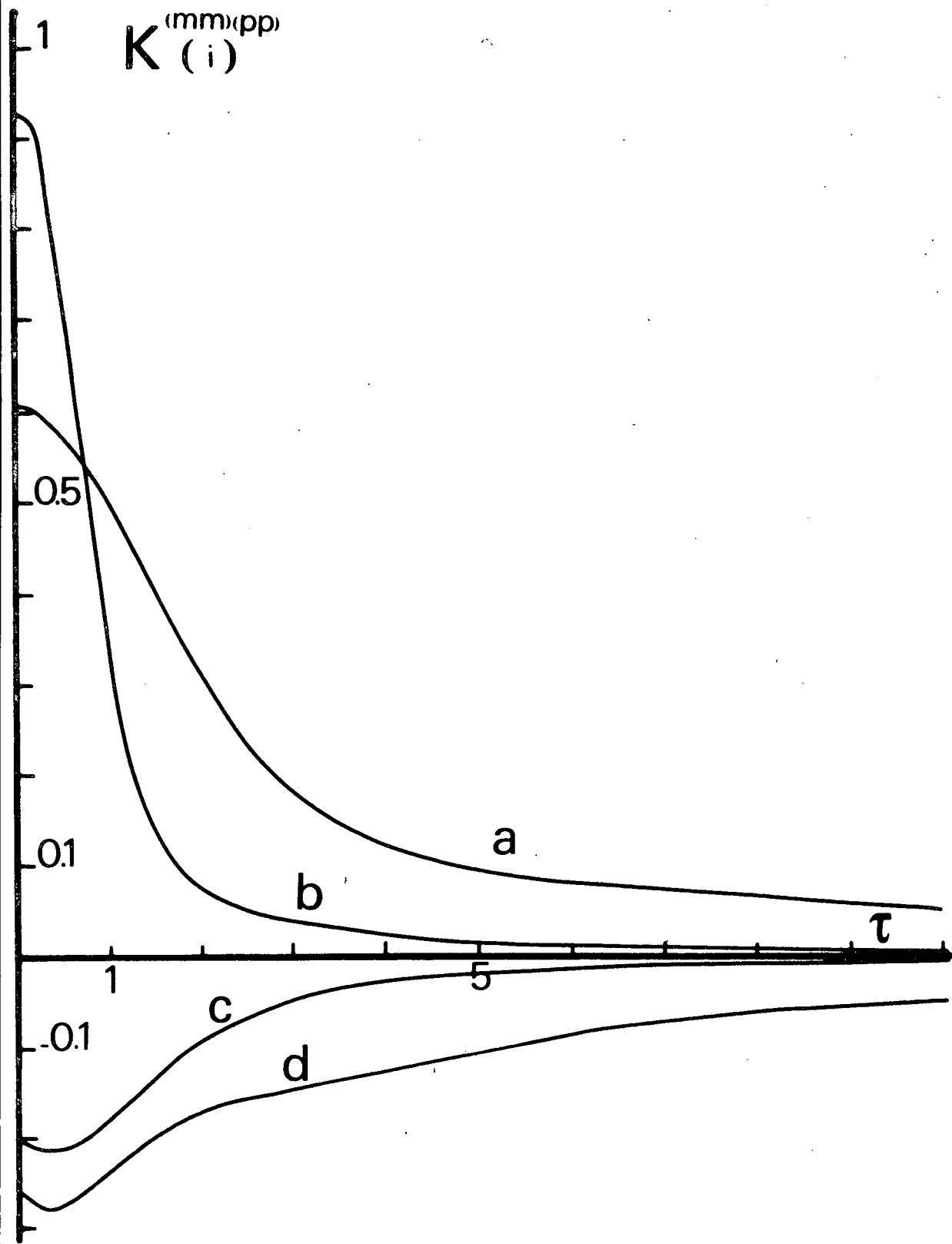
I-B/FIGURE 1

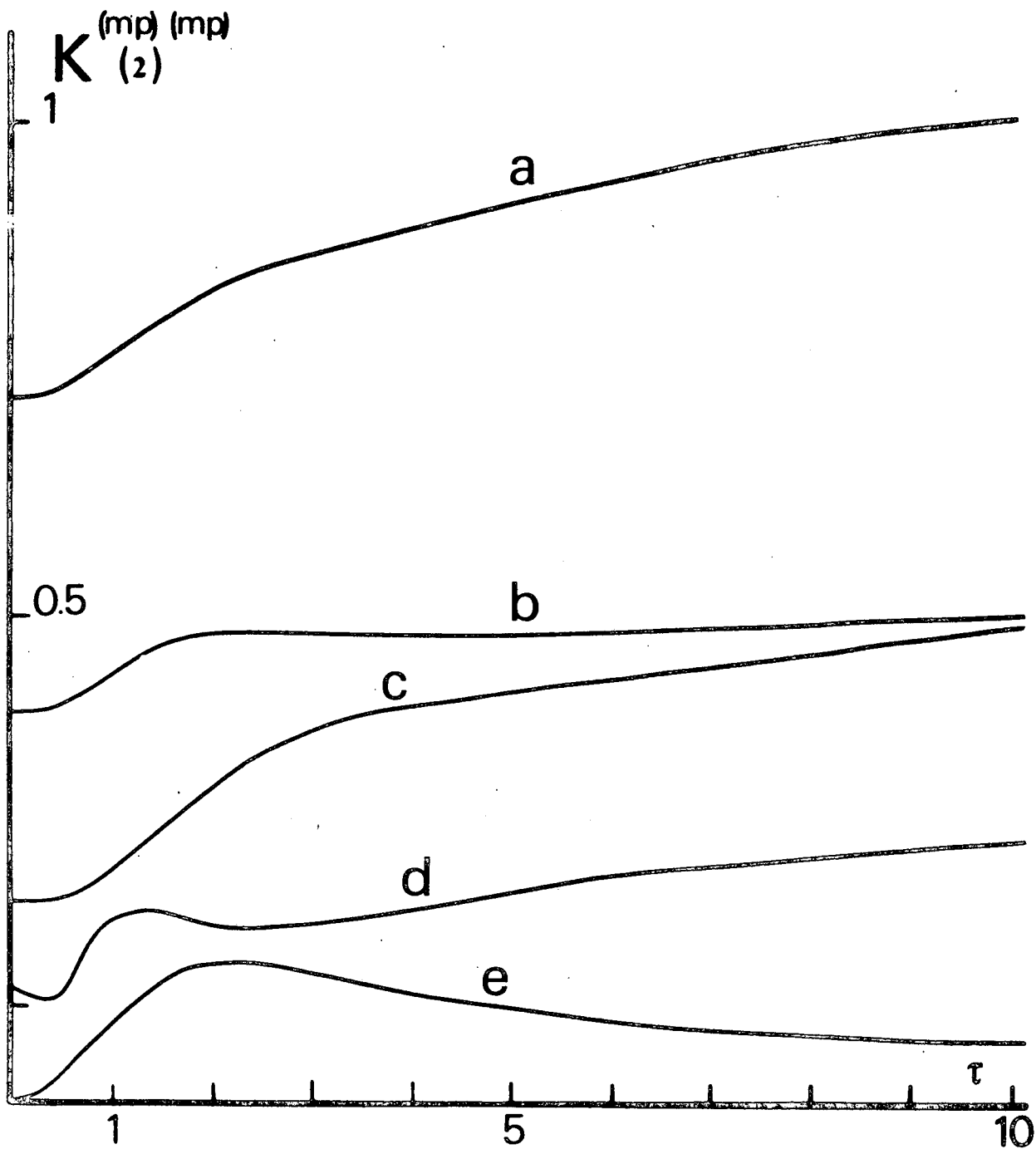


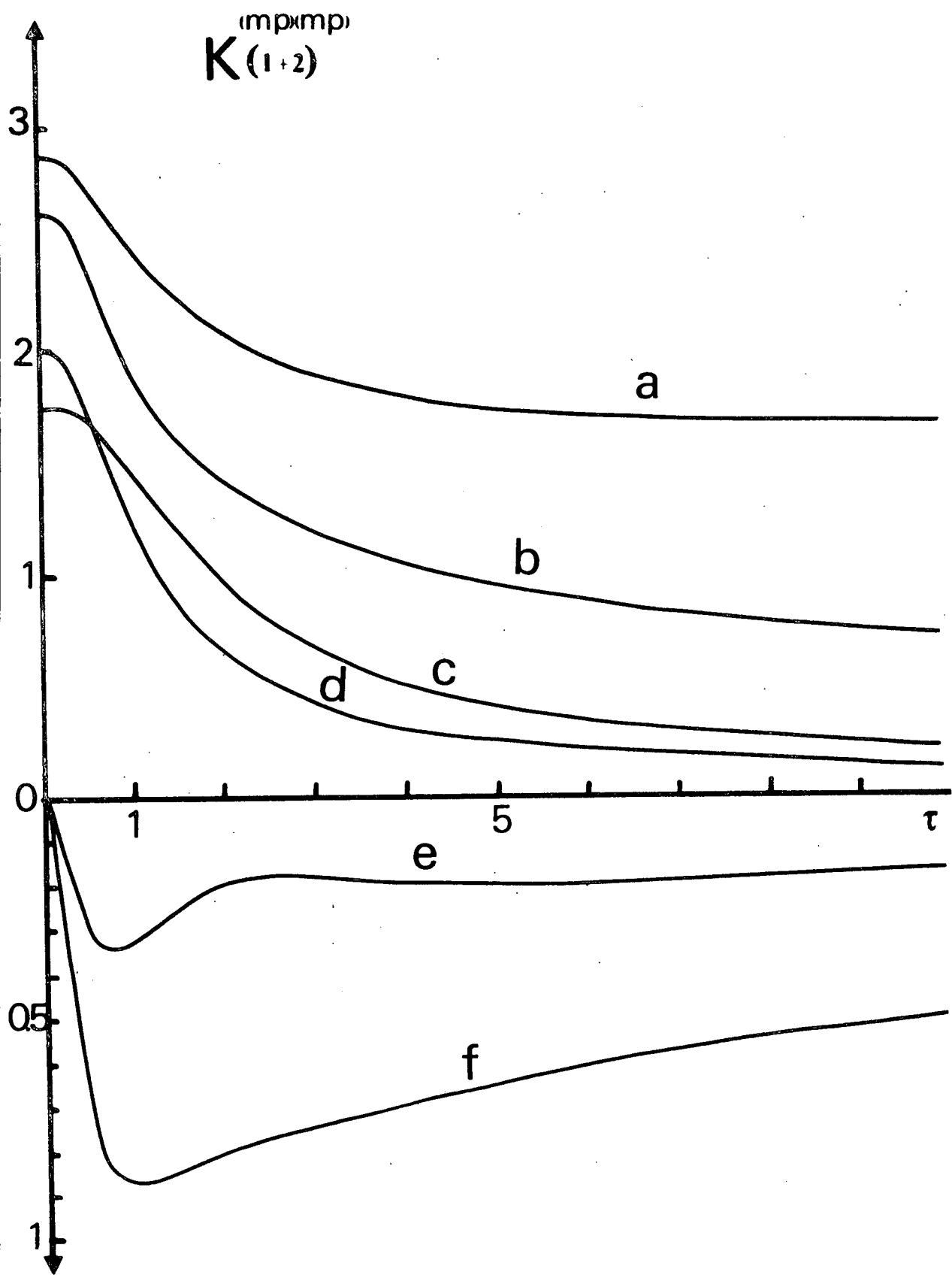
I-B/FIGURE 2



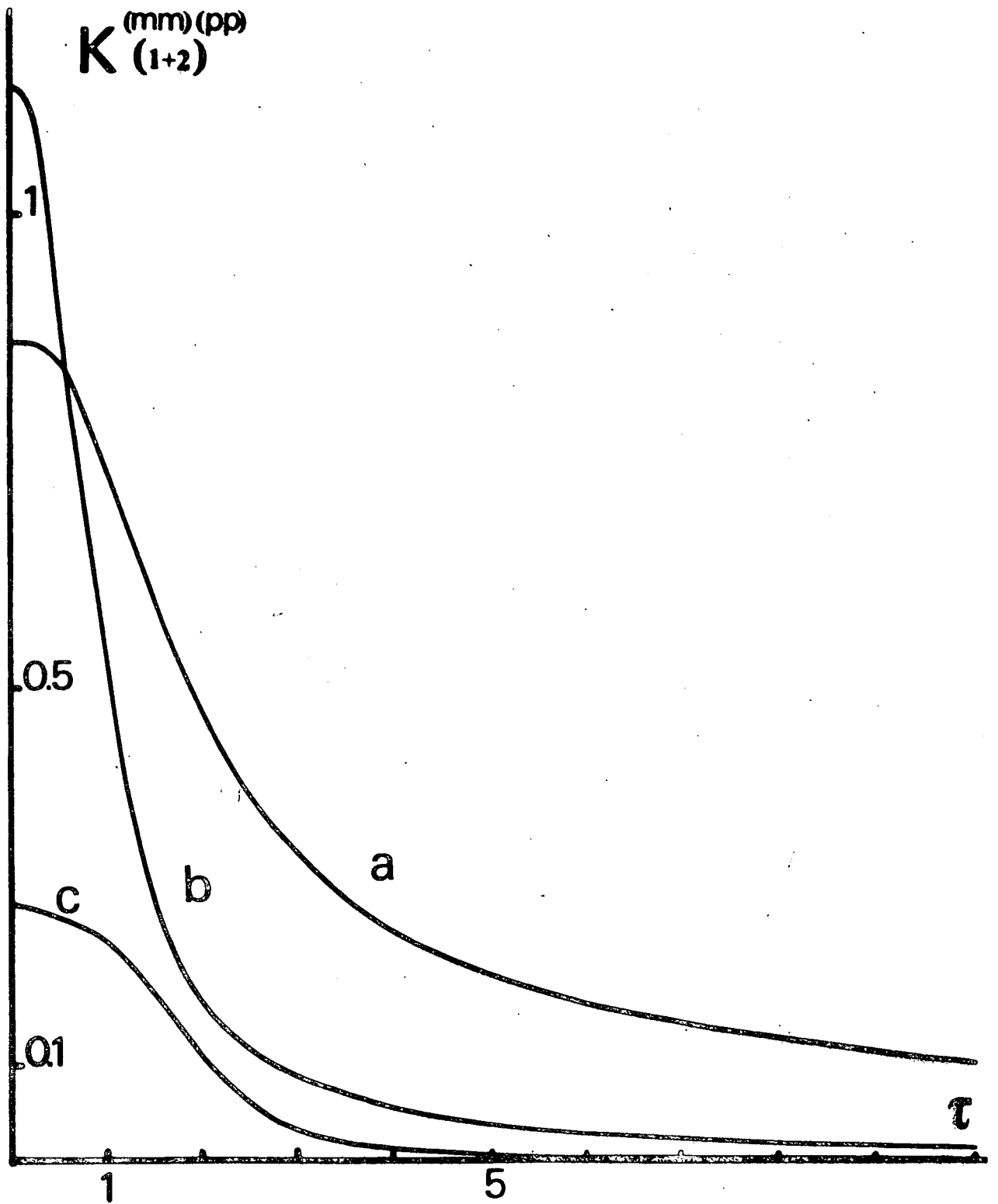




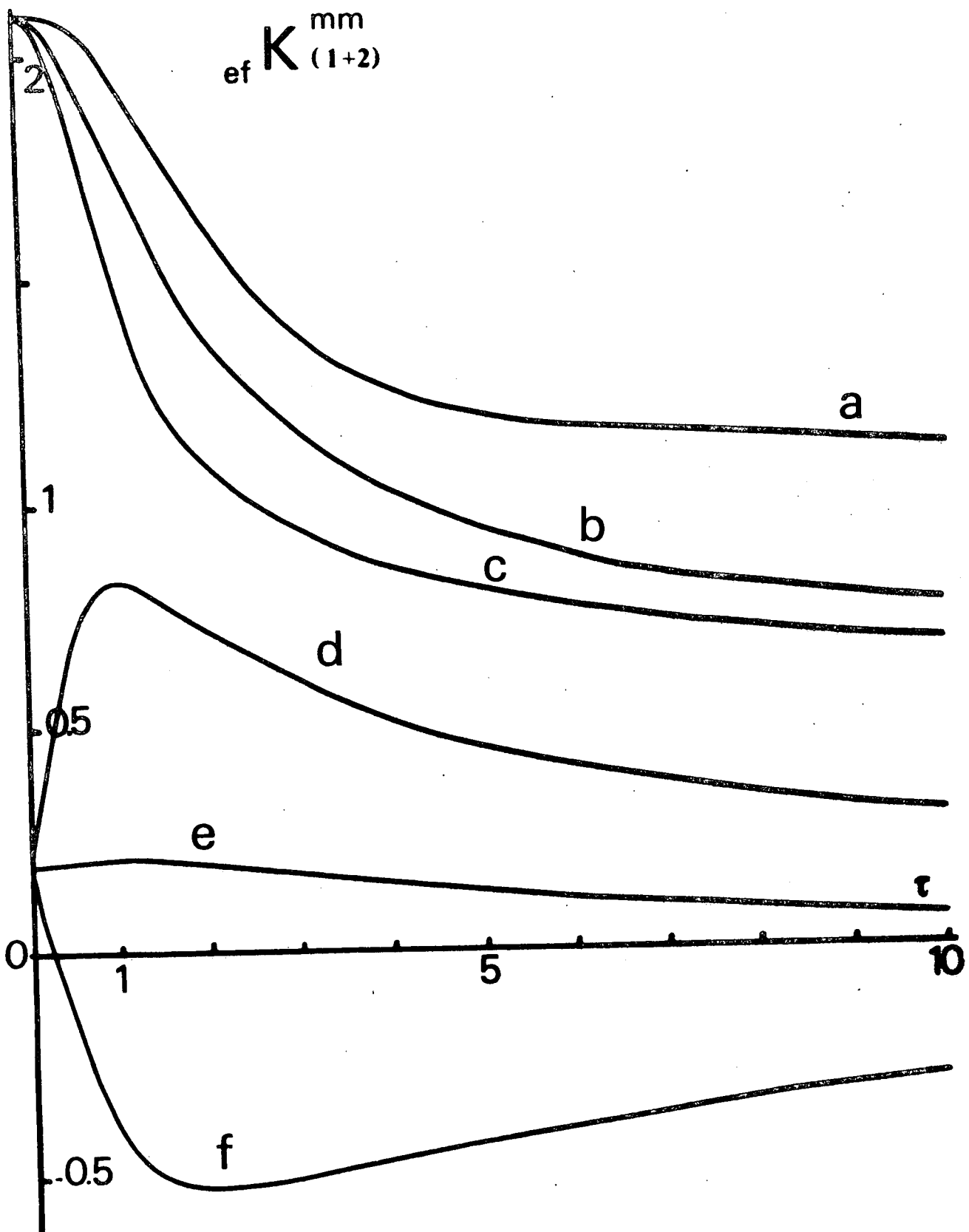




I-B/FIGURE 7



I-B/ FIGURE 8



I-B/ FIGURE 9

τ	$(11)(11)$	$(11)(00)$	$(11)(-11)$	$(00)(00)$	$(10)(0-1)R$	$(10)(0-1)I$	$(10)(10)R$	$(10)(10)I$	$(1-1)(1-1)R$	$(1-1)(1-1)I$
0	2.41	-0.26	-0.21	2.46	-0.05	0	2.66	0	2.71	0
0.5	2.16	-0.27	-0.21	2.43	-0.07	0.03	2.53	0.33	2.51	0.62
0.7	1.96	-0.26	-0.20	2.35	-0.06	0.04	2.40	0.38	2.32	0.74
1	1.68	-0.23	-0.17	2.23	-0.05	0.04	2.21	0.40	2.06	0.80
1.5	1.34	-0.19	-0.13	1.99	-0.05	0.05	1.94	0.36	1.78	0.80
2	1.13	-0.17	-0.09	1.79	-0.04	0.04	1.75	0.34	1.60	0.76
3	0.90	-0.15	-0.05	1.53	-0.02	0.03	1.51	0.32	1.38	0.68
4	0.79	-0.13	-0.03	1.40	-0.01	0.03	1.38	0.31	1.24	0.61
5	0.72	-0.11	-0.02	1.33	0	0.03	1.30	0.30	1.16	0.55
6	0.69	-0.09	-0.02	1.28	0	0.02	1.26	0.28	1.10	0.51
7	0.66	-0.07	-0.01	1.26	0	0.02	1.23	0.27	1.05	0.47
8.5	0.64	-0.06	-0.01	1.24	0	0.01	1.21	0.25	1.00	0.42
10	0.62	-0.05	-0.01	1.22	0	0	1.20	0.23	0.97	0.39
20	0.59	-0.03	-0.01	1.17	0	0	1.16	0.13	0.86	0.27
∞	0.58	0	0	1.16	0	0	1.16	0	0.58	0

TABLEAU 1

τ	$(11)(11)$	$(11)(00)$	$(11)(-1-1)$	$(00)(00)$	$(10)(0-1)R$	$(10)(0-1)I$	$(10)(10)R$	$(10)(10)I$	$(1-1)(1-1)R$	$(1-1)(1-1)I$
0	-0.40	-0.61	-0.93	-0.72	0.32	0	0.21	0	-0.12	0
0.5	-0.41	-0.57	-0.70	-0.73	0.32	-0.04	0.21	-0.03	-0.11	0.08
0.7	-0.42	-0.55	-0.53	-0.74	0.31	-0.07	0.22	-0.05	-0.16	0.09
1	-0.44	-0.50	-0.33	-0.77	0.28	-0.10	0.24	-0.09	-0.20	0.07
1.5	-0.47	-0.40	-0.14	-0.80	0.22	-0.11	0.28	-0.12	-0.20	0.03
2	-0.48	-0.31	-0.08	-0.83	0.15	-0.10	0.33	-0.14	-0.18	0.04
3	-0.48	-0.18	-0.04	-0.87	0.06	-0.07	0.38	-0.13	-0.19	0.06
4	-0.48	-0.12	-0.03	-0.89	0.02	-0.04	0.41	-0.11	-0.19	0.08
5	-0.48	-0.10	-0.02	-0.92	0.01	-0.02	0.42	-0.09	-0.22	0.10
6	-0.49	-0.08	-0.02	-0.94	0	-0.02	0.43	-0.08	-0.23	0.09
7	-0.49	-0.07	-0.01	-0.96	0	-0.01	0.45	-0.08	-0.24	0.10
8.5	-0.49	-0.06	-0.01	-0.99	-0.01	-0.01	0.47	-0.07	-0.25	0.11
10	-0.50	-0.05	-0.01	-1.01	-0.01	-0.01	0.49	-0.06	-0.27	0.11
20	-0.52	-0.03	-0.01	-1.05	0	0	0.53	-0.05	-0.33	0.11
∞	-0.58	0	0	-1.16	0	0	0.58	0	-0.58	0

TABLEAU 2

τ	$K_{ee}(1+2)$																			
0	(11)(11)	2.00	-0.87	-1.14	1.73	0.27	0	2.87	0	2.60	0									
0.5	(11)(11)	1.75	-0.85	-0.91	1.69	0.26	-0.02	2.75	0.30	2.40	0.70									
0.7	(11)(11)	1.54	-0.81	-0.73	1.61	0.25	-0.04	2.62	0.33	2.16	0.83									
1	(11)(11)	1.23	-0.73	-0.50	1.47	0.24	-0.05	2.44	0.31	1.87	0.87									
1.5	(11)(11)	0.87	-0.60	-0.27	1.19	0.18	-0.06	2.23	0.24	1.59	0.83									
2	(11)(11)	0.65	-0.48	-0.17	0.96	0.11	-0.06	2.08	0.20	1.42	0.80									
3	(11)(11)	0.42	-0.33	-0.09	0.67	0.04	-0.03	1.90	0.18	1.19	0.74									
4	(11)(11)	0.31	-0.25	-0.06	0.51	0.01	-0.01	1.79	0.20	1.05	0.69									
5	(11)(11)	0.24	-0.20	-0.04	0.41	0.01	0.01	1.72	0.20	0.94	0.65									
6	(11)(11)	0.20	-0.17	-0.03	0.34	0	0.01	1.69	0.20	0.87	0.60									
7	(11)(11)	0.17	-0.15	-0.03	0.30	0	0.01	1.68	0.19	0.81	0.57									
8.5	(11)(11)	0.14	-0.12	-0.02	0.25	0	0	1.67	0.18	0.75	0.53									
10	(11)(11)	0.12	-0.11	-0.02	0.21	0	0	1.68	0.17	0.70	0.50									
20	(11)(11)	0.07	-0.06	-0.01	0.12	0	0	1.69	0.08	0.53	0.38									
∞	(11)(11)	0	0	0	0	0	0	1.73	0	0	0									

TABLEAU 3

τ	$\rho_{(1)}^{+K}(\tau)$	$\rho_{(1)}^{+K}(\tau)$	$\rho_{(1)}^{+K}(\tau)$	$\rho_{(1)}^{+K}(\tau)$	$\rho_{(1)}^{+K}(\tau)$	$\rho_{(1)}^{+K}(\tau)$	$\rho_{(1)}^{+K}(\tau)$	$\rho_{(1)}^{+K}(\tau)$	$\rho_{(1)}^{+K}(\tau)$	$\rho_{(1)}^{+K}(\tau)$	$\rho_{(1)}^{+K}(\tau)$	$\rho_{(1)}^{+K}(\tau)$	$\rho_{(1)}^{+K}(\tau)$	$\rho_{(1)}^{+K}(\tau)$	$\rho_{(1)}^{+K}(\tau)$	$\rho_{(1)}^{+K}(\tau)$
0	2.09	0	2.09	0	2.09	0	2.09	0	2.09	0	2.09	0	2.09	0	2.09	0
0.5	1.94	0.43	2.08	-0.04	2.08	-0.04	2.08	-0.04	2.08	-0.04	2.08	-0.04	2.08	-0.04	2.08	-0.04
0.7	1.81	0.54	2.05	-0.09	2.05	-0.09	2.05	-0.09	2.05	-0.09	2.05	-0.09	2.05	-0.09	2.05	-0.09
1	1.64	0.62	1.97	-0.14	1.97	-0.14	1.97	-0.14	1.97	-0.14	1.97	-0.14	1.97	-0.14	1.97	-0.14
1.5	1.39	0.64	1.80	-0.15	1.80	-0.15	1.80	-0.15	1.80	-0.15	1.80	-0.15	1.80	-0.15	1.80	-0.15
2	1.24	0.62	1.63	-0.14	1.63	-0.14	1.63	-0.14	1.63	-0.14	1.63	-0.14	1.63	-0.14	1.63	-0.14
3	1.05	0.55	1.39	-0.11	1.39	-0.11	1.39	-0.11	1.39	-0.11	1.39	-0.11	1.39	-0.11	1.39	-0.11
4	0.95	0.49	1.27	-0.09	1.27	-0.09	1.27	-0.09	1.27	-0.09	1.27	-0.09	1.27	-0.09	1.27	-0.09
5	0.87	0.44	1.20	-0.07	1.20	-0.07	1.20	-0.07	1.20	-0.07	1.20	-0.07	1.20	-0.07	1.20	-0.07
6	0.82	0.40	1.17	-0.06	1.17	-0.06	1.17	-0.06	1.17	-0.06	1.17	-0.06	1.17	-0.06	1.17	-0.06
7	0.79	0.37	1.15	-0.05	1.15	-0.05	1.15	-0.05	1.15	-0.05	1.15	-0.05	1.15	-0.05	1.15	-0.05
8.5	0.75	0.33	1.13	-0.04	1.13	-0.04	1.13	-0.04	1.13	-0.04	1.13	-0.04	1.13	-0.04	1.13	-0.04
10	0.72	0.30	1.12	-0.04	1.12	-0.04	1.12	-0.04	1.12	-0.04	1.12	-0.04	1.12	-0.04	1.12	-0.04
20	0.64	0.18	1.11	-0.03	1.11	-0.03	1.11	-0.03	1.11	-0.03	1.11	-0.03	1.11	-0.03	1.11	-0.03
∞	0.58	0	1.16	0	1.16	0	1.16	0	1.16	0	1.16	0	1.16	0	1.16	0

TABLEAU 4

★ A P P E N D I C E 1 ★

Relation entre les coefficients de relaxation dans les deux bases de l'espace de Liouville

Les relations entre les coefficients de relaxation $\Pi_q^{kk'}(i)$ et $\Pi^{(rr')}(pp')(i)$ dans les deux bases de l'espace de Liouville définies dans le texte sont exprimées par la formule :

$$\Pi^{(rr')}(pp')(i) = \sum_{\substack{kq \\ k'q'}} (-)^{r'+p'} \langle 1|r-r'|k'q' \rangle \langle 1|p-p'|kq \rangle \Pi_q^{k'k}(i)$$

Compte tenu des relations de symétrie (9) et (10), on obtient alors explicitement :

$$\Pi^{(11)}(00) = \frac{1}{3} \Pi_0^{00} - \frac{1}{3\sqrt{2}} \Pi_0^{20} - \frac{1}{3} \Pi_0^{22}$$

$$\Pi^{(11)}(-1-1) = \frac{1}{3} \Pi_0^{00} + \frac{\sqrt{2}}{3} \Pi_0^{20} + \frac{1}{6} \Pi_0^{22} - \frac{1}{2} \Pi_0^1$$

$$\Pi^{(10)}(0-1) = \frac{1}{2} \Pi_1^1 - \frac{1}{2} \Pi_1^2$$

$$\Pi^{(10)}(10) = \frac{1}{2} \Pi_1^1 + \frac{1}{2} \Pi_1^2$$

$$\Pi^{(1-1)}(1-1) = \Pi_2^{22}$$

$$\Pi^{(11)}(11) = \frac{1}{3} \Pi_0^{00} + \frac{\sqrt{2}}{3} \Pi_0^{20} + \frac{1}{6} \Pi_0^{22} + \frac{1}{2} \Pi_0^1$$

$$\Pi^{(00)}(00) = \frac{1}{3} \Pi_0^{00} - \frac{2\sqrt{2}}{3} \Pi_0^{20} + \frac{2}{3} \Pi_0^{22}$$

Lorsque $i = 1+2$, les relations de conservation

$$\forall k \quad \Pi_0^{0k}(1+2) = \Pi_0^{k0}(1+2) = 0$$

se traduisent par

$$\Pi^{(11)(11)} + \Pi^{(11)(00)} + \Pi^{(11)(-1-1)} = 0$$

$$\Pi^{(00)(00)} + 2 \Pi^{(11)(00)} = 0$$

★ A P P E N D I C E 2 ★

Principe du calcul asymptotique des coefficients de relaxation

Nous rappelons le principe et les résultats du calcul de la forme asymptotique des coefficients de relaxation (7).

Les matrices de collision pour les atomes 1 et 2 sont données par les expressions suivantes en se limitant au 2ème ordre de l'interaction :

$$S_1 = 1 - \int_{-\infty}^{+\infty} dx \int_{-\infty}^{+\infty} dx' e^{i\eta J_H x} V(x) e^{-i\eta J_H (x-x')} V(x') e^{-i\eta J_H x'}$$

$$S_2 = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dx e^{i\eta J_H x} V(x) e^{-i\eta J_H x}$$

On effectue ensuite un développement au second ordre en q de la matrice de relaxation, puis la moyenne angulaire sur toutes les orientations possibles de \hat{b} et \hat{v} dans la vapeur.

L'expression des résultats peut s'effectuer à l'aide de la fonction $f_1(\eta)$ introduite par TSAO et CURNUTTE (11) :

$$f_1(\eta) = \frac{\eta^4}{4} [K_2^2(\eta) + 4 K_1^2(\eta) + 3 K_0^2(\eta)]$$

où les $K_l(x)$ sont les fonctions de Bessel modifiées. La relaxation ou le transfert s'expriment directement à partir de $f_1(\eta)$, tandis que le déplacement des raies optiques ou de radiofréquence qui fait intervenir les processus non résonnants à la fréquence η sont décrits par des expressions de la forme :

$$D(\eta) = -\frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{P} \frac{f_1(\omega)}{\omega - \eta} d\omega$$

qui ne peuvent pas se mettre sous une forme analytique simple.

On obtient alors les expressions ci-dessous :

$$\Pi_0^{00}(1) = -\Pi_0^{00}(2) = \frac{8}{270} q^2 [2 + 4 f_1(n) + 4 f_1(2n)]$$

$$\Pi_0^1(1) = \frac{8}{270} q^2 [1 + 3 f_1(n) + 6 f_1(2n)]$$

$$\Pi_{\pm 1}^1(1) = \Pi_{\pm 1}^2 = \frac{8}{270} q^2 \left[\frac{9}{2} f_1(n) + \frac{5}{2} + 3 f_1(2n) \right] \pm i \frac{2q^2}{45} [D(n) + 2 D(2n)]$$

$$\Pi_0^{02}(1) = \Pi_0^{20}(1) = -\Pi_0^{02}(2) = -\Pi_0^{20}(2) = -\frac{8\sqrt{2}}{270} q^2 [1 + f_1(n) - 2 f_1(2n)]$$

$$\Pi_0^2(1) = \frac{8}{270} q^2 [3 + 5 f_1(n) + 2 f_1(2n)]$$

$$\Pi_{\pm 2}^2(1) = \frac{8}{270} q^2 [1 + 3 f_1(n) + 6 f_1(2n)] \pm i \frac{4q^2}{45} [D(n) + 2 D(2n)]$$

$$\Pi_0^1(2) = -\frac{8}{270} q^2 [1 - 6 f_1(2n)]$$

$$\Pi_{\pm 1}^1(2) = \frac{8}{270} q^2 [2 + 3 f_1(n)]$$

$$\Pi_0^2(2) = -\frac{8}{270} q^2 [3 - 4 f_1(n) + 2 f_1(2n)]$$

$$\Pi_{\pm 1}^2(2) = -\frac{8}{270} q^2 [3 f_1(n) - 2]$$

$$\Pi_{\pm 2}^2(2) = -\frac{8}{270} q^2$$

Dans la base dyadique Zeeman les coefficients ont l'expression suivante :

$$\Pi^{(11)(11)}(1) = \frac{8}{270} q^2 [1 + 3 f_1(n) + 6 f_1(2n)]$$

$$\Pi^{(00)(00)}(1) = \frac{8}{270} q^2 [4 + 6 f_1(n)]$$

$$\Pi^{(10)(10)}(1) = \frac{8}{270} q^2 \left[\frac{5}{2} + \frac{9}{2} f_1(n) + 3 f_1(2n) \right] + i \frac{2q^2}{45} [D(n) + 2 D(2n)]$$

$$\Pi^{(1-1)(1-1)}(1) = \frac{8}{270} q^2 [1 + 3 f_1(n) + 6 f_1(2n)] + i \frac{4q^2}{45} [D(n) + 2 D(2n)]$$

$$\Pi^{(11)(00)}(1) = \Pi^{(11)(-1-1)}(1) = \Pi^{(10)(0-1)}(1) = 0$$

$$ef^{\Pi^{(11)}(1)} = ef^{\Pi^{(-1-1)}(1)}^* = \frac{4}{270} q^2 [1 + 3 f_1(\eta) + 6 f_1(2\eta)] + \frac{4q^2}{270} i [3D(\eta) + 6D(2\eta)]$$

$$ef^{\Pi^{(00)}(1)} = \frac{4}{135} q^2 [2 + 3 f_1(\eta)]$$

$$\Pi^{(11)(11)}(2) = -\frac{8}{270} q^2$$

$$\Pi^{(00)(00)}(2) = -\frac{32}{270} q^2$$

$$\Pi^{(10)(10)}(2) = \frac{16}{270} q^2$$

$$\Pi^{(1-1)(1-1)}(2) = -\frac{8}{270} q^2$$

$$\Pi^{(11)(00)}(2) = -\frac{8}{270} q^2 [3 f_1(\eta)]$$

$$\Pi^{(11)(-1-1)}(2) = -\frac{8}{270} q^2 [6 f_1(2\eta)]$$

$$\Pi^{(10)(0-1)}(2) = \frac{8}{270} q^2 [3 f_1(\eta)]$$

$$ef^{\Pi^{(11)}(1)} = ef^{\Pi^{(00)}(2)} = 0$$

La sommation sur le paramètre d'impact de la partie réelle des coefficients peut être faite analytiquement ⁽¹¹⁾. On a en effet des expressions de la forme :

$$\int_0^\beta f_1(\eta) \cdot d\eta = \beta F_1(x)$$

$$\text{avec } F_1(x) = \frac{x^4}{4} [K_3(x) \cdot K_1(x) + 4 K_2(x) \cdot K_0(x) - K_2(x)^2 - K_1(x)^2 - 3 K_0(x)^2]$$

La contribution de la partie imaginaire exige un calcul numérique excepté dans les cas où le développement en puissances de $1/\eta$ de $D(\eta)$ est justifié :

$$D(\eta) \approx \frac{9\pi}{16\eta} \left[1 + \frac{25}{8} \frac{1}{\eta^2} + \left(\frac{35}{8}\right)^2 \frac{3}{2} \frac{1}{\eta^4} + \dots \right]$$

$\eta \gg 1$

★ A P P E N D I C E 3 ★

Approximation séculaire

On fait l'hypothèse que le champ est assez intense pour que la possibilité de transitions entre les sous-niveaux Zeeman soit exclue. Pour une collision définie par \hat{b} , \hat{v} dans l'espace cela signifie qu'au cours de l'évolution les éléments non diagonaux du potentiel auront une action négligeable. L'équation (4) devient alors :

$$P(\varphi, \theta, \gamma, x) \approx q \cdot U_0^2(\varphi, \theta, \gamma, x) \cdot T_0^2 \quad (4')$$

L'évolution de chaque sous-niveau Zeeman s'effectue indépendamment et se restreint donc à un déphasage. Les matrices de collisions obtenues sont diagonales dans la base standard $\{\vec{H}\}$.

Le déphasage subi pendant la collision est proportionnel à :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{U_0^2}{\sqrt{6}}(\varphi, \theta, \gamma, x) \cdot dx = \frac{1}{6} (-2 + \sin^2 \theta (3 + \cos 2\varphi)) = \alpha$$

Le calcul des taux de relaxation dans cette approximation exige une moyenne angulaire sur θ et φ et une sommation sur le paramètre d'impact. La moyenne angulaire peut être faite analytiquement mais conduit à une expression compliquée impossible à sommer sur le paramètre d'impact. C'est pourquoi il est plus judicieux d'effectuer la sommation sur b en premier lieu ; on obtient en utilisant

$$\int_0^{+\infty} \sin^2(\alpha q) \cdot \frac{dq}{q} = \frac{\pi}{2} |\alpha|$$

et en posant

$$\beta = \frac{1}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi} \sin \theta \cdot |\alpha(\varphi, \theta)| \cdot d\theta$$

$$K^{(11)(11)}(1) = -K^{(11)(11)}(2) = \frac{3\sqrt{3}}{4} \pi \beta$$

$$K^{(00)(00)}(1) = -K^{(00)(00)}(2) = \frac{3\sqrt{3}}{2} \pi \beta$$

$$K^{(10)(10)}(1) = \frac{3\sqrt{3}}{2} \pi \beta$$

$$K^{(10)(10)}(2) = \frac{3\sqrt{3}}{4} \pi \beta$$

$$K^{(1-1)(1-1)}(1) = -K^{(1-1)(1-1)}(2) = \frac{3\sqrt{3}}{4} \pi \beta$$

$$ef K^{(11)}(1) = \frac{3\sqrt{3}}{4} \pi \beta$$

$$ef K^{(00)}(1) = \frac{3\sqrt{3}}{2} \pi \beta$$

A cet ordre de l'approximation, les taux de transfert entre sous-niveaux Zeeman sont nuls ainsi que le déplacement des raies optiques et de radiofréquence.

Le paramètre β a été calculé numériquement et vaut :

$$\beta = 0,1415$$

Les valeurs obtenues ainsi sont en très bon accord avec le calcul numérique pour $\tau = 20$ lorsque les coefficients concernés ont atteint leur valeur de saturation.

On peut tenter de raffiner cette approximation en introduisant dans l'expression (4') l'effet de transitions virtuelles vers les autres sous-niveaux Zeeman. Ceci se traduit pour chaque sous-niveau par l'adjonction d'un potentiel supplémentaire en R^{-6} dont l'expression est :

$$V(m=0) = 0$$

$$V(m=\pm 1) = \pm \frac{q}{2\eta} (|U_1^2|^2 + |U_2^2|^2)$$

L'expression du déphasage supplémentaire obtenu est :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} (|U_1^2|^2 + |U_2^2|^2) dx = \frac{3\pi}{16} \left(1 + \frac{\sin^2 \theta}{2} - \frac{3}{4} \sin^4 \theta \right) \\ + \frac{\pi}{32} \cos 2\varphi (2 \sin^2 \theta - 3 \sin^4 \theta) \\ - \frac{3\pi}{32 \cdot 16} \sin^4 \theta \cdot \cos 4\varphi$$

A cet ordre de l'approximation, il existe des déplacements non nuls des cohérences hertziennes. Il n'est cependant pas possible d'obtenir une expression analytique en fonction du champ. Une résolution numérique est nécessaire ce qui offre peu d'intérêt compte tenu du nombre important d'approximations déjà effectuées.

★ A N N E X E 1 ★

*Méthode analytique approchée de calcul
des taux de relaxation*

La méthode est exposée dans la thèse d'OMONT (1967). Il s'agit d'une méthode de coupure utilisant la forme asymptotique des coefficients (cf. Appendice 2). Nous rappelons le principe de cette méthode dans la partie V (§ VII-2).

Nous considèrerons essentiellement les coefficients $g^{(11)(00)}_{(1+2)}$ et $g^{(11)(-1-1)}_{(1+2)}$ de transfert entre les différents sous-niveaux Zeeman. D'après les relations établies dans les appendices 1 et 2 du texte (partie I-B) on peut écrire :

$$\begin{aligned}\Pi^{(11)(00)}_{(1+2)} &= -\frac{1}{3} \Pi_0^{22}(1+2) \approx -\frac{8}{90} q^2 f_1(\eta) \\ \Pi^{(11)(-1-1)}_{(1+2)} &= \frac{1}{6} \Pi_0^{22}(1+2) - \frac{1}{2} \Pi_0^{11}(1+2) \\ &\approx -\frac{8}{45} q^2 f_1(2\eta)\end{aligned}$$

Les transitions entre les sous-niveaux Zeeman $m=0$ et $m=1$, $m=-1$ sont les seules qui interviennent dans la relaxation de l'alignement longitudinal. Les transitions entre $m=1$ et $m=-1$ dominent la relaxation de l'orientation longitudinale mais les transitions entre $m=1$ et $m=0$ et $m=-1$, $m=0$ y contribuent cependant.

Dans le cas du transfert de population de $m=0$ vers $m=1$, on peut suivant OMONT utiliser pour valeur moyenne de $\Pi_0^{22}(1+2)$ pour les collisions fortes la valeur 1. Ceci conduit à une valeur de μ^A (cf. partie V § VII-2)

valant 4/15. Ceci revient à admettre que pour les collisions fortes :

$$\langle \Pi^{(11)(00)}_{(1+2)} \rangle_q \approx 0,33$$

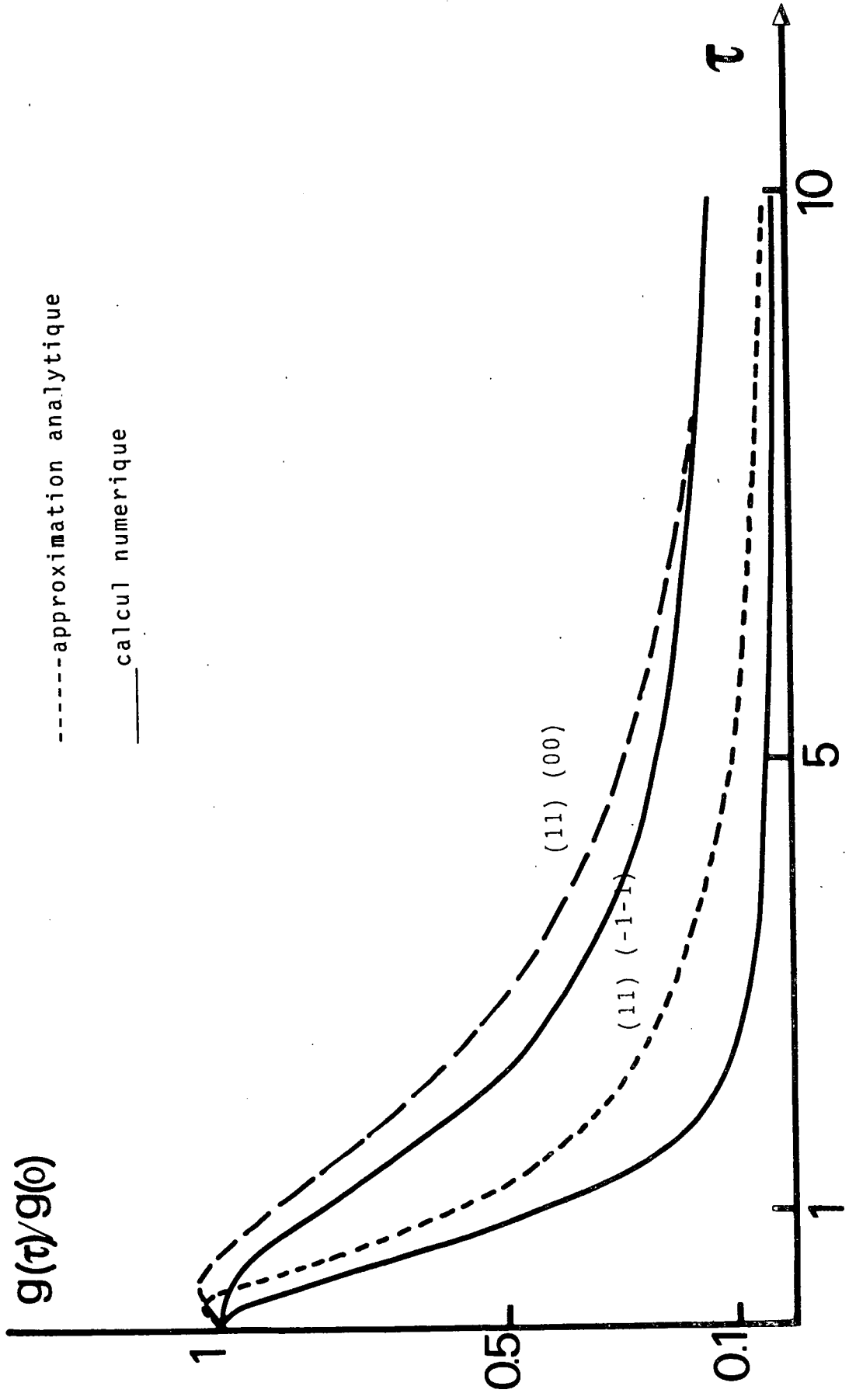
ce qui est en assez bon accord avec les valeurs obtenues par le calcul numérique pour $q \approx 100$.

Dans le cas du transfert de population entre $m=1$ et $m=-1$, la situation est plus compliquée puisque le coefficient est relié à la relaxation de l'alignement et de l'orientation longitudinaux. On peut admettre dans ce cas que les effets de l'orientation dominant et que le coefficient μ^A à adopter vaut environ 12/27 (OMONT-Thèse 1967). Dans le cas des autres coefficients de relaxation, la méthode est en général assez difficile à appliquer.

Les résultats obtenus par cette méthode sont comparés sur la figure jointe à ceux produits par le calcul numérique de la partie I-B. Dans le cas du taux de transfert de $m=0$ vers $m=\pm 1$, on constate que l'accord est relativement bon et meilleur que 20% dans la gamme de valeurs de τ utilisée. L'accord est beaucoup moins bon dans le cas du transfert entre $m=1$ et $m=-1$. Pour les valeurs de τ de l'ordre de 2 il existe un désaccord de l'ordre de 50%.

La méthode utilisée surestime donc les taux de transfert entre les sous-niveaux Zeeman. Il n'y a d'ailleurs en général aucune raison pour admettre à priori que les taux de transfert vérifient en moyenne dans la région de collisions fortes les hypothèses très simples précédentes (cf. partie V § VII-2).

COMPARAISON DES RESULTATS NUMERIQUES
 AUX PREVISIONS ANALYTIQUES D'OMONT (1967)



τ	$K_0^2(1)$	$K_1^2(1) R$	$K_2^2(1) R$	$K_0^1(1)$	$K_1^1(1) R$	$K_0^0(1)$	$K_0^{20}(1)$	$K_1^2(1) I$	$K_2^2(1) I$	$K_1^1(1) I$
0	2.71	2.71	2.71	2.61	2.61	1.94	0	0	0	0
0.5	2.63	2.60	2.51	2.37	2.47	1.74	-0.10	0.30	0.62	0.36
0.7	2.50	2.46	2.32	2.16	2.34	1.61	-0.16	0.35	0.74	0.42
1	2.30	2.25	2.06	1.85	2.16	1.44	-0.24	0.36	0.80	0.44
1.5	2.00	1.99	1.78	1.47	1.90	1.22	-0.28	0.32	0.80	0.41
2	1.77	1.79	1.60	1.22	1.71	1.06	-0.27	0.30	0.76	0.38
3	1.51	1.53	1.38	0.95	1.49	0.88	-0.25	0.28	0.68	0.35
4	1.36	1.39	1.24	0.82	1.37	0.80	-0.24	0.27	0.61	0.34
5	1.26	1.30	1.16	0.74	1.30	0.77	-0.24	0.27	0.55	0.33
6	1.19	1.26	1.10	0.70	1.26	0.76	-0.25	0.26	0.51	0.30
7	1.15	1.23	1.05	0.67	1.23	0.75	-0.25	0.25	0.47	0.28
8.5	1.11	1.20	1.00	0.65	1.21	0.75	-0.26	0.24	0.42	0.25
10	1.09	1.19	0.97	0.63	1.20	0.75	-0.26	0.22	0.39	0.23
20	1.02	1.16	0.86	0.56	1.16	0.74	-0.26	0.13	0.27	0.13
∞	0.96	1.15	0.58	0.58	0.58	0.77	-0.27	0	0	0

TABLEAU 5

τ	$K_0^2(2)$	$K_1^2(2) R$	$K_2^2(2) R$	$K_0^1(2)$	$K_1^1(2) R$	$K_1^2(2) I$	$K_2^2(2) I$	$K_1^1(2) I$
0	- 0.12	- 0.12	- 0.12	0.53	0.53	0	0	0
0.5	- 0.09	- 0.11	- 0.11	0.29	0.53	0.01	0.08	- 0.08
0.7	- 0.08	- 0.09	- 0.16	0.12	0.53	0.02	0.09	- 0.12
1	- 0.10	- 0.05	- 0.20	- 0.12	0.52	0.01	0.07	- 0.18
1.5	- 0.20	+ 0.06	- 0.20	- 0.33	0.50	- 0.02	0.03	- 0.23
2	- 0.33	+ 0.18	- 0.18	- 0.41	0.48	- 0.04	0.04	- 0.24
3	- 0.51	+ 0.33	- 0.19	- 0.44	0.44	- 0.07	0.06	- 0.20
4	- 0.60	+ 0.39	- 0.19	- 0.45	0.43	- 0.07	0.08	- 0.15
5	- 0.65	+ 0.41	- 0.22	- 0.46	0.43	- 0.07	0.10	- 0.12
6	- 0.69	+ 0.43	- 0.23	- 0.47	0.44	- 0.07	0.09	- 0.10
7	- 0.71	+ 0.45	- 0.24	- 0.48	0.44	- 0.06	0.10	- 0.09
8.5	- 0.74	+ 0.47	- 0.25	- 0.48	0.46	- 0.06	0.11	- 0.07
10	- 0.77	+ 0.49	- 0.27	- 0.49	0.48	- 0.05	0.11	- 0.07
20	- 0.83	+ 0.53	- 0.33	- 0.52	0.53	- 0.05	0.11	- 0.05
∞	- 0.96	+ 0.58	- 0.58	- 0.58	0.58	0	0	0

TABLEAU 6

τ	$K_0^2(1+2)$	$K_1^2(1+2)R$	$K_2^2(1+2)R$	$K_0^1(1+2)$	$K_1^1(1+2)R$	$K_2^1(1+2)I$	$K_1^2(1+2)I$	$K_2^2(1+2)I$	$K_1^1(1+2)I$
0	2.60	2.60	2.60	3.14	3.14	0	0	0	0
0.5	2.54	2.49	2.40	2.66	3.00	0.31	0.70	0.70	0.28
0.7	2.42	2.37	2.16	2.28	2.87	0.37	0.83	0.83	0.30
1	2.20	2.21	1.87	1.73	2.68	0.37	0.87	0.87	0.26
1.5	1.79	2.05	1.59	1.14	2.40	0.30	0.83	0.83	0.18
2	1.44	1.97	1.42	0.81	2.19	0.25	0.80	0.80	0.14
3	1.00	1.86	1.19	0.50	1.93	0.21	0.74	0.74	0.15
4	0.76	1.77	1.05	0.36	1.80	0.20	0.69	0.69	0.19
5	0.60	1.72	0.94	0.28	1.73	0.20	0.65	0.65	0.21
6	0.51	1.69	0.87	0.23	1.69	0.19	0.60	0.60	0.21
7	0.44	1.68	0.81	0.20	1.67	0.18	0.57	0.57	0.20
8.5	0.35	1.68	0.75	0.16	1.67	0.18	0.53	0.53	0.18
10	0.30	1.68	0.70	0.14	1.68	0.17	0.50	0.50	0.17
20	0.19	1.69	0.53	0.08	1.69	0.08	0.38	0.38	0.08
∞	0	1.73	0	0	1.73	0	0	0	0

TABLEAU 7

★ ANNEXE 2 ★

Valeurs numériques des coefficients $\Pi_q^{kk'}(i)$

Les coefficients de relaxation $\Pi_q^{kk'}(i)$ peuvent être déduits des résultats des tableaux 1,2,3,4 à l'aide des relations de l'appendice 1. Ils sont consignés dans les tableaux 5,6,7. Les valeurs de saturation non nulles en champ fort obtenues pour certains de ces coefficients peuvent être interprétées à l'aide de l'approximation séculaire (Appendice 3 du texte), en remarquant que les potentiels effectifs vus par les niveaux $m=0$ et $m=\pm 1$ sont différents et qu'en champ fort, il subsiste toujours une coïncidence en énergie des sous-niveaux Zeeman de même valeur de m des deux atomes. La relaxation provoquée par le transfert résonnant de l'excitation entre ces deux niveaux des atomes existera donc quelle que soit la valeur du champ.

- C -

COLLISIONS RESONNANTES $\text{Hg}^*(6^3\text{P}_1) - \text{Hg}(6^1\text{S}_0)$. ETUDE EXPERIMENTALE
 DU TRANSFERT D'EXCITATION ENTRE LES SOUS-NIVEAUX ZEEMAN $m=0$ ET $m=\pm 1$
 EN FONCTION DU CHAMP MAGNETIQUE

INTRODUCTION

Dans cette partie nous rapportons la vérification expérimentale des effets prévus dans l'article précédent (§I-B), dans le cas des collisions résonnantes entre atomes d'un isotope pair du Mercure.

Le principe de l'expérience est d'exciter optiquement le sous-niveau (6^3P_1 $m=0$) d'un isotope pair et de mesurer en fonction du champ magnétique le taux de transfert par collisions résonnantes vers les sous-niveaux Zeeman $m=\pm 1$. Les expériences concernent donc le transfert de la population entre les sous-niveaux Zeeman. Il n'interviendra par conséquent dans les expressions des intensités mesurées que les taux de transfert $g^{(mm)(pp)}$ définis par l'équation (13) de la partie I-B. On notera ces coefficients g^{mp} sous forme abrégée puisqu'il n'y aura pas ambiguïté.

La principale difficulté des expériences ayant été l'élimination de divers effets parasites auxquels on doit probablement le relatif insuccès de tentatives antérieures (OMONT-1961 ; QUARRE-1967), une place très importante est consacrée dans cette partie aux tests du montage et à la justification des conditions physiques de l'étude. Les aspects concernant la diffusion multiple du rayonnement de résonance en champ magnétique intense y sont décrits de manière très qualitative. Une présentation plus quantitative des phénomènes est donnée dans la partie IV à laquelle on pourra se reporter.

1 - PRINCIPE DE L'EXPERIENCE

1-1-Exposé du principe

1-2-Ordres de grandeurs des champs magnétiques nécessaires

1-3-Ordre de grandeurs des signaux physiques

2 - DISPOSITIF EXPERIMENTAL

2-1-Description rapide du montage

2-2-Description et caractéristiques du système supraconducteur

2-2-1-Description

2-2-2-Etalonnage du champ

2-2-3-Homogénéité du champ

2-2-4-Champ de fuite

2-2-5-Autres caractéristiques du système

2-3-Description de la partie optique

2-4-Electronique de détection

3 - TESTS DU MONTAGE

3-1-Nécessité des tests

3-2-Caractéristiques des lampes utilisées

3-3-Rôle des polariseurs - Correction de l'imperfection

3-4-Caractéristiques et test des cellules utilisées

3-5-Imperfections du système de détection

3-6-Photomultiplicateur

4 - DESCRIPTION ET ANALYSE DES EFFETS PARASITES OBSERVES

4-1-Mode opératoire

4-2-Quelques ordres de grandeur

4-2-1-Taux de transfert par collisions résonnantes

4-2-2-Evaluation du rapport des intensités

4-3-Effet des gaz résiduels dans les cellules

4-3-1-Etude des cellules à basse température

4-3-2-Mise en évidence et mesure des taux de transfert par les gaz résiduels

4-3-3-Origines des gaz résiduels

4-4-Effets de l'inhomogénéité du champ sur l'emprisonnement des photons

- effets expérimentaux
- interprétation
- vérifications au centre du solénoïde

4-5-Conclusions

5 - RESULTAT DES EXPERIENCES - VARIATIONS AVEC LE CHAMP MAGNETIQUE DU TAUX DE TRANSFERT PAR COLLISIONS RESONNANTES

5-1-Conditions expérimentales

5-2-Variations avec le champ de I_{σ}/I_{π}

5-3-Normalisation des résultats

5-4-Estimation des incertitudes sur $\eta(H)$

6 - COMPARAISON AUX PREVISIONS THEORIQUES

6-1-Moyenne des résultats théoriques sur la vitesse relative des atomes

6-2-Comparaison aux résultats expérimentaux

6-3-Quelques remarques sur les résultats théoriques et expérimentaux

6-4-Comparaison aux résultats d'autres expériences

1 - PRINCIPE DE L'EXPERIENCE

1-1-Exposé du principe

Les expériences ont été effectuées sur le niveau 6^3P_1 du Mercure. Le but est d'étudier en fonction du champ magnétique le transfert d'excitation par collisions résonnantes du niveau $m=0$ excité optiquement par une lampe à décharge émettant la raie 2537 Å vers les sous-niveaux Zeeman $m=\pm 1$. L'absence de sources accordables d'un emploi aisé à cette longueur d'onde nous a conduit à choisir un isotope pair du Mercure (Hg^{198}) pour effectuer les expériences. Dans un tel cas le sous-niveau Zeeman $m=0$ n'est pas déplacé par le champ magnétique ou l'est de manière peu importante ce qui permet de l'exciter à l'aide d'une lampe à décharge contenant le même isotope, placée en champ magnétique nul. De plus, le choix d'un isotope pair simplifie beaucoup la situation expérimentale en l'absence de la structure hyperfine et permet ainsi une comparaison beaucoup plus aisée avec les prévisions théoriques.

L'absence de déplacement du sous-niveau Zeeman $m=0$ des isotopes pairs est donc fondamentale dans nos expériences. En réalité, le sous-niveau est déplacé faiblement en fonction du champ d'une quantité de l'ordre de ω^2/A où ω est la fréquence de Larmor $\omega = g_J \mu_B B$ et A la constante de structure fine du Mercure. Ceci provient d'un découplage faible de la structure fine des états triplets P et du mélange avec le singulet P. Le calcul approché des effets du découplage et du mélange est donné dans l'appendice 2. L'ordre de grandeur de ω^2/A nous suffit cependant pour caractériser la valeur des déplacements possibles du sous-niveau Zeeman $m=0$. A vaut environ $6 \cdot 10^4$ GHz. Pour le champ maximum (80 kG) utilisé lors des expériences sur les collisions résonnantes, ω^2/A vaut 0,21 GHz. Ce déplacement est petit comparé à la largeur du profil émis par la lampe qui est environ de 1 GHz. On pourra par conséquent exciter les atomes dans le sous-niveau $m=0$ avec une lampe à décharge placée en champ nul quelle que soit la valeur du champ.

Le principe des expériences réalisées sur le Mercure est d'étudier le transfert de l'excitation du sous-niveau Zeeman $m=0$ vers les autres sous-niveaux en détectant la polarisation de la lumière de fluorescence réémise par la vapeur. En l'absence de toute interaction entre les atomes, la lumière de fluorescence est totalement polarisée en π . La dépolarisation du rayonnement de fluorescence pourra être attribuée aux collisions excepté s'il existe dans la vapeur d'autres phénomènes conduisant à une dépolarisation. Il est bien connu en ce qui concerne l'étude des collisions résonnantes que la diffusion multiple est importante dans la gamme de densités où les transferts par collision deviennent mesurables. Or, la diffusion multiple dépolarise le rayonnement de résonance lorsque la séparation en énergie des sous-niveaux Zeeman est plus petite que la largeur Doppler. Il convient donc pour éliminer cette dépolarisation qui ne provient pas du phénomène de collision, d'utiliser des champs magnétiques tels que l'écart d'énergie entre sous-niveaux Zeeman soit beaucoup plus grand que la largeur du profil Doppler. Dans ces conditions, OMONT (1961) a montré que la diffusion multiple devient anisotrope (c'est-à-dire que le temps d'emprisonnement des photons σ est différent de celui des photons π) et ne dépolarise plus le rayonnement. Un photon émis par le sous-niveau $m = +1$ par exemple ne peut être réabsorbé par le sous-niveau $m=0$ d'un autre atome puisque le processus, compte tenu de l'effet Doppler, ne conserve pas l'énergie. Pour étudier dans des conditions convenables la dépolarisation par les collisions résonnantes sur le niveau 6^3P_1 du Mercure il faudra donc limiter le domaine de champs magnétiques à des valeurs nettement supérieures à 1 kG. (A 300 K, la largeur Doppler $2k_0 u$ pour $\lambda = 2537 \text{ \AA}$ vaut environ 600 Gauss). Ceci ne constitue pas une limitation importante de l'étude expérimentale dans la mesure où les évaluations théoriques montrent que les taux de transfert entre 0 et quelques kilogauss varient peu avec le champ (cf. §I-B). Cependant cela indique que l'on ne pourra pas normaliser les résultats expérimentaux à la valeur en champ nul puisque les caractéristiques de la diffusion multiple n'y seront pas les mêmes. La comparaison des résultats n'aurait donc pas de sens. Si l'on excepte la dépolarisation instrumentale qu'un minimum de précautions réduit à une valeur négligeable, la dépolarisation du rayonnement de fluorescence est

due uniquement aux processus de collisions. Il faut là encore distinguer deux classes d'effets : la dépolarisation peut provenir des collisions résonnantes Hg-Hg^* . C'est là ce que l'on désire étudier. Elle peut aussi provenir de l'interaction d'un atome de Mercure excité avec les parois ou avec un autre atome présent dans la cellule pour lesquels le processus n'est pas résonnant. Si l'effet de l'interaction avec les parois peut être considéré comme négligeable, il n'en est pas toujours de même de l'interaction avec les gaz résiduels contenus dans la cellule, qui proviennent soit du mode de remplissage, soit de diffusion de l'Hélium à travers la silice fondue des parois. Evaluons les ordres de grandeur associés aux divers processus de collisions en présence : à la température ordinaire, la densité de Mercure dans la cellule vaut environ 10^{13} atomes/cm³. Le taux de transfert par collisions entre les sous-niveaux Zeeman 0 et ± 1 est alors de $1,6 \cdot 10^{-3} \Gamma$ (OMONT-1967) où Γ est la probabilité de transition radiative (inverse de la durée de vie). Supposons qu'il existe une pression de gaz résiduels dans la cellule de l'ordre de 10^{-3} torr, et qu'il s'agisse pour fixer les idées, d'Hélium. Ceci conduit à des taux de transfert par collisions Hg^*-X entre les sous-niveaux 0 et 1 valant $0,6 \cdot 10^{-3} \Gamma$ (FAROUX-1969). C'est dire que les deux contributions sont du même ordre de grandeur. L'un des processus (collisions résonnantes) a une dépendance en fonction du champ beaucoup plus forte que le second. (Le temps de collisions est plus long). Il en résulte que les variations avec le champ du taux de transfert par collisions résonnantes seront masquées en partie par la présence et les effets des gaz résiduels. Il est donc impératif d'obtenir des cellules scellées contenant au maximum 10^{-4} torr de gaz résiduels. Ceci a constitué une des principales difficultés de l'expérience.

Le dernier point est enfin de montrer que les variations obtenues en fonction du champ proviennent bien de la variation de la section efficace de transfert. Ceci a nécessité de montrer en particulier que les effets de l'inhomogénéité du champ sur le temps d'imprisonnement des photons σ dans la vapeur étaient négligeables dans nos conditions expérimentales.

1-2-Ordres de grandeurs des champs magnétiques nécessaires

Dans le cas du niveau 6^3P_1 du Mercure, et pour les collisions résonnantes cet ordre de grandeur peut être calculé à partir des paramètres utilisés dans la partie théorique (cf. I-B §6). Nous lui préférons cependant une approche plus directe faisant appel à la notion de durée T_c de collision. La durée de collision peut être définie par exemple à partir de la section efficace σ en champ nul pour le processus considéré (par exemple le transfert entre les sous-niveaux $m=0$ et $m=1$), et de la vitesse relative la plus probable v ($v = \sqrt{\frac{2kT}{m^*}}$ où m^* est la masse réduite des atomes), par la formule

$$T_c = v^{-1} (\sigma/\pi)^{1/2}$$

La section efficace est reliée par ailleurs au taux de transfert par collision

$$\sigma = g/Nv$$

où N désigne le nombre d'atomes par unité de volume.

La condition pour que le couplage entre le système constitué des deux atomes en collision et le champ magnétique soit important est que

$$\omega \cdot T_c \approx 1$$

où ω est la fréquence de Larmor. La condition précédente exprime que le moment cinétique a le temps de tourner de manière appréciable autour de \vec{B} pendant la collision. En première approximation, T_c^{-1} caractérise la largeur du spectre de Fourier du potentiel. Les composantes de ce spectre efficaces pour le transfert de l'excitation au cours de la collision ont des fréquences de l'ordre de ω pour le transfert $m=0 \rightarrow m=\pm 1$, et 2ω pour le transfert $m=\pm 1 \rightarrow m=\mp 1$. Lorsque l'on fait croître la valeur du champ magnétique, la fréquence de Larmor ω augmente et l'on sort du

spectre de Fourier du potentiel. Il en résulte que pour les valeurs de ω vérifiant $\omega > T_c^{-1}$, le transfert de l'excitation se produit moins facilement qu'en champ nul. La section efficace de transfert doit donc décroître pour les valeurs du champ réalisant :

$$B \gtrsim B_c = 1/(g_J \mu_B T_c)$$

Le taux de transfert en champ nul entre les sous-niveaux Zeeman $m=0$ et $m=1$ vaut $1,6 \cdot 10^{-16}$ FN ($\Gamma = 8,55 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$) (OMONT-1967). T_c vaut alors 10^{-11} s et la valeur du champ B_c est de l'ordre de 10 kG. Cette valeur est relativement peu élevée ce qui traduit simplement la longue durée de la collision ou la forte valeur de la section efficace obtenue dans le cas des collisions résonnantes. On peut d'ailleurs remarquer que la valeur obtenue pour B_c sera d'autant plus petite que la section efficace sera grande et que la vitesse relative sera faible ou la masse réduite des 2 atomes plus élevée (cf. § I-B).

Il faut néanmoins se garder de conclure au vu de cette valeur faible du champ que les électro-aimants utilisés couramment en laboratoire sont suffisants pour réaliser l'étude expérimentale. Il est bien clair que des champs 5 à 10 fois plus élevés que celui défini précédemment sont nécessaires si l'on veut obtenir la "saturation" ($\omega \cdot T_c \gg 1$) du phénomène. L'emploi de bobines supraconductrices ou de bobines de Bitter est donc une nécessité de l'expérience. C'est pourquoi, bien que l'idée en ait été émise il y a fort longtemps (OMONT-BROSSEL-1961), l'expérience n'a pu être réalisée que dans des temps récents de façon concluante.

1-3-Ordre de grandeur des signaux physiques

Quelques rappels rapides sur les processus bien connus existant dans une vapeur soumise à une excitation optique dans un niveau de résonance des atomes sont nécessaires. Il s'y produit deux catégories d'effets.

D'une part les collisions résonnantes entre un atome excité et un atome à l'état fondamental. D'autre part la diffusion multiple du rayonnement de résonance dont les effets sont notables pour des densités de l'ordre de 10^{12} at/cm³. Diverses méthodes ont été employées pour séparer ces deux phénomènes. Par exemple, OMONT (1967) a employé des cellules contenant en traces des isotopes de Mercure dont il étudie l'interaction avec l'isotope principal à haute densité. La structure isotopique du Mercure étant beaucoup plus grande que la largeur Doppler, les effets de la diffusion multiple sur l'isotope en traces sont négligeables. Par ailleurs la section efficace de collision dépend peu (cf. partie V) de la différence ΔE entre les énergies des états excités des deux isotopes (du moins pour le niveau 6^3P_1) et une étude des collisions résonnantes en champ nul peut être faite dans ces conditions (OMONT-1967). D'autres études ont été effectuées en rétrodiffusion (DODSWORTH -1972), cette géométrie permettant une réduction importante de la dépolarisation par la diffusion multiple. L'utilisation d'isotopes différents n'est pas possible dans le cas présent dans la mesure où le champ provoque des croisements des sous-niveaux Zeeman dans la région 0 à 10 kG qu'il est nécessaire d'étudier soigneusement puisque la section efficace y varie de 25 % (cf. § I-B). L'interprétation des expériences serait de plus compliquée par le grand nombre de sous-niveaux impliqués dans la collision. En tous cas, une telle situation expérimentale ne permettrait pas une comparaison valable avec la théorie excepté peut-être si l'on parvenait à effectuer une analyse en énergie de la lumière de fluorescence ce qui exige des appareils de haute résolution et est difficilement compatible avec la petitesse des signaux de transfert recueillis. Il faut donc travailler en présence de diffusion multiple et ce n'est pas gênant puisqu'il n'en résulte pas de dépolarisation supplémentaire du rayonnement lorsque le champ magnétique est assez élevé. Mieux, à densité N fixée, la diffusion multiple contribue à l'augmentation des signaux résultant du transfert par collision. En effet, lorsque les collisions de retour après un transfert de l'excitation sont négligeables l'expression du rapport des intensités de fluorescence recueillies par analyse de la polarisation est $I_\sigma/I_\pi \sim g^{10}/\Gamma^\sigma$ où Γ^σ est l'inverse du temps d'emprisonnement de la composante σ dans la vapeur.

Pour $N \approx 2 \cdot 10^{13}$ at/cm³, g^{10} vaut $3,4 \cdot 10^{-3}$ Γ mais le rapport Γ/Γ^σ est de l'ordre de 20 (cf. § IV) c'est-à-dire que la durée de vie apparente de l'atome dans la vapeur est de 20 fois la durée de vie de l'atome isolé. Il en résulte une véritable amplification du signal de transfert qui devient dans les conditions précédentes facilement mesurable (le rapport I_σ/I_π vaut de l'ordre de 0,1). Par ailleurs, la condition pour que les termes de retour par collision soient négligeables est

$$\Gamma^\sigma \gg g^{10}$$

L'expression du rapport des intensités est alors linéaire dans le terme de transfert par collision g^{10} . La condition précédente implique que l'on ne pourra pas augmenter trop la pression de la vapeur si l'on veut rester dans le cadre d'une expression linéaire en fonction du terme de collisions. Lorsqu'au contraire la densité de Mercure est très élevée, l'expression de I_σ/I_π sera indépendante de g^{10} et donnera seulement le rapport des poids statistiques des sous-niveaux, à un facteur dépendant de l'emprisonnement près. La quasi thermalisation par les collisions de l'état excité des atomes sera réalisée pendant le temps d'emprisonnement.

Enfin pour terminer, et à la lumière des ordres de grandeur donnés dans le § 1-1, il faut constater que les cellules scellées contiennent toujours des gaz résiduels. Il sera donc nécessaire de travailler à des pressions de Mercure telles que le taux de transfert dû au gaz résiduel soit petit comparé au taux de transfert par collisions résonnantes Hg^*-Hg . Ceci impose une limite inférieure à la densité de Mercure à utiliser. Le problème essentiel posé est donc l'existence d'une plage de densités telles que l'ensemble des conditions précédentes soit réalisé.

2 - DISPOSITIF EXPERIMENTAL

2-1-Description rapide du montage.

Le montage expérimental est analogue dans son principe à ceux utilisés par OMONT (1961), QUARRÉ (1967), CRANCE (1968) lors de tentatives pour mettre en évidence expérimentalement les variations de la section de Holtsmark avec le champ magnétique. La différence essentielle est que nous disposons pour créer le champ magnétique d'un aimant supraconducteur pouvant produire 80 kG en fonctionnement normal.

Le montage est représenté sur la figure 1. Il comporte deux bancs d'optique, l'un pour l'excitation, l'autre pour la détection des signaux et la bobine supraconductrice d'axe vertical. La bobine comporte un anticryostat de diamètre 7 cm à la température ambiante, accessible par les deux extrémités. On dispose dans cet anticryostat un support cylindrique en plexiglass portant la cellule et l'optique nécessaire à l'excitation et à la détection (FIG 2), en particulier les polariseurs, placés immédiatement avant et après la cellule sur les faisceaux optiques d'excitation et de détection.

Le faisceau d'excitation émis par la lampe à décharge est envoyé au moyen de deux lentilles en quartz sur un miroir M_1 (MTO - amplivex UV) fixé sur le bloc de plexiglass supportant la cellule et incliné à 45° par rapport à la direction de l'excitation. Un tuyau en aluminium poli intérieurement (diamètre 15 mm) conduit ensuite la lumière qui est réfléchi à 90° par un second miroir M_2 sur la face d'entrée de la cellule après avoir traversé un polariseur P_1 placé en position π par rapport au champ et un diaphragme placé très près de cette face d'entrée.

La lumière de fluorescence est détectée à 90° de la direction d'excitation au moyen d'un polariseur P_2 placé sur un support mobile orientable en π ou σ par rapport au champ. Un miroir M_3 réfléchit ensuite la lumière à 90° (FIG 2). Une fibre en quartz souple (Schott) de 1 cm de diamètre et 1 m

de long conduit la lumière dans le banc de détection où elle est envoyée au moyen d'une lentille sur la photocathode d'un photomultiplicateur EMI 6256 B. On peut interposer devant le photomultiplicateur des cuves contenant l'un des isotopes du Mercure et jouant le rôle de filtres isotopiques. Le signal issu du photomultiplicateur est amplifié et envoyé sur un système d'acquisition de données Schlumberger et sur un enregistreur X.Y de contrôle (FIG 1).

Nous allons décrire en détail chacune des parties de ce montage.

2-2-Detection et caractéristiques du système supraconducteur.

2-2-1-Description

Le système complet comportant la bobine, les cryostats ainsi que les alimentations nécessaires a été réalisé par la société THOR CRYOGENICS (Oxford).

La bobine est formée d'un enroulement solénoïdal en Niobium-Titane multifilamentaire donnant un champ de 80 kG à 80 A et dont l'homogénéité est de $5 \cdot 10^{-3}$ dans une sphère de 2 cm de diamètre. Le diamètre de la bobine est de 75 mm, la self de 18 H. L'énergie emmagasinée est donc de 58 kJ à 80 kG. La réalisation de la bobine a rencontré beaucoup de difficultés en raison essentiellement de son très grand diamètre. L'importance de l'énergie emmagasinée au champ maximum a conduit le constructeur à prévoir trois systèmes de protection permettant en cas de "quenching" (retour brutal du fil supraconducteur à l'état normal) de dissiper la majeure partie de l'énergie emmagasinée à l'extérieur des cryostats.

Les arrivées de courant sont démontables. Un shunt supraconducteur placé en parallèle avec la bobine permet d'isoler celle-ci de l'extérieur en faisant circuler le courant dans l'ensemble shunt-bobine. Ceci permet, en fonctionnement à champ constant de réduire considérablement les pertes par effet Joule et la consommation en Hélium.

La partie cryogénique est du type à garde d'azote. Le cryostat contenant l'Hélium (12 litres) et la bobine sont isolés dans une enceinte à vide. Un second cryostat contient de l'azote (10 litres) et permet d'améliorer l'isolation thermique de l'ensemble.

Il est prévu de pouvoir pomper sur l'Hélium afin d'abaisser sa température de 4,2 à 2,18°K. Dans ces conditions on peut obtenir une augmentation du champ maximum d'environ 10 %. Le procédé de pompage adopté est celui mis au point par ROUBAUD dont l'avantage est le suivant : au lieu de pomper sur la totalité du bain d'Hélium liquide, on ne pompe que sur le volume d'une petite cavité en cuivre placée au-dessus de la bobine. Ce système permet d'abaisser la température dans la cavité à 2,18°K avec des pompes de débit ordinaire. L'Hélium étant alors dans un état voisin de la superfluidité est doté de propriétés exceptionnelles en ce qui concerne sa capacité calorifique. On aboutit ainsi à une situation où l'Hélium situé au-dessous de la cavité et autour de la bobine est à 2,18°K tandis que la partie au-dessus de la cavité est à 4,2°K.

Nous n'avons pas utilisé les possibilités de pompage ainsi offertes car la consommation d'Hélium à 80 kG dans les conditions normales est déjà importante. De plus, l'augmentation de 10% de la valeur maximale du champ dans nos expériences n'offre pas d'intérêt évident.

La consommation en Hélium liquide varie de manière importante selon le champ utilisé en raison des pertes par effet Joule au niveau des arrivées de courant. Elle est en champ nul, d'environ 0,4 litre/heure mais de l'ordre de 2 litres à 80 kG, en régime statique. De plus, la montée en champ provoque elle aussi une consommation importante. Lorsque l'on travaille en haut champ, l'autonomie du système est au maximum de 4 à 5 heures.

L'alimentation de la bobine est une alimentation stabilisée 100 A. La stabilité du courant est de 10^{-4} /h. La montée en courant peut s'effectuer à la vitesse

maximale de 5 ampères par minute. Une montée plus rapide risque en effet d'endommager le fil supraconducteur.

Le fonctionnement du système est bon en ce qui concerne la bobine, relativement médiocre en ce qui concerne la cryogénie et l'électronique (système de mesure du niveau d'Hélium). Les problèmes de cryogénie semblent être fréquents avec les cryostats de grandes dimensions pour lesquels il subsiste un grand nombre de difficultés techniques sans solutions.

2-2-2-Etalonnage du champ

L'étalonnage du champ a été effectué à l'aide d'un gaussmètre RAWSON LUSH à bobines tournantes qui donne une précision de 1%. La relation champ courant est donnée dans la figure 3. Elle est en accord avec les valeurs indiquées par le constructeur (1 kG/A).

L'alimentation comporte un shunt de $5 \cdot 10^{-3} \Omega$ (shunt de l'ampèremètre) dans le circuit de sortie. La tension aux bornes du shunt est proportionnelle en régime permanent au courant passant dans les bobines. Les courbes de la figure 3 donnent la valeur 0,2 kG/mV pour la relation champ-tension aux bornes du shunt. C'est cette valeur qui a été utilisée par la suite lors de l'exploitation des résultats.

Un étalonnage plus précis du champ n'est pas nécessaire dans nos expériences puisque la dépendance en fonction du champ des taux de transfert est relativement lente. Il pourrait être obtenu par résonance magnétique utilisant une sonde au Lithium construite spécialement en raison des contraintes géométriques. Une autre méthode de mesure du champ a été employée pour vérifier quelques valeurs de la courbe d'étalonnage. On utilise une cellule de résonance à sodium (cf. partie III). Les atomes sont excités dans un des sous-niveaux Zeeman des états $3^2P_{1/2}$ ou $3^2P_{3/2}$ (cf. § III). Connaissant la constante de couplage spin orbite du sodium et la position théorique des niveaux d'énergie, on peut déduire la valeur du champ des positions relatives des raies de fluorescence analysées à l'aide d'un Pérot-Fabry. Cette méthode a l'avantage de s'appliquer quelle que soit la valeur du champ.

La précision n'est en définitive pas supérieure à 1% dans les mesures que nous avons effectuées mais elle pourrait facilement être améliorée.

2-2-3-Homogénéité du champ

L'homogénéité donnée par le constructeur est de 5.10^{-3} dans une sphère de 2 cm de diamètre.

On a confirmé cette valeur à 20 et 80 kG à l'aide du Gaussmètre Rawson-Lush en faisant les mesures dans l'axe de la bobine. Les dimensions des bobines tournantes étant de 5 mm il est difficile de faire des pointés précis par cette méthode.

On a utilisé lors d'une seconde détermination, un gaussmètre Bell à effet Hall dont la sonde a des dimensions de l'ordre du mm et permet donc des pointés plus précis. Cependant, l'effet Hall est saturé à 30 kG et n'est en pratique utilisable que dans des champs inférieurs à 15 kG. On a effectué l'étude des variations relatives du champ en fonction de la position de la sonde sur l'axe par rapport au centre, ou dans différents plans. L'homogénéité mesurée est de $4,4.10^{-3}$ dans 2 cm. Cela signifie que pour un champ de 80 kG au centre, il existera une variation du champ de 320 Gauss dans la sphère de 2 cm entourant le centre.

A 3 cm du centre des bobines, dans l'axe, l'homogénéité dans 2 cm sur l'axe n'est plus que de $5,5.10^{-2}$.

2-2-4-Champ de fuite

Le champ de fuite de la bobine constitue un paramètre important dans la mesure où la lampe et le photomultiplicateur utilisés peuvent y être sensibles. Le champ de fuite mesuré au niveau du photomultiplicateur ou de la lampe, à une distance de 3 m de l'axe de la bobine et dans le plan de son centre de symétrie vaut au maximum 6 G. A 40 cm du centre du champ, dans l'axe de la bobine il atteint 250 G.

Le champ de fuite à 3 m de l'axe de la bobine est de l'ordre de grandeur de celui créé par un dipôle.

2-2-5-Autres caractéristiques du système.

Le "quenching" de la bobine se produit à un champ de 80,5 kG correspondant à une tension aux bornes du shunt de 406,5 mV lorsque la température de l'Hélium du bain est de 4,2°K. L'utilisation en balayage à la vitesse de 5A/mm est difficile dans la mesure où l'on ne sort pas l'indication directe de la valeur du champ. En effet, en raison de la self très importante de la bobine et de la position du shunt dans le circuit de l'alimentation, la tension aux bornes du shunt n'est pas proportionnelle à l'intensité qui parcourt la bobine. Il en résulte selon les cas que la tension shunt surestime ou sous-estime la valeur du champ de 2 kG pour la vitesse de balayage indiquée précédemment.

2-3-Description de la partie optique

- La lampe de type classique est un disque de 2 cm de diamètre et de 2 mm d'épaisseur en silice fondue et contient l'isotope 198 du Mercure (pureté 99,7 %) et quelques torrs d'Argon. Elle est excitée par décharge à 2 000 MHz.

La stabilité de l'émission de la lampe à 2537 Å est enregistrée au moyen d'un photomultiplicateur RTC (150 UVP) placé à la sortie d'un spectromètre JARREL-ASH comportant un réseau Blazé à 1900 Å.

- Les cellules utilisées sont en général des cubes de 2 cm ou 2,5 cm d'arêtes comportant un long queusot. Elles sont remplies avec l'isotope 198 du Mercure. La pression de vapeur du Mercure dans la cellule est contrôlée par la méthode du point froid. Le queusot de diamètre 5 mm et de 30 cm de long plonge dans un récipient contenant du glycol (cf. FIG 2) dont on mesure la température avec un thermocouple. Le glycol est refroidi par la

circulation de l'alcool d'un cryostat à circulation de fluide SECASI*.

Un léger chauffage de la tête de la cellule est nécessaire car la température d'équilibre dans le trou central de la bobine en fonctionnement est seulement de 8 °C. Il est donc nécessaire, pour éviter toute contamination de la cellule par le Mercure de souffler de l'air chaud afin de ramener à 25 °C la température de la tête de la cellule.

- Les filtres isotopiques sont des cuves en silice fondue de 5 cm de diamètre et de 1 ou 2 cm d'épaisseur. Ils sont remplis de Mercure isotopique de pureté meilleure que 99,5 % fourni par le laboratoire Bernas.

- La fibre en quartz souple utilisée, de 1 cm de diamètre et de 1 m de long transmet à 2537 Å environ 50 % du rayonnement incident. Elle permet essentiellement une très grande souplesse d'utilisation du montage et une excellente isolation de la lumière de la pièce.

- Les polariseurs sont des films KASEMANN W.58. Le taux de transmission d'une lumière totalement polarisée est de l'ordre de 20 %. Le principal inconvénient de ces films est leur sensibilité à l'humidité et au rayonnement ultraviolet. Cependant ces aspects ne se sont pas révélés gênants dans nos expériences. Nous les avons donc préférés aux POLACOAT 105 UVR beaucoup moins fragiles mais plus imparfaits.

L'imperfection des polariseurs définie dans la suite comme le taux relatif de lumière π dans la voie σ provient dans nos expériences essentiellement de l'ouverture des faisceaux. Les polariseurs sont en effet placés très près de la face d'entrée ou de sortie de la cellule. L'imperfection pour une ouverture angulaire de l'ordre de 20 ° est ainsi d'environ 5 %. Mais on peut bien entendu la réduire en diminuant les dimensions des diaphragmes placés près de la cellule. Nous donnerons au paragraphe suivant deux méthodes permettant de corriger avec précision les résultats expérimentaux des effets de cette imperfection.

* La température du point froid peut être variée de 20°C à -45°C avec une stabilité du point froid de l'ordre de 0,1°C.

• Les filtres interférentiels utilisés dans certaines expériences de test ont une bande passante d'environ 100 Å autour de 2537 Å et transmettent 15 à 20 % du rayonnement à 2 537 Å.

2-4-Electronique de détection

Le photomultiplicateur est un EMI-6256 B. La photocathode est de dimensions restreintes (diamètre 1 cm) et le courant d'obscurité vaut environ $2 \cdot 10^{-9}$ A. La charge est de 100 kΩ. Après passage dans un préamplificateur adaptateur d'impédance, le signal est envoyé dans une unité de transfert de données SCHLUMBERGER. Le signal est mesuré sur un voltmètre digital SOLARTRON, puis imprimé ou perforé sur ruban. Les 15 voies d'entrée de l'UTD permettent au cours d'un cycle les mesures successives du signal du photomultiplicateur, de la tension du thermocouple contrôlant la température du queusot de la cellule, et de la tension aux bornes du shunt de l'alimentation de la bobine.

3 - TESTS DU MONTAGE

3-1-Nécessité des tests.

L'expérience que nous avons effectuée est dans le principe extrêmement simple. Les quelques ordres de grandeurs donnés au § 1 ont mis l'accent sur les possibilités éventuelles d'effets parasites et l'importance de ceux-ci pour l'interprétation des résultats.

L'exploitation expérimentale des signaux se fait par l'étude de la polarisation de ^{la} lumière de fluorescence. L'analyse en énergie est difficilement réalisable à la longueur d'onde utilisée. On a donc a priori peu d'informations directes sur la composition spectrale du rayonnement de fluorescence. On ne sait pas en particulier, s'il ne comporte pas des composantes parasites n'ayant ni l'énergie des photons π émis par le niveau $m=0$,

ni les énergies des photons σ émis par les sous-niveaux $m=\pm 1$. A priori, l'absorption forte du polariseur et de la fibre pourrait se traduire par la réémission du rayonnement absorbé sous forme de bandes moléculaires ou d'un fond continu. Il en résulterait des composantes parasites dans la lumière détectée par le photomultiplicateur. Il est donc nécessaire de vérifier que les ordres de grandeur associés à de tels effets sont négligeables devant ceux des signaux physiques recherchés.

Il faut également s'assurer que la distribution spectrale du rayonnement des lampes à décharge utilisées ne comporte pas de fond continu trop important. On pourrait sinon imaginer la possibilité d'une excitation directe des sous-niveaux Zeeman $m = \pm 1$ par ce fond continu, quelle que soit la valeur du champ. Le rayonnement σ détecté comporterait alors une partie parasite due à cette excitation directe et ne proviendrait plus uniquement du transfert par collision.

On doit également s'assurer de la pureté isotopique du Mercure 198 utilisé dans la lampe. Pour certaines valeurs du champ entre 0 et 10 kG, il pourrait exister une excitation parasite directe des sous-niveaux $m = \pm 1$ des atomes de Mercure 198 de la cellule par les impuretés isotopiques contenues dans la lampe.

Il est de plus nécessaire de vérifier par une étude à basse température que la cellule ne comporte pas de pressions trop importantes de gaz résiduels ou ce qui revient au même, de vérifier qu'à basse température le rayonnement de fluorescence est totalement polarisé en π .

Il faut enfin mesurer avec précision l'imperfection du polariseur de détection (c'est-à-dire compte tenu de $i\sigma \ll i\pi$, le taux de lumière π contenu dans la lumière σ) de manière à corriger avec précision les résultats expérimentaux.

L'idée essentielle dans toutes les expériences de vérification que nous avons effectuées est en définitive d'effectuer une analyse

en fréquence du rayonnement de fluorescence. Les méthodes optiques traditionnelles (Perot-Fabry) n'étant pas applicables, nous avons utilisé la seule méthode donnant une résolution suffisante qui est d'absorber la lumière de fluorescence par des filtres à Mercure isotopique convenablement choisis et placés en champ nul. Lorsque l'on fait varier le champ magnétique appliqué sur la cellule de mesure contenant l'isotope 198, il apparaît ainsi des signaux d'absorption traduisant la coïncidence en énergie des photons de fluorescence réémis et des composantes hyperfines en champ nul de l'isotope impair contenu dans le filtre (cf. FIG 4).

L'inconvénient de la méthode est évidemment qu'elle n'est pas applicable pour n'importe quelle valeur du champ.

3-2-Caractéristiques des lampes utilisées

Les lampes sont du type classique sans électrodes utilisé dans le laboratoire. Un spectre enregistré à l'aide d'un spectromètre JARREL ASH comportant un réseau blazé à 1900 Å montre qu'il n'existe pas dans un domaine de 50 Å autour de 2537 Å de raie autre que celle provenant de la transition ($6^3P_1 \rightarrow 6^1S_0$) du Mercure. L'écart maximum de 200 GHz à 80 kG entre les énergies des sous-niveaux Zeeman correspond à une variation de la longueur d'onde de l'ordre de 0,5 Å qui est bien inférieure à la résolution de l'appareil. On ne peut donc effectuer de vérification convaincante par la méthode précédente. Si l'on admet qu'une éventuelle raie parasite émise par la lampe dans le domaine spectral précédent a une intensité maximum de l'ordre de 10^{-3} de l'intensité de la raie 2537 Å émise par le Mercure dont on suppose l'absorption totale dans la vapeur, et que le polariseur placé en π à l'excitation ne laisse passer que $5 \cdot 10^{-2}$ de l'intensité totale sous forme de photons de polarisation σ , il peut donc en résulter au maximum un taux d'excitation parasite des sous-niveaux $m = \pm 1$ de $5 \cdot 10^{-5}$ à comparer au taux de transfert par collision de l'ordre de 10^{-3} dans nos expériences. L'effet éventuel sera donc petit.

L'absence de bandes moléculaires et d'un fond continu émis par la lampe sont de la même façon difficiles à prouver. Les effets éventuels d'excitation directe des sous-niveaux Zeeman $m = \pm 1$ seront de toute façon considérablement diminués par la présence du polariseur placé en π sur le faisceau d'excitation. Les intensités du fond continu ou des bandes moléculaires dans une largeur Doppler sont en tout état de cause petites comparées à l'intensité de la raie 2537 Å du Mercure. Les effets parasites éventuels ne pourront qu'être négligeables compte tenu des taux de transfert par collision que nous observons.

On peut obtenir une estimation expérimentale plus précise des effets précédents de la manière suivante :

Seul un filtre à Mercure isotopique peut donner une résolution suffisante dans le domaine de quelques fractions d'Angstroem autour de 2537 Å. Cependant, son effet essentiel peut être de révéler la présence d'impuretés isotopiques contenues dans la cellule ou dans la lampe. Nous avons utilisé un filtre à Mercure 204 (99,7 %) pour tenter de tester les points précédents. Le taux de 204 dans la cellule et dans la lampe est en effet extrêmement faible puisque les isotopes 198 et 204 sont bien séparés avec un spectrographe de masse. On introduit le filtre à Hg²⁰⁴ sur le faisceau d'excitation et on balaie le champ dans la cellule à Mercure 198 autour du point de croisement (7 kG) (cf. FIG 4) de la composante $m = -1$ de Hg¹⁹⁸ et de Hg²⁰⁴ en champ nul. Si le signal σ mesuré provient d'une excitation directe soit par un fond continu, soit par les impuretés de Hg²⁰⁴ de la lampe, le signal détecté diminuera pour la valeur du champ correspondant au croisement. Ces expériences ont été totalement négatives prouvant qu'aucun effet d'excitation directe n'était à redouter avec la lampe utilisée. Ceci est un test valable pour une valeur du champ qu'il n'est pas possible d'étendre à plus haut champ. Il n'y a cependant aucune raison de penser qu'il en soit autrement dans le domaine de champ utilisé.

La pureté isotopique de la lampe a été testée par l'interposition de filtres isotopiques dans le faisceau d'excitation. Aucun effet appréciable

n'a été noté sur l'intensité σ de la fluorescence. L'impureté principale contenue dans Hg^{198} est Hg^{199} . La lampe étant utilisée dans un régime froid l'émission due à Hg^{199} est très faible et ses effets sont négligeables dans nos conditions d'étude du fait de la présence du polariseur π à l'excitation. Aux températures inférieures à 12°C où nous avons travaillé l'interposition du filtre à Hg^{199} dans le faisceau d'excitation a montré que les effets d'excitation directe des niveaux $m = \pm 1$ de Hg^{198} étaient totalement négligeables.

Il était important de vérifier ces deux points. L'illustration des effets de l'un d'entre eux est donnée dans la publication de FUCHS et al. (1974) où une pureté isotopique insuffisante de la lampe rend les résultats expérimentaux difficilement exploitables dans la gamme de champ 0-10 kG.

3-3-Rôle des polariseurs - Correction de l'imperfection

Les polariseurs utilisés dans le montage sont des films KASEMANN POLAREX W58. Leur dégradation dans le temps (provoquée par le rayonnement ultraviolet et l'humidité de l'air) est suffisamment lente dans les conditions où nous les employons pour que nous puissions conserver le même polariseur au cours d'une série d'expériences.

Le rôle du polariseur d'excitation est avant toute chose de se prémunir contre des effets parasites discutés au § 3-2 tels que l'existence d'un fond continu éventuel de la lampe. En ce qui concerne le principe de l'expérience, il est bien clair que l'emploi d'un polariseur π à l'excitation est superflu puisque dès que le champ est supérieur à 1 kG, largeur approximative de la lampe dans un régime froid, seul le sous-niveau $m=0$ pourra absorber le rayonnement émis par la lampe en champ nul. Cette sélection en énergie est donc suffisante pour assurer l'excitation du seul sous-niveau Zeeman $m=0$

des atomes de Mercure contenus dans la cellule. Le polariseur d'excitation a le rôle supplémentaire d'absorber les photons de la lampe ayant la polarisation σ qui dès que le champ est plus grand que 1 kG ne sont plus absorbés dans la cellule, et pourraient donc contribuer à créer de la lumière parasite.

Le polariseur de détection permet de sélectionner les polarisations σ ou π de la lumière de fluorescence réémise par la vapeur. Le système de détection utilisé avec fibre optique et miroir et le souci de réduire avant la mesure les dépolarisations instrumentales nous a conduit à placer ce polariseur le plus près possible de la cellule. Il convient alors de réduire au maximum l'ouverture angulaire du faisceau de détection de façon à utiliser le polariseur dans des conditions proches de l'incidence normale. Ceci peut être réalisé par l'interposition d'un diaphragme entre la cellule et le polariseur. Nous avons travaillé avec une ouverture de faisceau d'environ 20° , ce qui permet d'obtenir des intensités de fluorescence sur la voie σ facilement mesurables à $N \approx 10^{13}$ at/cm³, tout en utilisant la lampe à décharge dans un régime froid.

L'imperfection du polariseur qui résulte essentiellement de l'ouverture angulaire des faisceaux se traduit par un mélange des signaux obtenus sur les voies π et σ . Dans les conditions expérimentales où $i_\sigma \ll i_\pi$, cela ramène sur la voie σ une partie de la lumière π . Le signal obtenu sur la voie σ se met donc sous la forme :

$$R_\sigma = i_\sigma + \alpha i_\pi$$

$$R_\pi = i_\pi + \beta i_\sigma \approx i_\pi$$

la correction à effectuer sur l'intensité π étant petite et négligeable en général. La valeur du rapport mesuré est alors

$R_\sigma/R_\pi \approx (i_\sigma/i_\pi) + \alpha$ et dépend de α représentant la correction du polariseur. (i_π et i_σ représentent les valeurs réelles des intensités émises par la vapeur aux fréquences k_0 et $k_0 \pm \omega$).

La valeur de α est déterminée de la manière suivante par deux méthodes complémentaires qui utilisent la composition spectrale de la lumière de fluorescence

1ère méthode : Utilisation de filtres isotopiques à Mercure 198

On utilise pour des champs supérieurs à 2 kG le fait que R_{σ} est formé de la juxtaposition de 3 signaux ayant des distributions en énergie différentes. La lumière π est en effet réémise à la fréquence k_0 non déplacée par effet Zeeman (à l'effet Doppler près) et la lumière σ aux fréquences $(k_0 \pm \omega)$. Un filtre à Hg¹⁹⁸ en champ nul, à température ambiante, placé devant le photomultiplicateur permet d'absorber la portion αi_{π} de lumière π contenue dans le signal R_{σ} . Après correction de la lumière parasite de la lampe (lumière émise par la lampe et réfléchiée sur les parois de la cellule), on peut donc déduire de cette mesure la valeur réelle i_{σ} de l'intensité émise aux fréquences $(k_0 \pm \omega)$ par la vapeur. Une seconde mesure effectuée dans les mêmes conditions, le queusot du filtre étant dans l'azote liquide, permet de déterminer R_{σ} et R_{π} et donc la correction α de polariseur à effectuer, ainsi que le coefficient moyen de transmission du filtre dans les conditions de l'expérience.

De manière générale, la détermination de α est effectuée dans des conditions très diverses de température de la cellule et de champ magnétique. Sa valeur est mesurée plusieurs fois au cours d'une même expérience. La pression de vapeur dans la cellule est un paramètre important dans la mesure où elle modifie la largeur du profil des raies de fluorescence émises. Le filtre placé à température ambiante ayant un profil d'absorption de largeur fixe, on peut ainsi s'assurer que malgré la variation du taux de transmission du filtre pour la lumière π , la valeur de α déterminée par la méthode précédente est peu affectée.

Les mesures de α effectuées à différentes valeurs du champ permettent de montrer qu'elle en est indépendante. Cela permet en haut champ

magnétique de vérifier qu'il n'existe pas dans les faces de la cellule ou dans le film polariseur d'effets importants provenant d'une biréfringence magnétique.

Notons que la correction de lumière parasite de la lampe (lumière détectée sur les voies σ et π lorsque la cellule est dans l'azote liquide et provenant de la lampe) est effectuée systématiquement lors de ces mesures. Elle vaut typiquement moins de 1 % de la lumière de fluorescence σ pour $N \approx 10^{13}$ at/cm³.

Les mesures précédentes sont effectuées dans les mêmes conditions géométriques (cela est important dans la mesure où α provient pour l'essentiel de l'ouverture des faisceaux) et ont été réalisées à l'aide de deux types de filtres à isotope 198.

Le premier filtre contient uniquement l'isotope 198. Le queusot est d'accès facile ce qui permet un passage rapide de la température ambiante à celle de l'azote liquide et donc d'effectuer les mesures dans un temps court devant la période des fluctuations de la lampe. Les mesures croisées permettent de toute façon de réduire à une influence négligeable les effets de ce dernier phénomène. Le taux de transmission de ce filtre à la température ambiante est environ 2 % lorsque le point froid de la cellule qui contient le même isotope est à la température de 10°C. L'action de ce filtre sur la lumière émise par la lampe est beaucoup moins efficace puisque la largeur de la lampe est supérieure à la largeur du profil d'absorption du filtre. Les ailes de la raie émise par la lampe ne sont donc pas absorbées (elles ne sont pas absorbées non plus par la cellule et constituent une partie de la "lumière parasite de la lampe").

Le second filtre contient l'isotope 198 et de l'hydrogène à une pression d'environ 60 torr. Il est placé dans les mêmes conditions géométriques que le précédent. La présence d'hydrogène à forte pression dans le filtre provoque un élargissement par collisions du profil d'absorption. Les ailes lorentziennes de ce profil ne sont plus négligeables. La détec-

mination expérimentale par balayage magnétique de la largeur a donné environ 5 GHz avec les ailes lorentziennes. L'efficacité d'un tel filtre sur le profil émis par la lampe est beaucoup plus grande que dans le cas précédent. Cependant, il est nécessaire pour les faibles valeurs du champ de s'assurer que les ailes lorentziennes du filtre n'absorbent pas partiellement la lumière σ issue de la cellule. En utilisant ce filtre à température ambiante, il n'est plus nécessaire d'effectuer de corrections de la lumière parasite de la lampe. Ce petit avantage s'accompagne d'un inconvénient majeur : l'extrême longueur du temps de diffusion du Mercure lorsque le queusot du filtre est placé dans l'azote liquide. En effet, le choix de l'hydrogène a été guidé par les considérations suivantes déduites des mesures effectuées par BUTAUX (1972). L'élargissement des raies optiques est faible pour l'hydrogène si l'on compare par exemple à celui produit par le xénon à la même pression, mais la vitesse de diffusion du Mercure est plus grande pour l'hydrogène que pour le xénon pour un même élargissement de la raie optique. Le temps nécessaire au piégeage du mercure reste cependant de l'ordre de 45 minutes. On ne peut donc pas utiliser ce filtre commodément lorsque la lampe n'a pas une grande stabilité.

Les valeurs de α obtenues à l'aide de ces deux filtres sont dans les conditions des expériences rapportées ci-dessous (cf. § 5)

$$\alpha = 0,051 \pm 0,001$$

Une seconde méthode de détermination de α a été utilisée pour confirmer le résultat et borner l'erreur systématique possible.

2ème méthode : Balayage magnétique

On détermine par une mesure directe la valeur de l'intensité i_{σ} aux fréquences $(k_0 \pm \omega)$. La méthode consiste à placer dans le banc de détection un filtre contenant un isotope différent de Hg¹⁹⁸. Lorsque l'on balaie le champ dans la cellule autour de la ou des valeurs correspondant

à la coïncidence des raies $i_{\sigma+}$, $i_{\sigma-}$ émises par l'isotope 198 et de la raie d'absorption du filtre, un signal d'absorption apparaît dans la lumière détectée. Pour des raisons évidentes il faut opérer à des pressions de Mercure dans la cellule assez basses (0°C) pour que l'absorption par le filtre à la température ambiante soit totale. L'utilisation de filtres contenant des isotopes pairs du Mercure (202-204) ne permet de déterminer que l'une des deux composantes de la lumière σ de fluorescence. Ceci est suffisant si

$$i_{\sigma} \sim \frac{1}{2} (i_{\sigma+} + i_{\sigma-}) \approx i_{\sigma-}$$

Cette égalité se vérifie aisément par inversion du sens du champ. On obtient ainsi directement la valeur réelle du rapport i_{σ}/i_{π} . La détermination de R_{σ}/R_{π} est possible en plaçant le filtre dans l'azote liquide. Les corrections de lumière parasite étant effectuées, on peut déduire par différence la valeur de α . Cette méthode n'est évidemment utilisable qu'en des valeurs déterminées du champ où se produisent les croisements des sous-niveaux Zeeman de l'isotope 198 de la cellule avec l'isotope en champ nul utilisé dans le filtre (cf. FIG 4).

L'utilisation de filtres contenant un isotope impair (199-201) permet l'obtention sur le même enregistrement des deux composantes de fréquence de la lumière σ sans renverser le sens du champ (FIG 4 et 5). Cette méthode présente néanmoins un inconvénient car la section efficace de collision résonnante peut avoir varié entre les valeurs du champ associées aux deux croisements. On peut remédier à cette difficulté en utilisant une cellule contenant une faible pression de gaz rare. Dans ce cas la section efficace varie très peu dans la région concernée, et la méthode peut être mise en oeuvre sans difficultés.

Les valeurs de α ainsi obtenues diffèrent de l'estimation précédente de moins de $2 \cdot 10^{-3}$. On peut donc affirmer qu'une fois effectuée la correction de polariseur, la valeur i_{σ}/i_{π} obtenue représente bien le rapport de la lumière de fluorescence sensibilisée à la lumière directe.

En outre on vérifie directement par cette méthode que la lumière σ présente bien le spectre de fréquence attendu.

Conclusions

De la comparaison des résultats des deux séries d'expériences on peut donc affirmer que les corrections effectuées sont cohérentes, et que la voie de détection σ ne produit pas de lumière qui ne soit le résultat du transfert par collision dans la cellule, le résultat de l'imperfection du polariseur ou l'effet de la lumière parasite de la lampe. L'ensemble de ces deux mesures est important puisqu'il permet de corriger les valeurs du rapport R_{σ}/R_{π} de l'imperfection du polariseur et de prouver qu'il n'existe pas de contribution parasite importante dans la lumière σ . On a pu ainsi abandonner l'hypothèse d'effets importants provenant de l'émission de bandes à une fréquence différente de k_0 , $k_0 \pm \omega$ du fait de la forte absorption du polariseur ou d'une fluorescence propre du quartz ou des miroirs. Ceci nous a conduit en particulier à affirmer que les phénomènes parasites observés lors d'expériences préliminaires ne pouvaient provenir que d'un transfert par collision provoqué par la présence de gaz résiduels autres que le Mercure dans la cellule (cf. § 3-4 et 4-3)

3-4-Caractéristiques et test des cellules utilisées.

Les cellules sont des cubes de 2,5 cm d'arête de silice fondue (ultrasil HERAEUS et silice de synthèse QUARTEX). Elles contiennent quelques microgrammes d'isotope 198 du Mercure de pureté variable selon l'échantillon de 99,6 à 99,8 %. Elles sont remplies par distillations successives sous vide du Mercure de sorte que les impuretés contenues dans l'échantillon peuvent être légitimement considérées comme éliminées. La cellule est soumise pendant 12 heures à un étuvage à 900°C. Les faces de la cellule qui ne sont pas utilisées sont noircies de façon à réduire d'éventuelles réflexions parasites du rayonnement.

Les tests effectués sur les cellules ont porté sur la concentration en isotopes autres que Hg^{198} , et sur la présence de gaz résiduels autres que le Mercure. Ce dernier point sera décrit au § 4.

Le test de la pureté isotopique du Mercure utilisé dans la lampe ou dans la cellule a été réalisé par balayage magnétique (le polariseur d'excitation est alors placé en position σ par rapport au champ).

Une expérience de balayage magnétique effectuée avec la lampe à Hg^{198} et une cellule à Hg^{202} maintenue à basse température révèle que lorsque la lampe fonctionne dans un régime froid on observe essentiellement le croisement du sous-niveau Zeeman $m=+1$ de Hg^{202} avec la raie d'émission de la lampe ce qui permet de contrôler la forme de la raie. Les croisements avec les impuretés isotopiques de la lampe ont une intensité négligeable de l'ordre de 10^{-2} . Il n'y a donc pas lieu de craindre dans nos expériences où le polariseur d'excitation est placé en π une excitation directe importante des sous-niveaux Zeeman $m=\pm 1$ de Hg^{198} par les impuretés de la lampe, lorsque celle-ci fonctionne dans un régime froid.

La même expérience effectuée avec la cellule de mesure contenant Hg^{198} et des lampes contenant divers autres isotopes révèle lorsque la cellule est utilisée à des températures de l'ordre de 20°C essentiellement les impuretés contenues dans les lampes. Il n'existe pas d'effets importants provenant des impuretés isotopiques de la cellule.

Dans toutes ces expériences, lorsque le champ magnétique est supérieur à 10 kG, il n'existe plus de possibilités de coïncidence en énergie des sous-niveaux des différents isotopes (cf. FIG 4). Ceci permet donc de vérifier qu'il n'existe pas de fond continu important dans le rayonnement des lampes utilisées dans un régime froid. De fait on observe assez généralement que les signaux σ et π obtenus au-dessus de 10 kG sont négligeables excepté dans le cas où l'on éclaire la cellule contenant Hg^{198} par une lampe contenant Hg^{199} . On a pu alors vérifier que l'excitation résiduelle provenait des impuretés isotopiques de Hg^{198} contenues dans la lampe en inter-

posant sur la voie d'excitation un filtre à Hg¹⁹⁸.

Dans les conditions où nous avons travaillé (lampe dans un régime froid ; température du queusot de la cellule inférieure à 13°C), les impuretés isotopiques de la cellule ou de la lampe ne paraissent pas pouvoir être à l'origine d'effets parasites. Les effets du fond continu émis par les lampes sont de plus négligeables comme on peut s'en assurer en champ fort.

3-5-Imperfections du système de détection

Les difficultés occasionnées en définitive par la présence de gaz résiduels dans la cellule nous ont conduit dans un premier temps à remettre en cause la totalité du montage. A très basse température, il existait en effet une valeur non nulle du rapport i_{σ}/i_{π} après correction de l'imperfection du polariseur qui nous a conduit à envisager entre autres, la possibilité qu'il existe sur les voies σ et π une bande parasite réémise par le quartz, le polariseur ou la fibre optique et due à une forte absorption par ces systèmes du rayonnement à 2537 Å.

Ceci nous a conduit à faire une analyse spectrale du rayonnement réémis, à l'aide du monochromateur UV que l'on place devant le photomultiplicateur. On met ainsi en évidence que seule la raie 2537 Å est obtenue en détection sur les voies σ et π . La partie de la lumière parasite de la lampe produite par les raies autres que 2537 Å émises dans la décharge est négligeable. Aucune fluorescence parasite marquée n'existe. Cela ne prouve cependant pas l'absence de bandes larges en énergie et de faibles intensités dans la lumière de fluorescence. Ceci ne peut être prouvé que de manière indirecte en utilisant la cohérence des corrections du § 3-3 ou du § 4-2.

La bande moléculaire de Hg₂ à 2540 Å ne peut pas être invoquée puisque les conditions de pression et de température dans la cellule conduisent à des taux de formation de la molécule totalement négligeables.

Nous avons signalé précédemment que la détermination de la valeur absolue de la section efficace ou du taux de transfert n'était pas possible à partir des résultats expérimentaux. Le rapport i_{σ}/i_{π} s'exprime en effet sous certaines conditions en fonction de g^{σ} taux de transfert par collisions et d'un facteur dépendant de l'emprisonnement. Il ne semble pas possible de faire une évaluation théorique très précise de ce facteur de sorte que la détermination de la valeur absolue de g^{σ} à partir de nos résultats expérimentaux est impossible. Ceci ne constitue pas une limitation trop importante dans la mesure où g^{σ} a été déterminé en champ nul par l'élargissement des courbes d'effet Hanle par A. OMONT et J. MEUNIER (1968). De sorte que la détermination absolue de i_{σ}/i_{π} est de peu d'intérêt dans nos expériences. Nous nous sommes cependant assuré que dans notre montage les voies de détection σ et π étaient équivalentes. Une lampe à incandescence placée dans le montage à la place de la cellule donne une valeur de $i_{\sigma}/i_{\pi} = 0,99$ (0,02) quelle que soit la valeur du champ magnétique.

Nous avons également analysé la polarisation arrivant sur le photomultiplicateur afin d'étudier l'effet de la fibre en quartz sur la polarisation du rayonnement. A cet effet, un polariseur POLACOAT 105 UVR dont la rotation est provoquée par un moteur, est introduit devant le photomultiplicateur. La modulation observée en détection a une amplitude crête à crête au maximum de 3%. La profondeur de modulation ne dépend pas sensiblement de la voie σ ou π utilisée ni de la valeur du champ magnétique appliqué sur la cellule. On peut donc conclure que la fibre, dans la position coudée où on l'utilise (conservée fixe pendant les expériences) dépolarise presque totalement le rayonnement. Par conséquent, il n'a pas été nécessaire de se préoccuper de l'influence éventuelle de la polarisation sur la réponse du PM.

3-6-Photomultiplicateur

Le photomultiplicateur utilisé est un EMI de type 6256 B dont la géométrie des dynodes est de type VENETIAN BLIND. La sensibilité aux champs

magnétiques est donc relativement forte. Il est cependant aisé de remédier à ce défaut.

Le champ de fuite au niveau du PM placé à environ 3 m de l'axe du solénoïde est au maximum de 6 gauss. Ceci est relativement aisé à blinder. On utilise d'abord 5 plaques de fer doux de 2 mm d'épaisseur qui coupent les lignes de champ et constituent un premier blindage. Le PM lui-même est blindé de la façon suivante : nous avons réalisé 4 cylindres concentriques de fer doux ARMCO (épaisseur 2 mm) qui sont introduits autour du PM, à l'intérieur de la boîte en cuivre (épaisseur 5 mm) supportant l'ensemble. Ces blindages permettent de ramener le champ de fuite à des valeurs de l'ordre du gauss qu'il est aisé d'éliminer totalement à l'aide d'une série de 5 blindages cylindriques en μ -métal placés directement autour du PM. Les cylindres des blindages débordent largement au-delà de la cathode du PM qui constitue une des régions particulièrement sensible aux champs de fuite.

L'efficacité du blindage ainsi réalisé a été testée de la manière suivante : une lampe à incandescence alimentée par une alimentation stabilisée émet un rayonnement qui est envoyé sur le PM. Le champ est balayé de 0 à 80 kG et on n'observe aucune modification de la réponse du PM.

Une seconde méthode consiste à utiliser un aimant du magnétron ou un aimant de pompe à ionisation VARIAN. Le champ régnant au voisinage de la photocathode est alors environ 50 gauss et des variations de 50% de la réponse du PM non blindé sont obtenues. Lorsque l'on utilise le PM blindé dans les conditions précédentes, on observe des variations de la réponse inférieures à 1%. Ceci est en accord avec les observations que nous avons faites au SNCI (Grenoble) où le champ de fuite de 20 gauss à 4 mètres de la bobine de Bitter 10 MW ne produisait pas de modifications de la réponse du PM.

Une troisième expérience permet de vérifier que ni le PM, ni la lampe ne sont affectés par le champ de fuite de la bobine. Un filtre interférentiel UV permet d'isoler et d'atténuer le rayonnement de la lampe à la longueur d'onde 2537 Å. On envoie ensuite celui-ci sur le PM au moyen d'une fibre en quartz souple. Le balayage du champ de 0 à 80 kG révèle l'absence de corrélations entre la réponse et la valeur du champ.

Nous avons enfin vérifié que la réponse du PM pour les tensions d'alimentation employées était linéaire en fonction de l'intensité lumineuse qu'il recevait et exempte d'effets de saturation. Ceci est important pour les intensités

σ puisque leur variation avec le champ est de plus d'un facteur 3. Les intensités π variant peu avec le champ, ceci est de moindre importance dans leur cas.

4 - DESCRIPTION ET ANALYSE DES EFFETS PARASITES OBSERVES

4-1-Mode opératoire

La montée en champ à 80 kG s'effectue en un temps minimum de 1/4 d'heure. La stabilité de la lampe sur un tel intervalle de temps est de quelques pourcents. On mesure successivement pour chaque valeur du champ les intensités de fluorescence R_σ et R_π , et les valeurs i_σ^0 et i_π^0 provenant des imperfections du montage (courant d'obscurité du PM - lumière parasite de la pièce). La détermination de la lumière parasite de la lampe est effectuée en plongeant le queusot de la cellule dans l'azote liquide, au début et à la fin des expériences. Les mesures effectuées sont "croisées" de manière à éliminer les effets de dérives éventuelles. La détermination de la valeur de α (cf. § 3-3) représentant l'imperfection des polariseurs est effectuée au début et à la fin de chaque série de mesures. Ceci permet d'avoir la certitude que des modifications du montage dues à des agents extérieurs ne sont pas intervenues (dérèglement des polariseurs - modifications de leur état de surface).

Une série de points est prise pour chaque valeur du champ à pression de vapeur fixe dans la cellule. Les points sont croisés lors de la montée et de la descente en champ. Les deux sens du champ sont utilisés systématiquement à chaque densité. Ceci permet de vérifier l'absence d'effets systématiques corrélés au sens du champ ou au mode de balayage.

4-2-Quelques ordres de grandeur

4-2-1-Taux de transfert par collisions résonnantes

D'après les évaluations théoriques et les mesures par effet Hanle d'OMONT (1967), DODSWORTH et al. (1972), les taux de transfert par collisions résonnantes entre les sous-niveaux Zeeman $m=0$ et $m=\pm 1$ sont égaux et valent :

$$g^{(11)(00)} = 1,6 \cdot 10^{-16} \Gamma \cdot N$$

Pour des densités N de l'ordre de $2 \cdot 10^{13}$ at/cm³, ces taux de transfert sont donc petits comparés à la probabilité de désexcitation radiative du niveau 6^3P_1 . Pour 300 atomes de Mercure excités dans le sous-niveau Zeeman $m=0$, un seulement

subit une collision résonnante transférant l'excitation dans les sous-niveaux $m=\pm 1$. Cependant, à ces densités, un grand nombre d'atomes diffusent successivement le rayonnement de polarisation σ réémis et la polarisation de la lumière de fluorescence dépend en définitive de $g^{(11)(00)}/\Gamma^\sigma$ où Γ^σ est l'inverse du temps d'emprisonnement des photons σ dans la vapeur.

4-2-2-Evaluation du rapport des intensités

Pour des densités valant 2.10^{13} at/cm³, le paramètre $\chi(k_0).L$ représentant l'absorption dans la cellule au centre de la raie vaut pour $L = 1$ cm

$$\chi(k_0).L \approx 12$$

On peut évaluer l'ordre de grandeur de Γ^σ/Γ à l'aide du modèle de HOLSTEIN (le modèle développé par BARRAT (1959) n'est évidemment pas applicable pour de telles épaisseurs optiques) (cf. §IV).

L'expression de Γ/Γ^σ donnée par HOLSTEIN (1947) pour une tranche de vapeur d'épaisseur L telle que $\chi(k_0).L \gg 1$ est :

$$\frac{\Gamma}{\Gamma^\sigma} \approx \frac{1}{1,9} \chi(k_0).L [\pi \text{Log}(\chi(k_0).L/2)]^{1/2}$$

La diffusion multiple n'étant pas isotrope dans les conditions de nos expériences, le modèle de HOLSTEIN n'est pas en toute rigueur applicable. Il permet cependant de donner des ordres de grandeur convenables ce qui est le but poursuivi dans ce paragraphe. Une discussion plus rigoureuse du phénomène d'emprisonnement en champ fort est effectuée dans le § IV auquel on pourra se reporter. Avec le modèle de HOLSTEIN on obtient $\Gamma^\sigma/\Gamma \approx 0,07$ pour des densités de l'ordre de 2.10^{13} at/cm³. Le temps d'emprisonnement vaut donc environ 15 fois la durée de vie atomique. Il en résulte que pour $N \approx 2.10^{13}$ at/cm³

$$g^{(11)(00)}/\Gamma^\sigma \approx 0,05$$

Dans les conditions de densités précédentes, les termes de retour par collision vers le niveau $m = 0$ restent en première approximation négligeables et l'expression du rapport i_σ/i_π des intensités de fluorescence réémises est à un facteur multiplicatif $\lambda(N)$ dépendant de l'emprisonnement près :

$$i_\sigma/i_\pi \sim g^{(11)(00)}/\Gamma^\sigma \sim 0,05$$

Le rapport des intensités dépend donc linéairement du taux de transfert par collision et du temps d'emprisonnement de la composante σ dans la vapeur.

Le terme de collision $g^{(11)(00)}$ dépend linéairement de la densité N (l'approximation de collisions binaires est vérifiée jusqu'à des densités de l'ordre de 10^{17} at/cm³). Le temps d'emprisonnement a en général un comportement beaucoup plus compliqué en fonction de N excepté pour N grand (cf. partie IV).

Les ordres de grandeur précédents sont confirmés par l'étude expérimentale. L'emprisonnement de la composante σ dans la vapeur permet d'amplifier considérablement les effets de la dépolarisation produite par les collisions. En l'absence de ce phénomène, l'ordre de grandeur des taux de transfert est tel qu'il serait nécessaire de mettre en oeuvre d'autres techniques de mesures, ou d'augmenter la densité par un facteur 20 pour effectuer une détermination expérimentale précise des taux de transfert par collisions résonnantes.

4-3-Effets des gaz résiduels dans les cellules

Nous avons donné dans le § 1-1 un aperçu des effets produits par un gaz étranger autre que le Mercure, présent dans la cellule de mesure. Pour une pression de 10^{-3} torr de gaz résiduels, de l'Hélium pour fixer les idées (la nature du gaz résiduel ne changera pas profondément les conclusions), le taux de transfert entre les sous-niveaux Zeeman $m=0$ et $m=\pm 1$ par collisions non résonnantes Hg^*-X serait de $6 \cdot 10^{-4}$ Γ . (cf. par exemple FAROUX (1969)). Le rapport i_{σ}/i_{π} des intensités de fluorescence est alors la juxtaposition de deux contributions dont l'une $g^{(11)(00)}/\Gamma^{\sigma}$ provient des collisions résonnantes et l'autre g/Γ^{σ} provient du transfert par collisions avec le gaz résiduel.

Pour $N = 10^{13}$ at/cm³ et $P_{res} = 10^{-3}$ torr, les deux contributions sont du même ordre de grandeur en champ nul. Lorsque l'on augmente la valeur du champ, la contribution au transfert par collisions résonnantes diminue. Il ne restera donc plus, en champ très fort, en première approximation que la contribution au transfert provoquée par le gaz étranger (laquelle ne varie pas notablement en fonction du champ puisque le temps de collision associé aux processus non résonnants est en général beaucoup plus long -cf. partie II-B). A plus basse densité de Mercure ($N \approx 10^{12}$), la contribution au transfert des collisions résonnantes devient en champ nul beaucoup plus petite que la contribution due au gaz étranger et ses variations avec le champ seront totalement masquées.

Pour espérer effectuer des expériences probantes, il faut donc s'assurer que l'effet des gaz résiduels est négligeable à la densité N choisie

et donc pour $N \approx 10^{13}$ obtenir des cellules où le taux de gaz résiduels est tel que :

$$g/\Gamma \leq 10^{-4}$$

4-3-1-Etude des cellules à basse température. (Densités de Mercure $N \approx 10^{11}$ at/cm³).

Nous avons effectué une étude des variations de i_{σ}/i_{π} en fonction de la densité de Mercure pour différentes valeurs du champ. La valeur du champ étant fixée, on fait varier la température du point froid de la cellule entre $T = -40^{\circ}\text{C}$ et $T = +20^{\circ}\text{C}$. On passe ainsi de densités de 10^{10} at/cm³ à quelques 10^{13} at/cm³. Lorsque la température est inférieure à -30°C , les effets de la diffusion multiple du rayonnement sont pratiquement négligeables. On a donc $\Gamma^{\sigma} \approx \Gamma$. Le rapport des intensités de fluorescence est alors :

$$\frac{I_{\sigma}}{I_{\pi}} = \frac{g_{\sigma}}{\Gamma} + \frac{g}{\Gamma}$$

Pour des valeurs de la densité N , de l'ordre de 10^{11} at/cm³, le taux de transfert g_{σ} par collisions résonnantes $\text{Hg}^* - \text{Hg}$ vaut $2 \cdot 10^{-5}$ (en unités Γ). Il est donc totalement négligeable. On doit donc obtenir pour valeur du rapport R_{σ}/R_{π} des intensités obtenues expérimentalement, la valeur α représentant la correction de polariseurs. De fait on obtient une valeur légèrement supérieure de quelques 10^{-3} en général, variable selon les cellules, qu'il n'est pas possible en tous cas d'attribuer à une mauvaise détermination de l'imperfection du polariseur dans la mesure où cette dernière correction est bien établie (cf. § 3-3). Deux hypothèses ont alors été émises pour tenter d'interpréter le désaccord systématiquement observé. On a admis qu'il pouvait exister dans la lumière σ une composante parasite due à la fluorescence d'un des éléments du montage. Cette hypothèse a été écartée à l'aide des méthodes exposées dans le §3. Remarquons que ceci n'aurait pas conduit à des perturbations graves des mesures à haute densité puisque l'effet aurait été sensiblement constant en fonction de la densité et négligeable devant les contributions au transfert du Mercure à haute densité.

Beaucoup plus graves sont les conséquences de la seconde hypothèse qui suppose l'existence de gaz résiduels dans les cellules. Si en effet g/Γ vaut quelques 10^{-3} à basse température cela signifie en tenant compte de l'amplification par la diffusion multiple que pour des densités $N \approx 10^{13}$ at/cm³

le signal dû au transfert avec le gaz résiduel sera de l'ordre de grandeur ou supérieur à celui provenant des collisions résonnantes. Il est donc impossible dans ces conditions de faire une étude significative des variations des taux de transfert par collisions résonnantes avec le champ magnétique.

4-3-2-Mise en évidence et mesure des taux de transfert par les gaz résiduels

Le bien fondé de l'hypothèse précédente a été vérifié de la façon suivante. On s'est assuré tout d'abord que le signal résiduel σ était à une longueur d'onde différente de celle du signal π . Ceci est aisé à montrer à l'aide d'un filtre Hg^{198} placé dans le banc de détection. Il faut ensuite prouver que le signal parasite est aux fréquences respectives des photons σ^+ et σ^- émis par les sous-niveaux Zeeman $m = \pm 1$. Le principe de la méthode utilisée a été exposé dans les expériences de vérification du § 3. On utilise des filtres à Mercure isotopique contenant des isotopes différents de celui contenu dans la cellule. Ils sont placés en champ nul devant le photomultiplicateur. Si le signal résiduel σ provient d'un transfert par collisions avec un gaz étranger (le transfert par collisions résonnantes étant totalement négligeable), il doit comporter pour une valeur du champ une distribution en fréquence correspondant à la superposition des signaux émis par les sous-niveaux Zeeman $m = \pm 1$. Par conséquent, en balayant le champ de 0 à 10 kG, en présence d'un filtre à isotope impair (199 ou 201) placé dans le faisceau de détection, on doit obtenir deux signaux d'absorption aux valeurs du champ correspondant aux croisements des composantes $m = \pm 1$ du Mercure 198 de la cellule avec les composantes hyperfines de l'isotope impair en champ nul contenu dans le filtre (cf. FIG 4 et 5). C'est précisément ce que l'on a obtenu dans tous les cas (cf. FIG 5). La profondeur d'absorption a sensiblement la même amplitude pour les deux croisements. Ceci prouve que la composante résiduelle σ à basse température provient bien de la fluorescence de la vapeur de Mercure.

En raison des faibles taux de transfert par collisions résonnantes, elle ne peut donc provenir que du transfert par collisions avec des gaz résiduels. (L'effet des collisions du Mercure excité sur les parois est négligeable et entraîne vraisemblablement le quenching de l'excitation). Le profil d'émission de la cellule étant très étroit à basse température comparé à la largeur du

profil d'absorption du filtre (à température ambiante), l'absorption du rayonnement σ est totale. On peut donc à partir des résultats des mesures précédentes déterminer $(i_{\sigma+} + i_{\sigma-})/2i\pi$ avec précision et en déduire la valeur de g/Γ par une mesure directe. La correction de diffusion multiple à $T = -30^\circ\text{C}$ est négligeable. On a trouvé typiquement, selon les cellules, des valeurs de g/Γ de 10^{-3} à 10^{-2} . Il convient, dans ces expériences de vérifier par interposition du filtre sur le banc d'excitation qu'il ne subsiste pas de signal d'absorption (il révélerait l'excitation directe par la lampe des sous-niveaux Zeeman $m = \pm 1$).

4-3-3-Origines des gaz résiduels

On peut se demander pourquoi des quantités aussi importantes de gaz résiduels n'ont jamais été mises en évidence dans des expériences de collisions en phase vapeur. Ceci est en définitive probablement lié aux techniques de mesures adoptées. La présence d'un gaz étranger à 10^{-3} torr est gênante dans les expériences de transferts par collisions lorsque l'on mesure les intensités de fluorescence résultant du transfert. Ce sont en effet des expériences très sensibles. Elle l'est beaucoup moins lorsque la technique de mesure adoptée est l'effet Hanle. On obtient dans ce cas à basse température des signaux dont la largeur est la largeur naturelle Γ du niveau excité considéré. L'existence de gaz étranger dans la cellule peut être révélée par une largeur des courbes à basse température supérieure à la largeur naturelle Γ . Cependant, il n'est possible d'apprécier que 1 à 2 % de la largeur lorsque les conditions sont favorables, c'est-à-dire lorsque le rapport signal sur bruit est excellent et l'étalonnage du champ magnétique exempt de toute erreur systématique. Dans ces conditions on ne peut déceler la présence d'un gaz étranger que lorsque $g/\Gamma \gtrsim 10^{-2}$. En clair, les cellules que nous avons utilisées auraient passé sans encombre l'épreuve de l'effet Hanle. On peut tenter d'améliorer les estimations précédentes en travaillant dans une région de densités où la diffusion multiple affine les courbes de croisements de niveaux. La largeur peut ainsi être diminuée jusqu'à $0,3 \Gamma$. La valeur théorique de l'affinement par la diffusion multiple n'est cependant pas établie au % près de sorte qu'il sera difficile d'apprécier s'il existe ou non un élargissement résiduel.

Par contre, dans les expériences que nous effectuons, les effets d'un taux de transfert par collision de $10^{-3} \Gamma$ avec un gaz étranger sont parfaitement décelables à basse température et catastrophiques à haute température

comme on peut s'en assurer sur la figure 6 où nous avons reporté les résultats de mesures à la même densité de Mercure ($1,7 \cdot 10^{13}$ at/cm³) dans les mêmes conditions, pour deux cellules dont l'une contient des quantités négligeables ($g/\Gamma \approx 10^{-4}$) de gaz résiduels et l'autre des quantités de l'ordre de $2 \cdot 10^{-3}$ g.

Quelles sont les origines possibles des gaz résiduels ?

Il peut s'agir des gaz de scellement dégazés par les parois en pyrex ou du produit de la diffusion de l'Hélium gazeux contenu dans la pièce à travers les parois de silice fondue de la cellule. Il n'existe pas de méthode pour prouver à coup sûr l'une ou l'autre hypothèse. L'influence des scellements et en particulier du dernier scellement qui est effectué sur la cellule dans des conditions voisines du vide statique est importante. D'autre part, l'utilisation d'Hélium liquide dans la bobine supraconductrice entraîne la présence d'Hélium gazeux dans la pièce, à une pression supérieure à celle de l'Hélium dans l'atmosphère. Les cellules peuvent également présenter des microfuites difficilement décelables en vide dynamique.

Nous allons envisager successivement ces deux aspects.

1) Diffusion d'Hélium dans les parois de silice fondue

L'étude par les méthodes précédentes d'une cellule utilisée pendant deux mois dans les conditions expérimentales normales (présence d'Hélium liquide dans la pièce - transferts journaliers) a montré que l'augmentation du taux de transfert par collisions dû aux gaz résiduels est durant cette période de 10^{-3} g. En utilisant les sections efficaces de collision $Hg^*(6^3P_1)-He$ mesurées par exemple par FAROUX (1969), on aboutit à une variation de la pression d'Hélium dans la cellule de $1,6 \cdot 10^{-3}$ torr pour 60 jours, et à un taux moyen d'entrée de $2 \cdot 10^8$ at/s. L'épaisseur des parois de la cellule est 1 mm, la surface de la partie en silice fondue est de 38 cm². On en déduit un taux de diffusion moyen de $6,4 \cdot 10^6$ at/(s.cm²). Si l'on compare cette valeur à celle donnée par F.J. NORTON (1957) ou par HOLLAND (1966) on déduit que la pression d'Hélium dans la pièce est 10 fois la pression dans l'atmosphère (4μ) ce qui paraît un ordre de grandeur raisonnable.

Ces valeurs montrent qu'à moyen terme, la diffusion de l'Hélium à travers les parois de silice fondue n'est pas négligeable. Nous avons donc conservé la cellule qui a servi aux mesures rapportées au § 5 sous vide dans une

enceinte en pyrex en dehors de la période des expériences et en particulier au moment des transferts d'Hélium liquide dans la bobine. Une série d'expériences durant au maximum une semaine, le taux d'entrée d'Hélium pendant cette période est inférieur à 10^{-4} Γ compte tenu des précautions en vigueur ce qui a été confirmé par les mesures faites sur une cellule conservée et utilisée dans ces conditions.

2) Effets du dégazage au scellement

La distillation du Mercure est effectuée dans un vide meilleur que 10^{-6} torr. On peut considérer que la plupart des impuretés contenues dans l'amalgame sur feuille d'or est éliminée excepté si leur tension de vapeur est voisine de celle du Mercure (essentiellement de la vapeur d'eau). Le Mercure est transféré successivement dans des pièges en verre refroidis par Azote liquide ou carboglace. Chaque transfert est suivi d'un scellement. Ces scellements effectués sur pyrex provoquent un dégazage important des parois quand bien même celles-ci auraient été préalablement étuvées. On accumule ainsi dans les pièges, les impuretés provenant du dégazage du pyrex.

Celles-ci doivent s'éliminer quand on laisse ensuite se réchauffer le piège. Cependant, le dernier scellement, après transfert du Mercure dans la cellule est effectué dans des conditions critiques puisqu'elles sont quasiment celles du vide statique (l'obturation partielle de la paroi isole la cellule de la pompe alors que le pyrex est en fusion et est à même de dégazer). De plus, les techniques habituellement utilisées sont de conserver un piège à carboglace pour piéger le Mercure et l'empêcher de diffuser vers la pompe. Il n'est donc pas exclu que de faibles quantités de vapeur d'eau qui constitue l'essentiel des produits de dégazage des parois puissent en partie gagner la cellule au cours de cette opération. Nous avons donc légèrement modifié la méthode en supprimant tout piège lors des scellements. Il est certain que cette technique peut être très coûteuse en isotope de Mercure et donc prohibitive dans bien des cas ; on peut néanmoins espérer récupérer l'essentiel du Mercure en plaçant un piège à azote liquide à l'entrée de la pompe secondaire.

Ceci nous a permis d'obtenir une cellule pour laquelle la valeur du taux de transfert par collision avec les gaz résiduels est de l'ordre de 10^{-4} Γ .

La nécessité de piéger est une des caractéristiques de l'utilisation du Mercure que l'on ne retrouve pas lors du remplissage de cellules avec d'autres

éléments pour lesquels des pressions partielles de gaz résiduels beaucoup plus basses ont été obtenues sans difficulté.

On peut donner un ordre de grandeur des effets de dégazage au scellement de la façon suivante : selon HOLLAND (1966) un verre de type borosilicate dégaze $0,6 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^3/\text{cm}^2$ de surface chauffée (NTP) à l'étuvage à 400°K . En admettant que la surface chauffée lors du scellement soit de l'ordre de 1 cm^2 et que la totalité des produits de dégazage soit collectée dans la cellule de volume 20 cm^3 , on est conduit à des pressions de gaz résiduels de $2 \cdot 10^{-3}$ torr. En fait, le pyrex est porté à 1400° lors du scellement et dégaze selon DUSHMAN (1962) des quantités de gaz au moins 100 fois plus importantes que les valeurs précédentes obtenues à l'étuvage. Mais il est bien clair aussi que la plus grande partie des gaz sera évacuée par la pompe secondaire lorsqu'il n'existe pas de piège à basse température à proximité.

4-4-Effets de l'inhomogénéité du champ sur l'emprisonnement des photons de polarisation σ .

Dans les conditions de densité de Mercure où ont été réalisées les expériences sur les collisions résonnantes $\text{Hg}^* - \text{Hg}$ ($N \lesssim 3 \cdot 10^{13} \text{ at/cm}^3$), l'expression du rapport I_σ/I_π des intensités de fluorescence est donnée par (cf. appendice I et § IV)

$$I_\sigma/I_\pi = \lambda(N) g^{(11)(00)}/\Gamma^\sigma$$

Lorsque la séparation en énergie des sous-niveaux Zeeman est de l'ordre de quelques largeurs Doppler, le temps d'emprisonnement $\tau^\sigma = (\Gamma^\sigma)^{-1}$ est indépendant de la valeur du champ dans la mesure où les taux de transfert par collisions $g^{(11)(00)}$ restent négligeables devant Γ^σ et où le couplage entre l'emprisonnement et les collisions est faible. Les photons émis par les trois sous-niveaux Zeeman sont emprisonnés indépendamment dans la vapeur (cf. § IV).

Les variations du rapport des intensités de fluorescence avec le champ pourront être attribuées aux variations des taux de transfert par collisions si les hypothèses précédentes concernant l'emprisonnement sont correctes. Ce point est donc d'importance cruciale et nous l'avons vérifié expérimentalement de la façon suivante :

4-4-1-Mise en évidence expérimentale des effets d'inhomogénéité.

On utilise pour tester l'éventuelle dépendance en fonction du champ

de l'emprisonnement, une cellule contenant Hg^{198} et du Xénon à la pression $p \approx 4$ torr. Le taux de transfert par collisions avec le Xénon est alors tel que

$$g/\Gamma \approx 2,4$$

A haute densité de Mercure ($N \sim 10^{13}$ at/cm³), on obtient ainsi des valeurs de g/Γ^σ valant de l'ordre de 50. Les collisions sont donc très nombreuses pendant le temps d'emprisonnement. Quel que soit le sous-niveau Zeeman initialement excité, la population des sous-niveaux est redistribuée selon les poids statistiques indépendamment de la nature de l'interaction conduisant à l'équilibre. L'expression des intensités de fluorescence réémises par la vapeur dans les conditions précédentes est donc en première approximation indépendante des taux de transfert par collision entre les sous-niveaux Zeeman.

On obtient plus précisément à la limite $g/\Gamma^\sigma \gg 1$ (cf. Appendice I et partie IV)

$$I_\sigma \approx \lambda_\sigma / (2\Gamma^\sigma + \Gamma^\pi) \quad I_\pi \approx \lambda_\pi / (2\Gamma^\sigma + \Gamma^\pi)$$

$$I_\sigma / I_\pi = \lambda_\sigma / \lambda_\pi = \lambda(N) \approx 2$$

Le rapport des intensités de fluorescence vaut sensiblement 2 comme on peut le vérifier expérimentalement ou le prévoir théoriquement avec divers modèles (cf. partie IV). Leurs expressions ne dépendent que de Γ^σ et de Γ^π . Si les intensités de fluorescence sont indépendantes du champ on pourra en conclure que Γ^σ et Γ^π le sont aussi.

C'est bien là ce que l'on observe expérimentalement au centre du solénoïde (homogénéité $5 \cdot 10^{-3}$ dans 2 cm). Les intensités I_σ et I_π sont constantes en fonction du champ. Le rapport I_σ / I_π vaut 2 à quelques 10^{-2} près.

Par contre, lorsque l'on effectue la même expérience à 3 cm du centre où l'homogénéité a décliné par un facteur 10, on observe les phénomènes suivants (cf. FIG 7) : le rapport I_σ / I_π vaut encore 2 et varie de quelques 10^{-2} avec le champ, mais à l'opposé de la situation rencontrée précédemment les intensités I_σ et I_π décroissent fortement en fonction du champ. On doit donc admettre que sous certaines conditions, l'emprisonnement peut dépendre de la valeur du champ.

4-4-2-Interprétation

Remarquons qu'à intensité lumineuse constante (terme source constant), on peut être tenté d'interpréter les variations de I_σ et I_π avec le champ dans la région où il est très inhomogène ($5 \cdot 10^{-2}$) à des effets géométriques provenant de la modification de la direction de \vec{B} par rapport à la direction de polarisation de l'excitation. Cependant l'ordre de grandeur des angles entre \vec{B} et la direction de polarisation de la lumière d'excitation est donné par l'inhomogénéité $5 \cdot 10^{-2}$

du champ. Il ne peut donc en résulter d'effet important.

La décroissance de I_σ et I_π avec le champ disparaît lorsque l'on se trouve dans la région où le champ est homogène. On est par conséquent conduit à attribuer les variations de I_σ et I_π avec le champ aux effets de l'inhomogénéité sur les temps d'emprisonnement. Un modèle simple permet de comprendre le phénomène et d'en donner une interprétation qualitative.

Que peuvent être les effets de l'inhomogénéité sur l'emprisonnement des photons de polarisation π ?

La raie d'absorption ou d'émission correspondant au sous-niveau Zeeman $m = 0$ est déplacée par le champ de manière négligeable, de sorte qu'en tous les points de la cellule, l'inhomogénéité du champ n'est pas "vue" par les photons π . Le temps d'emprisonnement $(\Gamma_\pi)^{-1}$ ne peut donc dépendre du champ magnétique ni de ses gradients.

Considérons par contre un photon de polarisation σ^+ par rapport au champ, émis au point \vec{r} de la cellule par un atome dans le sous-niveau Zeeman $m = +1$. Supposons pour simplifier que les atomes soient immobiles dans le référentiel du laboratoire. Le photon émis a l'énergie $k_0 + \omega(\vec{r})$. Il pourra être réabsorbé par un atome situé au point \vec{r}' , la distance $|\vec{r} - \vec{r}'|$ dépendant des conditions de pression dans la vapeur. En raison de l'inhomogénéité du champ, le champ au point \vec{r}' est $B(\vec{r}')$ différent de $B(\vec{r})$. Il en résulte que $k_0 + \omega(\vec{r}')$ est différent de l'énergie $k_0 + \omega(\vec{r})$ du photon. Celui-ci ne sera donc pas réabsorbé si le champ est inhomogène. On peut donc conclure dans ce modèle grossier que l'inhomogénéité du champ entraîne une certaine transparence de la vapeur pour les photons σ . L'augmentation de la valeur du champ entraîne alors une diminution du temps d'emprisonnement $(\Gamma^\sigma)^{-1}$, et une diminution des intensités I_σ et I_π , observée dans la figure 7.

La réalité est beaucoup plus complexe puisque l'on doit tenir compte du mouvement des atomes. Si l'on considère l'ensemble des photons σ émis par le volume δV de vapeur situé au point \vec{r} , on peut admettre que l'extension en fréquence de leur spectre centré à la fréquence $k_0 + \omega(\vec{r})$ est de l'ordre de la largeur Doppler Δ . Les atomes susceptibles de réabsorber les photons au point \vec{r}' ont un profil d'absorption centré à la fréquence $k_0 + \omega(\vec{r}')$. Ce décalage en fréquence entre les deux profils diminue évidemment la probabilité de réabsorption moyenne et donc le temps d'emprisonnement τ_σ de ces photons dans la vapeur.

Les effets de l'inhomogénéité sur τ_{σ} seront évidemment négligeables si elle conduit à des déplacements en fréquence petits devant la largeur Doppler. Pour essayer de préciser à partir de quelles valeurs de l'inhomogénéité on peut attendre des effets notables sur l'emprisonnement, on peut faire le raisonnement approximatif suivant. On sait qu'en l'absence d'inhomogénéité, pour un profil gaussien comme le profil Doppler, le temps d'emprisonnement aux grandes épaisseurs optiques est en première approximation proportionnel à l'épaisseur optique (cf. partie IV) et donc inversement proportionnel à la "largeur" Δ du profil. Imaginons, ce qui reste évidemment très loin de la réalité, que l'inhomogénéité du champ magnétique soit distribuée microscopiquement de façon aléatoire suivant une loi gaussienne de "largeur" Δ' . Tout se passe alors pour les photons σ comme s'il n'y avait plus d'inhomogénéité mais une probabilité de réabsorption ayant une "largeur" égale à $(\Delta^2 + \Delta'^2)^{1/2}$; le temps d'emprisonnement varie alors avec le champ comme $1/(\Delta^2 + \Delta'^2)^{1/2}$ et donc très lentement tant que $\Delta' < \Delta$. La véritable distribution de l'inhomogénéité est évidemment très différente. Cependant, le résultat du calcul de l'influence de l'inhomogénéité sur le temps d'emprisonnement effectué par la méthode de MONTE CARLO (cf. partie IV) montre un comportement qualitativement peu différent de celui qu'on obtient avec une distribution gaussienne de "largeur" $\Delta' = \delta\omega \cdot \sqrt{2}$ tant que $\Delta' < \Delta$ ($\delta\omega$ est la valeur quadratique moyenne du déplacement de fréquence dû à l'inhomogénéité).

Au voisinage du centre d'un solénoïde fini, une inhomogénéité $(H_{\max} - H_{\min})/H$ de l'ordre de $5 \cdot 10^{-3}$ correspond typiquement à une valeur quadratique moyenne $\delta H/H \approx 0,8 \cdot 10^{-3}$, soit $\Delta' = \delta\omega \cdot \sqrt{2} \approx 1,2 \cdot 10^{-3} \mu_B \cdot g_J \cdot H/\hbar$ et avec $\Delta \approx 2\pi \cdot 600$ MHz

$$\Delta'/\Delta \approx 0,4 \cdot 10^{-5} \cdot H \text{ (gauss)}$$

On prévoit ainsi que le temps d'emprisonnement τ_{σ} ne diminuera pas de plus de 5% pour une cellule de 2 cm placée au centre de la bobine supraconductrice. Si par contre on déplace la cellule de quelques centimètres de sorte que l'inhomogénéité soit multipliée par un facteur de l'ordre de 10, on prévoit que τ_{σ} sera considérablement réduit (cf. partie IV), de l'ordre de 40% au champ maximum.

Les ordres de grandeur précédents semblent qualitativement en accord avec les résultats des expériences réalisées dans des conditions où l'inhomogénéité du champ vaut $5 \cdot 10^{-2}$. Il est néanmoins nécessaire d'effectuer des vérifications expérimentales plus poussées au centre du solénoïde de manière à être sûr de bien

borner les variations de Γ^σ avec l'inhomogénéité du champ. Rappelons en effet que le rapport I_σ/I_π des intensités de fluorescence est directement proportionnel à $(\Gamma^\sigma)^{-1}$ dans le cas où le transfert provient des collisions résonnantes Hg^*-Hg .

4-4-3-Résultats des vérifications effectuées au centre du solénoïde

Remarquons tout d'abord, que les expériences effectuées avec une cellule à Xénon au centre du solénoïde révèlent des variations de I_σ et I_π inférieures à 1% dans un domaine de 80 kG. Les variations observées peuvent en tout état de cause être provoquées par les fluctuations de la lampe. De plus, le gain d'un facteur 10 sur l'homogénéité par rapport aux conditions de la figure 7 autorise à penser que pour obtenir à même densité de Mercure des variations comparables il faudra faire varier le champ dans un domaine 10 fois plus grand. Tout effet important semble donc a priori exclu dans le domaine de 80 kG au centre du champ.

La méthode la plus simple pour en avoir une confirmation directe dans les conditions expérimentales adoptées pour l'étude des collisions résonnantes Hg^*-Hg est la suivante :

On utilise deux cellules contenant l'isotope 198 du Mercure. L'une d'entre elles contient une faible quantité de gaz étrangers ($g/\Gamma \approx 2 \cdot 10^{-3}$). Dans la seconde l'effet des gaz résiduels est négligeable ($g/\Gamma \approx 10^{-4}$). Les deux cellules sont utilisées dans les mêmes conditions géométriques et de température. Dans les conditions des expériences pour lesquelles $(g^\sigma + g)/\Gamma^\sigma \ll 1$ l'expression du rapport des intensités de fluorescence est :

$$\rho(H) = I_\sigma/I_\pi \approx \lambda(N) \left(\frac{g^\sigma + g}{\Gamma^\sigma} \right).$$

Les rapports ρ des intensités de fluorescence mesurés pour chaque cellule à la même densité de Mercure diffèrent donc de la quantité $\lambda(N)g/\Gamma^\sigma$ où g dépend très faiblement du champ magnétique (on a vérifié qu'à basse température les variations avec le champ du taux de transfert g avec le gaz résiduel vérifient $\Delta g/g < 3\%$). Par conséquent, si le temps d'emprisonnement $(\Gamma^\sigma)^{-1}$ ne dépend pas du champ magnétique, les courbes obtenues en fonction du champ avec les deux cellules doivent se déduire à une excellente approximation par une translation g/Γ^σ indépendante de la valeur du champ. C'est bien ce que l'on observe sur la figure 6 pour $N = 1,7 \cdot 10^{13}$ at/cm³. On peut donc conclure dans la limite des incertitudes expérimentales que $(\Gamma^\sigma)^{-1}$ ne dépend pas du champ magnétique lorsque l'homogénéité vaut $5 \cdot 10^{-3}$. Lorsqu'au contraire elle est de $5 \cdot 10^{-2}$ (à 3 cm du

centre du solénoïde) des effets de l'ordre de 20% sont visibles sur les intensités σ provoquant une décroissance parasite du rapport I_{σ}/I_{π} qui n'est pas celle cherchée.

Ces conclusions sont valables pour des champs magnétiques inférieurs à 80 kG. Il est bien clair que l'augmentation de la valeur maximum du champ à 200 kG en utilisant une bobine de Bitter exigera une nouvelle analyse et que les effets de l'inhomogénéité ne seront peut-être plus négligeables et très difficiles à corriger.

Remarquons qu'un phénomène très analogue au précédent est bien connu en astrophysique. Il s'agit de la diminution des temps d'emprisonnement dans les milieux comportant de fortes "inhomogénéités" du champ de vitesse.

4-5-Conclusions

L'ensemble des vérifications que nous avons effectuées et qui ont été exposées au long des paragraphes 3 et 4 a permis de définir les conditions physiques optimum pour la mise en évidence des variations avec le champ du taux de transfert par collisions résonnantes entre les sous-niveaux Zeeman $m=0$ et $m=\pm 1$ de l'isotope 198 du Mercure. Elles nous ont permis de préciser le rôle de l'emprisonnement dans ces expériences et de mettre en évidence les effets parasites que l'on pouvait en attendre. Elles nous ont permis de révéler l'importance du rôle des gaz résiduels contenus dans les cellules et d'en définir la valeur maximum admissible. Ceci nous a permis de réaliser l'expérience sur le Mercure dans des conditions correctes. L'extension au Sodium (cf. § III) n'a ensuite posé aucun problème dans la mesure où les paramètres importants étaient clairement définis. On a pu ainsi attribuer immédiatement l'absence de variations constatée à basse température dans le cas des collisions $\text{Na}-\text{Na}^*$, à l'existence d'un gaz étranger dans la cellule scellée utilisée. L'augmentation de la température au maximum admissible a permis de faire apparaître la contribution au transfert des collisions résonnantes. L'expérience sur le sodium a ensuite été réalisée sur une cellule montée sur banc de pompage puisque cette solution est aisément praticable dans ce cas.

Dans le cas du Mercure, il est difficile d'envisager sérieusement l'utilisation d'une cellule montée sur banc de pompage. Il faudrait en effet disposer de très grandes quantités de Mercure isotopique. De plus, les conditions

d'utilisation manqueraient nécessairement de souplesse. Une autre solution envisagée a été d'utiliser une cellule connectée à un récipient de grand volume permettant de diminuer la pression de gaz résiduels à des taux admissibles. Nous n'avons pas eu à utiliser ces solutions dans la mesure où nous avons obtenu par la méthode décrite au § 4 une cellule satisfaisant au critère $g/\Gamma \approx 10^{-4}$.

Il est cependant probable que des études plus fines comme celles du transfert entre les sous-niveaux Zeeman $m = \pm 1$, ou des études en plus haut champ magnétique du transfert $m = 0 \rightarrow m = \pm 1$ exigeront l'adoption de solutions de ce genre.

5 - RESULTATS DES EXPERIENCES - VARIATIONS AVEC LE CHAMP MAGNETIQUE DU TAUX

DE TRANSFERT PAR COLLISIONS RESONNANTES

Nous rappelons brièvement les conditions de l'étude effectuée avec une cellule contenant de faibles quantités de gaz résiduels. Puis nous discutons les variations des taux de transfert par collisions résonnantes avec le champ et l'influence des diverses corrections effectuées.

5-1-Conditions expérimentales - (cf. § 4-1)

Les expériences ont été effectuées point par point en fonction du champ, pour différentes densités de Mercure comprises entre 10^{13} et $2 \cdot 10^{13}$ at/cm³, et pour les deux sens du champ magnétique. La valeur de la correction d'imperfection du polariseur α a été obtenue par les deux méthodes décrites au § 4 et contrôlée en cours d'expérience.

La qualité de la cellule a été testée par la méthode décrite au § 4-3 par absorption à basse température du rayonnement de fluorescence par des filtres à Hg¹⁹⁹ et Hg¹⁹⁸. Dans des conditions analogues à celles de la figure 5, on n'observe plus alors de signal d'absorption à 3,5 et 7,5 kG. En bornant l'amplitude des signaux d'absorption par le bruit (provenant de la lampe essentiellement) sur la voie σ , on obtient ainsi un majorant valant $3 \cdot 10^{-4}$ pour g/Γ . Pour affiner cette détermination, on effectue à l'aide du voltmètre solartron un grand nombre de mesures, aux valeurs du champ correspondant aux deux croisements, et en champ plus

fort où il n'existe plus de possibilités de croisements ($H > 10$ kG). Par différence des différentes mesures on obtient une meilleure estimation $g/\Gamma \approx 10^{-4}$ mais l'écart quadratique moyen est de l'ordre en pratique de 10^{-4} . Une détermination plus précise est difficile en raison du mauvais rapport signal sur bruit existant à basse température.

Entre les expériences, la cellule a été conservée sous vide (enceinte de pyrex sous vide primaire). On n'a pas constaté d'augmentation de la pression du gaz résiduel au cours des expériences (dans la limite de la précision des mesures précédentes).

Les valeurs des intensités I_σ et I_π mesurées 10 fois pour chaque valeur du champ en croisant les mesures et ensuite moyennées, sont corrigées de la lumière parasite de la pièce. Cette correction représente au maximum 0,5 % de l'intensité du signal σ . Les valeurs sont ensuite corrigées de la lumière parasite de la lampe provenant des réflexions sur les faces de la cellule. On détermine cette correction en plongeant le queusot de la cellule dans l'azote liquide au cours de chacune des séries de mesures. La correction est environ 0,5 % de l'intensité du signal σ en raison des précautions particulières que nous avons prises pour obtenir un bon isolement optique des voies d'excitation et de détection.

On détermine ensuite la valeur R_σ/R_π du rapport des intensités de fluorescence ainsi corrigées. La correction de l'imperfection des polariseurs $\alpha = 0,051$ est ensuite globalement appliquée aux résultats.

La correction essentielle effectuée est donc la correction de polariseur. Bien que les méthodes décrites au § 3 permettent de vérifier la cohérence des mesures et la petitesse de l'erreur systématique sur la détermination, il est prudent de se placer dans des conditions telles que la correction soit petite comparée à la valeur de I_σ/I_π . C'est une première raison pour travailler à des densités de l'ordre de 10^{13} atomes/cm³. Une seconde raison est l'augmentation avec la densité de la valeur du rapport signal/bruit pour l'intensité σ .

Le choix de la région de densité utilisée dans les expériences a été en outre dicté par les exigences suivantes (cf. § 1-3) :

Le terme de transfert par collisions dû aux gaz résiduels doit être petit comparé au taux de transfert par collisions résonnantes, y compris pour les grandes valeurs du champ. Le taux de transfert entre les sous-niveaux Zeeman $m=0$ et $m=\pm 1$ vaut en champ nul (OMONT 1967) :

$$g^\sigma = g^{(11)(00)} = 1.55 \cdot 10^{-16} \Gamma N$$

La condition $g \ll g^{(11)(00)}$ se traduit donc par :

$$N \gg 6 \cdot 10^{11} \text{ at/cm}^3$$

Pour $N \sim 10^{13} \text{ at/cm}^3$, on a donc $g < 6 \cdot 10^{-2} \cdot g^{(11)(00)}$

D'autre part, l'emprisonnement ne doit pas être trop important ce qui impose de ne pas travailler à des densités N trop élevées. L'expression du rapport des intensités peut se mettre sous la forme (cf. appendice I et partie IV) :

$$\rho = I_\sigma / I_\pi = \lambda(N) \frac{g^\sigma}{\Gamma^\sigma + g^\sigma}$$

Pour que l'expression du rapport soit linéaire en fonction du taux de transfert par collision il est nécessaire que Γ^σ inverse du temps d'emprisonnement soit grand comparé à g^σ .

Il faut donc se placer dans des conditions telles que

$$\Gamma^\sigma \gg g^\sigma$$

conduisant à

$$\rho = I_\sigma / I_\pi \approx \frac{\lambda_\sigma}{\Gamma^\sigma} \cdot g^{(11)(00)}$$

pour lesquelles l'interprétation des résultats expérimentaux est la plus simple. La difficulté essentielle est que l'on ne connaît pas expérimentalement ou théoriquement la dépendance précise de $\Gamma^\sigma(N)$ en fonction de N . Il faut donc l'estimer à partir des résultats expérimentaux. On est conduit ainsi à des valeurs de Γ^σ de quelques $10^{-2} \Gamma$ pour $N \approx 10^{13} \text{ at/cm}^3$. A plus fortes densités, la décroissance de Γ^σ est sensiblement en $1/N$ (cf. partie IV).

Pour $N \approx 10^{13} \text{ at/cm}^3$, les conditions sont donc telles que :

$$\Gamma^\sigma \gg g^{(11)(00)} \gg g$$

La région de densité que l'on peut utiliser pour effectuer les expériences est donc très limitée, d'une part par la présence du gaz résiduel qui exclut de pouvoir travailler à basse température où par ailleurs le rapport signal sur bruit sera mauvais, d'autre part par la présence de l'emprisonnement qui interdit de travailler à trop haute température où pourtant les collisions résonnantes auraient des effets plus spectaculaires.

Il faut ajouter à ces conditions une autre liée à l'imperfection

des polariseurs. Il faut en effet que la correction de I_σ dans I_π soit négligeable ce qui est réalisé pour des valeurs de I_σ/I_π inférieures ou de l'ordre de 0.20.

5-2-Variations avec le champ de $\rho = I_\sigma/I_\pi$

Nous donnons sur la figure 8 le réseau de courbes obtenues en fonction du champ magnétique pour des valeurs de la densité comprises entre $9 \cdot 10^{12}$ et $2 \cdot 10^{13}$ at/cm³, correspondant à des températures du point froid sensiblement comprises entre 4 et 12°C.

La valeur de I_σ/I_π dépend donc fortement de la valeur du champ à densité fixée et à champ fixé de la valeur de la densité.

5-2-1-Estimations expérimentales des caractéristiques de l'emprisonnement

On peut estimer à partir des mesures en champ faible la valeur de $\lambda(N)/\Gamma^\sigma$. On connaît en effet la valeur du taux de transfert $g^{(11)(00)}$ par collisions, en champ nul, déterminée par OMONT (1967) et DODSWORTH et al. (1972). La variation du taux de transfert entre 0 et 3 kG est au maximum de 5 %, de sorte que l'approximation consistant à remplacer $g^{(11)(00)}(H)$ par sa valeur en champ nul est justifiée. On obtient ainsi pour $N = 1,7 \cdot 10^{13}$, $\frac{\lambda\Gamma}{\Gamma^\sigma} \approx 39$. On peut comparer cette valeur à celle obtenue à l'aide des courbes de la figure 6. On a déterminé par mesure à basse température le taux de gaz résiduels ($g/\Gamma \approx 2 \cdot 10^{-3}$). Le facteur de translation entre les deux courbes est $\frac{\lambda}{\Gamma^\sigma} \cdot g = 0,08$. On en déduit pour $N = 1,7 \cdot 10^{13}$ at/cm³ que $\lambda\Gamma/\Gamma^\sigma$ est de l'ordre de 40. Les deux estimations sont donc en bon accord.

L'ordre de grandeur de $\lambda\Gamma/\Gamma^\sigma$ que nous venons de donner montre clairement l'importance du phénomène d'emprisonnement pour l'observation des collisions résonnantes dans les conditions expérimentales précédentes (cf. partie IV).

5-2-2-Variations en fonction du champ à densité fixée de $\rho = I_\sigma/I_\pi$

A densité fixée, nous avons fait varier le champ de 3 kG à 77 kG. Les variations de I_σ/I_π en fonction du champ sont de plus d'un facteur 3 dans ce domaine (cf. FIG 8). Compte tenu des vérifications que nous avons exposées précédemment, nous pouvons dire qu'il s'agit là des variations avec le champ de la section efficace de collisions résonnantes.

Il aurait été important de façon à normaliser les résultats obtenus à différentes densités de connaître la valeur de ρ en champ nul. Ceci est

évidemment possible sur le plan expérimental mais n'offre aucun intérêt car les grandeurs que l'on aurait pu ainsi obtenir ne sont pas reliées de manière simple à celles obtenues en champ fort (supérieur à 2 kG). La diffusion multiple ne présente pas les mêmes caractères en champ nul et champ fort. En champ nul, les trois sous-niveaux Zeeman ont la même énergie. La diffusion multiple dépolarise donc le rayonnement. Dès que les énergies des sous-niveaux diffèrent de plus de quelques largeurs Doppler, la dépolarisation par la diffusion multiple cesse. Les deux domaines de champ magnétique sont donc le siège de processus différents et I_{σ}/I_{π} n'y a pas la même expression. Cependant, ceci ne restreint pas du point de vue des collisions, l'intérêt de l'étude puisque la théorie prévoit que la variation des sections efficaces dans le domaine 0-3 kG est très petite. (cf. § I-B).

5-3-Normalisation des résultats

Dans les conditions où ont été réalisées les expériences, l'expression du rapport des intensités de fluorescence dépend linéairement du taux de collision $g^{(11)(00)}$ et d'un facteur λ/Γ^{σ} qui représente les effets de l'emprisonnement. Ce facteur dépend a priori d'un grand nombre de paramètres : des conditions géométriques de l'excitation, des dimensions de la cellule, de la distribution spectrale du rayonnement incident, des conditions de pression dans la vapeur. Aucun modèle analytique ne permet à l'heure actuelle d'en tenir compte sur le plan théorique (cf. partie IV). De façon à comparer les variations expérimentales du taux de transfert avec le champ aux prévisions théoriques il est nécessaire d'éliminer λ/Γ^{σ} . Dans les conditions où nous avons effectué les expériences, λ/Γ^{σ} ne dépend pas du champ magnétique. Les expériences décrites au § 4 ont permis de vérifier cette hypothèse.

La méthode la plus simple permettant d'éliminer le facteur λ/Γ^{σ} est donc de normaliser, pour une série de mesures à densité fixée, les valeurs de $\rho(N,H)$ à une valeur du rapport en champ magnétique faible. La normalisation du rapport à la valeur moyenne expérimentale en champ nul n'est pas possible pour les raisons que nous avons exposées ci-dessus (cf. § 5-2-2). On obtient ainsi la quantité $\eta(H)$

$$\eta(H) = \frac{\rho(H)}{\rho(H_0)} = g^{(11)(00)}(H,N) / g^{(11)(00)}(H_0,N)$$

Le terme de collision dépendant linéairement de la densité N dans la mesure où l'hypothèse de collisions à deux corps est largement vérifiée, l'expression $\eta(H)$ obtenue par cette méthode ne doit plus dépendre de la densité si les conditions expérimentales adoptées sont correctes. On a donc une méthode indirecte pour tester la validité des hypothèses du modèle que nous utilisons pour interpréter nos expériences et dont l'assertion principale est de pouvoir décomposer I_{σ}/I_{π} en un produit de deux termes, l'un dépendant de l'emprisonnement et indépendant du champ (cf. §4), l'autre fonction du taux de transfert par collisions résonnantes.

Le choix de la valeur H_0 à adopter pour réaliser la normalisation précédente n'est pas critique. Elle ne doit cependant pas être trop grande de façon que la section efficace de collision ne se soit pas écartée notablement de la valeur en champ nul qui a été déterminée par d'autres méthodes et pour laquelle on sait valables les approximations utilisées dans la théorie.

Elle ne doit pas non plus être trop faible de façon à éliminer d'éventuels phénomènes parasites possibles, tels ceux produits par le passage d'un régime de diffusion multiple isotrope à un régime anisotrope, ou l'excitation directe des sous-niveaux Zeeman $m = \pm 1$ par les photons des ailes de la raie émise par la lampe (ces ailes lorentziennes sont négligeables à 3 largeurs Doppler du centre de la raie dans le cas du niveau 6^3P_1 et la présence d'un polariseur placé en π à l'excitation doit encore réduire les effets possibles), ou d'éventuels effets de dispersion anormale (cf. § IV).

Nous avons choisi de normaliser les résultats pour la valeur $H_0 = 5$ kG du champ en utilisant pour $\rho(H_0)$ la valeur moyenne des résultats expérimentaux. On obtient ainsi la courbe de la figure 9 sur laquelle on a reporté les résultats obtenus pour des densités supérieures à 10^{13} at/cm³. Les valeurs de $\eta(H)$ ainsi obtenues sont à une bonne approximation indépendantes de la densité. Il ne semble pas en effet qu'il existe d'effets systématiques importants corrélés à la valeur de la densité.

Pour des valeurs plus faibles de la densité ($N \leq 9,5 \cdot 10^{12}$), les courbes sont de plus en plus difficiles à exploiter de manière précise dans la mesure où la correction de polariseur représente 50 % ou plus du résultat expérimental en champ nul. Une erreur systématique dans la détermination de α pourrait donc se traduire par une détermination très erronée de $\eta(H)$. De plus les signaux

de fluorescence σ sont petits et le rapport signal sur bruit devient mauvais. Les points obtenus pour $N = 9,5 \cdot 10^{12}$ at/cm³ semblent après normalisation se situer systématiquement environ 5 % au-dessus de ceux donnés dans la figure 9 en champ fort. Ceci pourrait être l'indice d'une contribution au transfert non négligeable des collisions avec les gaz résiduels de la cellule dont la contribution va augmenter en valeur relative lorsque la densité décroît et lorsque le champ croît (cf. § 5-4). Mais il s'agit plus probablement des conséquences de l'imprécision des mesures à ces densités faibles.

5-4-Estimation des incertitudes sur $\eta(H)$

Moyennant certaines hypothèses et corrections des signaux, $\eta(H)$ représente à un facteur constant près, le taux de transfert par collisions résonnantes entre les sous-niveaux Zeeman 0 et ± 1 . Nous allons examiner le bien fondé de ces hypothèses et les incertitudes qu'elles peuvent entraîner sur les résultats expérimentaux, en particulier en champ fort.

Les trois points examinés seront : l'influence de la correction de l'imperfection du polariseur, le caractère négligeable des termes de retour par collisions résonnantes et l'ordre de grandeur des perturbations introduites par le faible taux de gaz résiduels.

• Imperfection des polariseurs

Deux aspects sont à examiner. D'une part quelle va être l'influence de la petite correction de lumière σ dans la lumière π que nous n'avons pas faite. D'autre part, quelle peut être l'influence d'une erreur systématique sur la détermination de α .

En ce qui concerne le premier point, la procédure adoptée surestime légèrement la valeur de $\eta(H)$. Dans les conditions où $N \approx 10^{13}$ at/cm³, l'erreur relative en haut champ est au maximum de 1 % et donc totalement négligeable.

En ce qui concerne le second point, une erreur systématique de 10^{-3} en valeur absolue sur α entraîne une incertitude de 2% en valeur relative sur la valeur de η , pour la valeur maximum du champ. Ceci reste largement inférieur à l'incertitude expérimentale sur la détermination, de l'ordre de 10 %.

• *Influence des termes de retour par collisions*

Lorsque l'on ne néglige pas les termes de retour par collision, l'expression de $\eta(H)$ devient en première approximation (cf. Appendice 1) :

$$\eta(H) = \frac{g^\sigma(H)}{g^\sigma(H_0)} \frac{\Gamma^\sigma + g^\sigma(H_0)}{\Gamma^\sigma + g^\sigma(H)}$$

La méthode qui consiste à assimiler $\eta(H)$ au premier facteur surestime donc la valeur de $g^\sigma(H)/g^\sigma(H_0)$. En admettant pour $N \approx 10^{13}$ que Γ^σ est de l'ordre de $5 \cdot 10^{-2}$ on trouve en champ fort que l'incertitude relative sur la détermination de η est de l'ordre de 3%.

• *Influence des gaz résiduels*

La valeur de η mesurée s'exprime en réalité de la façon suivante lorsque l'on tient compte d'un faible taux g de gaz résiduels dans la cellule :

$$\eta(H) = \frac{g + g^\sigma(H)}{g + g^\sigma(H_0)}$$

Posant $y = g/g^\sigma(H_0)$ on trouve que :

$$\eta_0 = g^\sigma(H)/g^\sigma(H_0) = \eta(1+y) - y$$

Il en résulte, en admettant que $g/\Gamma \approx 10^{-4}$ ce qui constitue les résultats de nos estimations de l'effet des gaz résiduels, que pour la valeur maximale du champ l'incertitude relative sur la valeur de η est de 9% à $N = 1,3 \cdot 10^{13}$ at/cm³ et de 6% à $N = 1,7$ et $2 \cdot 10^{13}$ at/cm³. Ceci constitue un ordre de grandeur des effets possibles. La valeur de η pour $H \approx 80$ kG étant de l'ordre de 0,30, on déduit que les effets des gaz résiduels peuvent introduire dans cette valeur une contribution parasite respectivement de 0,03 et 0,02. Cependant, l'absence de corrélation claire entre la valeur de saturation en champ fort et la valeur de la densité nous autorise à penser que l'ensemble des effets systématiques précédents est en définitive petit comparé à l'incertitude due à la dispersion des mesures. (Excepté peut-être dans le cas où $N = 9,5 \cdot 10^{12}$ at/cm³ discuté dans le § 5-3).

6 - COMPARAISON AUX PREVISIONS THEORIQUES

6-1-Moyenne des résultats théoriques sur la vitesse relative des atomes

Le paramètre τ utilisé dans la partie théorique (§ I-B) est proportionnel à $B.v^{-3/2}$ où v est la vitesse relative des atomes. Pour une valeur fixée du champ, les résultats obtenus au § I-B dépendent donc très fortement de la vitesse relative des atomes. En champ magnétique nul ou faible comparé au champ critique associé à l'énergie caractéristique $\hbar\omega_a$ de l'élément considéré (cf. § I-B) les valeurs théoriques des taux de transfert pour les collisions résonnantes sont indépendantes de la vitesse relative des atomes lorsque la collision est traitée dans l'approximation semi-classique. Cette particularité liée aux variations en R^{-3} du potentiel n'existe plus en présence d'un champ magnétique intense. Les taux de transfert par collision dépendent à la fois de la vitesse relative des atomes et du champ magnétique par l'intermédiaire de τ .

Il est donc nécessaire pour comparer la théorie aux résultats expérimentaux soit d'admettre que les résultats moyens pour l'ensemble des collisions de la vapeur se déduisent des résultats théoriques du § I-B en attribuant à la vitesse une valeur caractéristique à définir, soit d'effectuer une moyenne sur les vitesses en admettant une distribution de Maxwell-Boltzmann pour la vitesse relative ce qui constitue l'hypothèse la plus simple.

Le principe de la méthode de moyenne sur la vitesse relative des atomes est analogue à celui exposé dans la partie V. Nous allons brièvement en rappeler les hypothèses.

Nous admettons que la distribution des vitesses relatives des atomes est boltzmannienne, normalisée à un atome par unité de volume. Soit :

$$F(v) = \frac{4\pi v^2}{(u\sqrt{\pi})^3} e^{-v^2/u^2}$$

avec $u = (2kT/m^*)^{1/2}$

où m^* est la masse réduite.

On pose $\omega_c = u^{3/2} \cdot p^{-1/2} \cdot \mu^{-1/4}$

$$\tau_c = \omega/\omega_c$$

τ_c est défini de la même façon que τ , lorsque v prend la valeur u , τ_c dépend donc de la valeur du champ, de T et de M^* . (cf. § I-B). Les taux de relaxation ou de transfert après moyenne sur les vitesses sont donnés par :

$${}_{\alpha\beta} \overline{g^k}(i) = \frac{2\pi}{3\sqrt{3}} p N {}_{\alpha\beta} H^k(i, \tau_c)$$

où ${}_{\alpha\beta} H^k$ est défini de la même manière que ${}_{\alpha\beta} K^k$ mais comporte une moyenne supplémentaire sur le module de la vitesse.

$${}_{\alpha\beta} H^k(i, \tau_c) = \int_0^{\infty} h(\tau) {}_{\alpha\beta} K^k(i) d\tau$$

$$h(\tau) = \frac{8\tau_c^2}{3\sqrt{\pi}} \frac{e^{-(\tau_c/\tau)^{4/3}}}{\tau^3}$$

La moyenne sur la vitesse du taux de transfert entre les sous-niveaux Zeeman $m=0$ et $m=1$ a été effectuée selon la méthode précédente avec les valeurs théoriques de $K^{(11)(00)}(\tau)$ données dans la partie I-B. Nous avons admis en outre que pour les valeurs de τ supérieures à 10, le coefficient $K^{(11)(00)}(\tau)$ pouvait être représenté approximativement par une expression de la forme $A \cdot \tau^{-2/5}$ ce qui suppose implicitement que le transfert aux grandes valeurs de τ provient de l'action d'un potentiel en R^{-6} . (cf. partie I-B - appendice 3 et partie V). Bien qu'aux fortes valeurs du champ cette hypothèse paraisse la plus logique, elle n'a pas été en toute rigueur mathématiquement établie. On peut toutefois remarquer que si l'on ajuste la constante A pour $\tau = 10$, on obtient 0,09 au lieu de 0,07 pour $\tau = 20$ et 0,13 au lieu de 0,14 pour $\tau = 8,5$. Cette hypothèse additionnelle n'est pas en définitive d'une extrême importance dans la mesure où les valeurs du champ à considérer correspondent à $\tau_c \leq 10$ où le poids de la région $\tau \leq 10$ est très grand comparé à celui de la région $\tau > 10$.

Les valeurs de $g^{(11)(00)}(\tau_c)$ réduites à la valeur en champ nul obtenues par cette méthode sont données dans le tableau 1.

Les courbes théoriques sans moyenne sur la vitesse obtenues dans le cas où $v = u = \left(\frac{2kT}{m}\right)^{1/2}$, et avec moyenne sur la vitesse sont données sur la figure 10 en fonction de τ_c . On peut constater que pour $\tau_c < 1,5$ les deux courbes sont très voisines. Pour $\tau_c > 1,5$, la courbe obtenue après moyenne sur les vitesses a un comportement décroissant moins rapide ce qui provient

du fait que la contribution au transfert des atomes de vitesse élevée reste importante.

6-2-Comparaison aux résultats expérimentaux

De façon à comparer aux variations expérimentales, nous allons calculer la valeur de ω_c pour le niveau 6^3P_1 du Mercure (cf. § I-B)

$$\omega_c = \left(\frac{2kT}{M^*} \right)^{3/4} \left(\frac{4k_0^3}{9\Gamma} \right)^{1/2} \left(\frac{8}{27} \right)^{-1/4}$$

Pour $T = 300^\circ\text{K}$, ω_c vaut 20,3 GHz.

L'expression du paramètre τ_c en fonction du champ est dans ce cas :

$$\left\{ \begin{array}{l} \tau_c = \omega/\omega_c = \frac{g_J \cdot \mu_B \cdot B}{\omega_c} = 1,023 \cdot 10^{-4} B \\ \text{où } B \text{ est exprimé en gauss.} \end{array} \right.$$

τ_c vaut donc 1 pour $T = 300^\circ\text{K}$ et $B = 9,77 \text{ kG}$

On peut alors comparer après normalisation de $g^{(11)(00)}(\tau_c)$ à la valeur pour un champ de 5 kG correspondant à $\tau_c = 0,5$ les prévisions théoriques et les courbes expérimentales. La figure 9 permet cette comparaison.

La courbe sans moyenne sur les vitesses (pour $v = u$) est assez systématiquement en-dessous des résultats expérimentaux. Par contre, les valeurs obtenues après moyenne sur les vitesses sont en excellent accord avec les points expérimentaux.

Compte tenu des possibilités d'erreurs systématiques (cf. § 5) et de l'incertitude expérimentale, on ne peut conclure sur le fait que les points expérimentaux sont légèrement au-dessus de la courbe théorique en champ fort. Cela pourrait provenir de l'effet suivant : le calcul théorique que nous avons effectué suppose que seul le potentiel dipôle-dipôle de R^{-3} joue un rôle dans le transfert de l'excitation. Ceci néglige l'effet éventuel des collisions non résonnantes avec les atomes de Mercure dont on pourrait en première approximation décrire les effets par un potentiel de Van der Waals en R^{-6} (provenant des états du système à deux atomes que l'on néglige en restreignant l'analyse théorique à 6 niveaux). Dans le cas du niveau 6^3P_1 du Mercure, il est bien clair que cette partie du potentiel a un rôle négligeable dans le transfert de l'excitation en champ nul en raison de la grande force d'oscillateur de la

transition (ceci ne serait pas vrai dans le cas du niveau 5^3P_1 du Cadmium). Cependant, la contribution (petite) du potentiel en R^{-6} va peu varier avec le champ magnétique alors que celle du dipôle-dipôle en R^{-3} diminue d'un facteur 3 à 80 kG ; on doit donc s'attendre en champ fort à une contribution plus importante, en valeur relative du potentiel de Van der Waals $Hg^*(6^3P_1) - Hg$. C'est peut-être là ce que l'on observe mais il faudra imaginer d'autres méthodes pour conclure (cf. § II par exemple).

Le résultat essentiel de notre étude est la confirmation sur une très large gamme d'énergies (160 GHz) de la validité du potentiel dipôle-dipôle pour décrire le transfert résonnant de l'excitation entre deux atomes identiques (l'un des deux atomes étant dans un niveau excité de résonance). Ceci illustre les possibilités de la méthode qui permet une comparaison de la théorie et des expériences dans des gammes de champ très étendues.

6-3-Quelques remarques sur les résultats théoriques et expérimentaux

6-3-1-Remarques sur les résultats expérimentaux

Les points expérimentaux obtenus pour les valeurs du champ comprises entre 2 et 5 kG (cf. FIG 9) conduisent à penser que l'extrapolation en champ nul de la courbe expérimentale doit se faire à des valeurs supérieures de quelques pour cents à celles prévues à l'aide de la courbe théorique avec moyenne sur la vitesse, bien que le petit désaccord constaté reste dans la gamme des incertitudes expérimentales. Nous avons vérifié qu'il ne pouvait s'agir d'effets provenant de l'excitation directe du niveau $m = +1$ par les impuretés isotopiques de Mercure 199 contenues dans la lampe. Il est également difficilement concevable qu'il puisse exister une excitation directe des sous-niveaux $m = \pm 1$ par les ailes du profil de la lampe qui sont petites à 3 kG du centre de la raie pour le niveau 6^3P_1 (le polariseur π à l'excitation réduira encore les effets possibles). Une hypothèse est d'attribuer ce phénomène au changement de régime de la diffusion multiple bien que l'écart entre sous-niveaux Zeeman soit nettement plus grand que la largeur Doppler des raies et que la largeur de la lampe.

Il est en définitive beaucoup plus probable que le comportement observé soit l'indice de l'existence de petits effets de la dispersion anormale dans la vapeur. L'étude effectuée par la méthode de MONTE CARLO dans la partie IV montre que les effets possibles sur la valeur de ρ pour les valeurs du champ supérieures à 5 kG sont au maximum de 2%. Il peut par contre exister des variations de ρ relativement importantes entre 1,5 et 3 kG (de l'ordre de 10 à 15%) provenant de la dispersion anormale. C'est probablement des effets de ce genre

qui apparaissent sur la figure 9 aux faibles valeurs du champ.

6-3-2-Discussion des hypothèses du modèle théorique dans le cas du Mercure.

Le bon accord observé entre les prévisions théoriques du § I-B et les résultats expérimentaux ne doit pas faire oublier que l'incertitude sur ces derniers aux fortes valeurs du champ est de l'ordre de 10% et que la théorie suppose valables un certain nombre d'approximations (cf. § I-B).

• *Forme du potentiel*

Nous avons supposé qu'il s'agissait du potentiel dipôle-dipôle en R^{-3} et cela constitue une hypothèse raisonnable dans le cas des collisions résonnantes dans le niveau 6^3P_1 du Mercure. Il ne semble pas, dans la limite de la précision des résultats expérimentaux que les termes d'ordres supérieurs en $(1/R)$ du potentiel aient une contribution importante aux fortes valeurs du champ.

• *Trajectoires rectilignes*

Pour les collisions résonnantes dans le niveau 6^3P_1 du Mercure, la valeur moyenne du moment orbital relatif l vaut en champ nul environ 850 (OMONT - 1967). L'approximation de trajectoire rectiligne est alors une excellente approximation.

Aux fortes valeurs du champ (80 kG), la section efficace a décrû approximativement d'un facteur 3. Les valeurs de l sont de l'ordre de 500. Le traitement dans une approximation semi-classique à trajectoire rectiligne demeure tout à fait justifié.

En définitive, dans le cas des collisions résonnantes en champ fort, il est tout à fait probable que les effets liés à la courbure de la trajectoire n'auront pas d'incidence importante et que les résultats du § I-B seront applicables aux éléments ayant une grande force d'oscillateur, dans toute la gamme des champs continus utilisables en laboratoire.

• *Conservation de l'énergie*

Le modèle du § I-B ne conserve pas l'énergie. Il faut donc pour qu'il soit applicable que les variations de l'énergie de l'état interne des atomes soient petites comparées à l'énergie thermique kT . De fait, $2\hbar\omega/kT$ vaut au maximum 0,05 à 80 kG. Il est donc peu probable que la non conservation de

l'énergie puisse modifier notablement les conclusions théoriques.

Un traitement théorique quantique (conservant l'énergie) produirait des taux de transfert entre les sous-niveaux Zeeman satisfaisant à une relation de bilan détaillé (cf. § I-B et II-B - Annexe 4) :

$$g^{(mm)}(pp) = e^{-(m-p)\omega/kT} g^{(pp)}(mm)$$

Il est probable également que les taux de transfert entre les sous-niveaux Zeeman $m = 0$ et $m = \pm 1$ ne seraient plus égaux.

De manière à adapter les résultats de l'analyse semi-classique du § I-B pour qu'ils satisfassent à la relation de bilan détaillé, on peut utiliser la méthode de symétrisation décrite dans l'annexe 5 de la partie II-B qui doit constituer une excellente approximation tant que $\hbar\omega \ll kT$. En pratique, la méthode décrite dans l'annexe 5 du § II-B revient à affecter les taux de transfert $g^{(mm)}(pp)$ obtenus au § I-B d'un facteur $e^{-(m-p)\hbar\omega/2kT}$ tenant compte a posteriori des effets de conservation de l'énergie. Il en résulte alors que le transfert du niveau $m = 0$ vers $m = -1$ est un peu plus probable que le transfert de $m = 0$ vers $m = 1$.

Lorsque l'on corrige de cette façon les résultats théoriques du § I-B, il en résulte une dépendance en champ supplémentaire en $\text{ch } \frac{\hbar\omega}{2kT}$ qui reste donc totalement négligeable dans la gamme des champs utilisés.

On peut dire en conclusion, que toutes les hypothèses du modèle semi-classique du § I-B sont bien vérifiées et que les petits effets provenant de la non-conservation de l'énergie dans le modèle peuvent être corrigés de manière simple encore qu'il n'aient aucune importance dans les conditions expérimentales que nous avons adoptées.

6-3-3-Effets du découplage de \vec{L} et \vec{S} par le champ

Le dernier point à mentionner est l'absence d'effets importants du champ sur le degré de couplage (\vec{L}, \vec{S}) du triplet P du Mercure. Les calculs sont développés dans l'appendice 2. Deux aspects du découplage peuvent intervenir.

- La modification de l'énergie des sous-niveaux Zeeman par rapport à l'effet Zeeman linéaire. Cet effet est de l'ordre de ω^2/A^2 où A est la constante de structure fine et vaut donc de l'ordre de 10^{-6} à 80 kG. Les effets sur les taux de transfert par collision sont donc négligeables.

- . L'aspect le plus important est la modification possible de la durée de vie des trois sous-niveaux Zeeman provenant des variations du mélange des fonctions d'onde avec celles du niveau 1P_1 . Les effets sur la durée de vie des niveaux $m = \pm 1$ sont en valeur relative de $3 \cdot 10^{-4}$ pour des champs de 100 kG, ce qui est encore négligeable. (cf. Appendice 2).

L'intérêt de la situation du niveau 6^3P_1 du Mercure est donc que les variations de I_σ/I_π peuvent être attribuées sans ambiguïté aux variations de la section efficace de collision résonnante puisque les effets de découplage de \vec{L} et \vec{S} sur les fonctions d'ondes sont négligeables.

Le cas du sodium n'est pas aussi simple (cf. § III). Les effets de découplage sont à l'origine d'une modification avec la valeur du champ des facteurs de branchement vers l'état fondamental. Il en résulte en particulier que l'épaisseur optique du milieu et les temps d'emprisonnement dépendent de la valeur du champ.

6-3-4-Dépendance des taux de transfert en fonction de la température

L'étude des variations des taux de transfert en fonction du module de la vitesse relative ou de la température, pour une valeur fixée du champ peut apporter des informations en théorie équivalentes à celles que nous venons d'obtenir en faisant varier le champ à température fixée.

Nous avons porté sur la figure 11 les courbes de la figure 10 en fonction de $\tau_c^{-2/3}$ proportionnel à $u = \left(\frac{2kT}{m^*} \right)^{1/2}$. On en déduit plusieurs catégories d'informations :

- a) A valeur du champ fixée, une augmentation de la température entraîne en général des variations faibles du taux de transfert. Dans le cas du Mercure (6^3P_1), la variation de la température de 300 à 400°K pour une valeur du champ de 10 kG, produit une variation du taux de transfert de 10% (cf. FIG 11). Pour des valeurs plus élevées du champ il existe cependant des situations plus favorables (cf. FIG 11). Toutefois, on doit noter que dans les conditions où doivent être réalisées ces expériences, l'emprisonnement est important. Ses caractéristiques dépendent elles aussi de la température. Une étude expérimentale, à réaliser avec une cellule en vapeur sèche sera donc d'interprétation difficile.
- b) Pour une valeur fixée du champ le transfert par collision est d'autant plus faible que la vitesse relative des atomes est petite. Cela se comprend bien

de manière approximative. Lorsque la vitesse relative est petite, le temps de collision est long et la condition $\omega \cdot T_c(v) \gg 1$ est réalisée. On se trouve donc en ce qui concerne les sous-niveaux Zeeman dans une situation où l'approximation adiabatique est valable. Il n'y a pas de transitions entre les sous-niveaux.

Lorsqu'au contraire, la vitesse relative est grande, le temps de collision est court et la condition $\omega \cdot T_c(v) \ll 1$ est réalisée. L'approximation soudaine est valable et le transfert entre les sous-niveaux Zeeman est très probable. La collision se produit dans un temps suffisamment court pour que l'on puisse considérer que le moment cinétique \vec{J} de l'atome n'ait pas le temps de se coupler au champ magnétique. Les taux de transfert sont alors voisins de ceux obtenus en champ nul.

6-4-Comparaison aux résultats d'autres expériences

Il est difficile d'attribuer les échecs relatifs de ces expériences à des causes bien précises. Cependant nous allons rappeler le principe de chacune d'elles et émettre un certain nombre d'hypothèses pour tenter de justifier les faibles variations observées. Remarquons de manière générale que les champs disponibles étaient en général trop faibles et que l'importance de l'effet éventuel des gaz résiduels et la nécessité d'expériences de contrôle précises à basse température ne semble pas avoir été notée.

6-4-1-OMONT (1961)

Le principe des expériences réalisées sur le niveau 6^3P_1 du Mercure est analogue à celui que nous venons de décrire. Les expériences sont réalisées à 0°C . Le champ disponible est de 10 kG. Les variations obtenues par OMONT sont inférieures à 10 % tandis que nous observons dans cette gamme de champs des variations de l'ordre de 25%.

La valeur de la correction de l'imperfection des polariseurs n'est pas indiquée. OMONT note qu'à basse température, il n'a jamais pu observer une polarisation totale du rayonnement.

A 0°C , la valeur du taux de transfert par collisions résonnantes est :

$$g^\sigma / \Gamma \approx 1,05 \cdot 10^{-3}$$

Si l'on admet que les variations moins importantes que les nôtres observées par OMONT proviennent de l'existence de gaz résiduels dans les cellules utilisées on est conduit à des valeurs des taux de transfert avec ce gaz de l'ordre de $10^{-3} \Gamma$ ce qui paraît un ordre de grandeur raisonnable.

6-4-2-QUARRÉ (1967)

L'étude du transfert d'excitation entre les sous-niveaux $m = -1$ et $m = +1$ est effectuée sur le niveau 6^3P_1 du Mercure. L'excitation du niveau $m = -1$ de Hg^{198} est réalisée à l'aide de différentes lampes contenant d'autres isotopes pairs du Mercure (200-202-204). On analyse dans la direction du champ la lumière circulaire réémise. Les inconvénients relevés par Quarré sont les suivants : changement de lampe, lame $37\lambda/4$, absence de corrections de la lumière parasite de la lampe, absence de corrections de l'imperfection de la lame $37\lambda/4$. La température du queusot est de $15^\circ C$ ($N = 2,6 \cdot 10^{13} \text{ at/cm}^3$).

En première approximation, le rapport $I_{\sigma+}/I_{\sigma-}$ est proportionnel à $g^{(11)}(-1-1)/\Gamma^\sigma$. D'après les valeurs théoriques du § I-B, ce rapport doit donc varier de plus de 50% entre 2 et 10 kG (40% lorsque l'on tient compte des termes de retour par collision), ce qui n'est pas du tout en accord avec les résultats obtenus par Quarré.

Le changement de lampe est un des nécessaires inconvénients de cette étude. Ceci peut entraîner une modification du profil de la raie d'excitation et donc changer profondément les caractéristiques de la diffusion multiple très importante à $15^\circ C$.

Il nous semble à l'évidence que ces expériences doivent être reprises. La seule méthode qui paraisse acceptable est de procéder à l'excitation à l'aide d'une source accordable des niveaux $m = \pm 1$, à plus basse densité, et dans un domaine de champ magnétique plus important.

6-4-3-CRANCE (1968)

Les expériences ont été réalisées dans les mêmes conditions qu'OMONT (1961) mais sur le niveau 5^1P_1 de Cd^{116} qui est un vrai niveau de résonance. Le champ disponible est de 9 kG. Le champ critique pour le 5^1P_1 du Cadmium vaut 2 kG (cf. §I-B). La diffusion multiple change précisément de nature dans cette gamme de champ. Il est donc difficile de séparer les variations avec le champ provenant de la diffusion multiple dans un régime intermédiaire, des variations du taux de transfert par collisions.

- D -

CONCLUSIONS DE L'ETUDE - EXTENSIONS

Nous avons donc mis en évidence les variations des taux de transfert par collision entre les sous-niveaux $m=0$ et $m= \pm 1$ en fonction du champ magnétique dans le cas des collisions résonnantes $\text{Hg}^*(6^3P_1) - \text{Hg}(6^1S_0)$. Les résultats théoriques obtenus dans l'hypothèse où l'interaction est le potentiel dipôle-dipôle en R^{-3} sont en excellent accord avec les résultats expérimentaux.

Les extensions les plus simples de ce type d'études semblent être d'une part l'étude par excitation du niveau $m = 0$ des intensités de fluorescence σ^+ et σ^- réémises dans la direction du champ, étude qui pour être complète devra être faite en fonction du champ jusqu'à de hautes densités ($N \approx 10^{16}$ at/cm³). L'intérêt théorique est certain, puisque d'une part on pourra tester directement les symétries de la relaxation en présence d'un champ magnétique, d'autre part étudier la manière dont s'effectue la quasi thermalisation de l'état excité de l'atome dans le cas des collisions résonnantes en phase vapeur. De plus, l'étude directe des variations avec le champ du rapport $g^{(11)(00)} / g^{(-1-1)(00)}$ doit permettre de vérifier si la méthode de symétrisation de la théorie semi-classique exposée dans la partie II-B annexe 5, donne de bons résultats dans le cas des collisions inélastiques atome-atome. Cette étude pourrait permettre en outre de vérifier s'il existe des effets analogues à ceux décrits dans II-B et II-C dans le cas des collisions Mercure-gaz rares qui pourraient éventuellement permettre de caractériser les termes d'ordres supérieurs à R^{-3} du développement du potentiel dans les collisions résonnantes et non résonnantes $\text{Hg}^* - \text{Hg}$.

D'autre part l'étude du transfert de l'excitation entre les sous-niveaux $m = -1$ et $m = +1$ permettrait une nouvelle comparaison avec les résultats théoriques du § I-B. Dans la mesure où le taux de transfert dans ce cas décroît beaucoup plus vite avec le champ, on a une possibilité à 80 kG d'obtenir des informations sur le potentiel réel $\text{Hg}^*(6^3P_1) - \text{Hg}(6^1S_0)$. Mais par ailleurs, les contraintes imposées aux taux de gaz résiduels seront encore plus draconiennes

que celles existant dans les conditions de la présente expérience.

Du point de vue théorique, les résultats actuels sont satisfaisants.

Les expériences en fonction de la densité que nous projetons d'effectuer et les premiers résultats obtenus par la méthode théorique récemment proposée et utilisée par OMONT peuvent constituer une motivation suffisante pour entreprendre une étude théorique approfondie d'un milieu optiquement dense, de dimensions finies, où se produisent à la fois des collisions et l'emprisonnement qui est et soumis à un champ magnétique. Il y a en effet fort peu de résultats théoriques et expérimentaux concernant le problème simple en premier examen d'une cellule soumise à un pompage optique aux moyennes épaisseurs optiques.

En ce qui concerne l'extension à d'autres éléments, nous renvoyons à la discussion de ce point dans la partie I-B et dans la partie III concernant le sodium.

Un dernier aspect important est celui évoqué dans le § 6-1. La dépendance en fonction de la vitesse relative des atomes pourrait être étudiée en phase vapeur en excitant les atomes sur les ailes de la raie Doppler. Dans les conditions expérimentales précédentes, il est probable que la diffusion multiple va atténuer les effets prévus dans la mesure où le rayonnement sera redistribué en fréquences avant de ressortir. En définitive, cette catégorie d'expériences n'est possible qu'à très basses densités avec tous les inconvénients expérimentaux que cela implique, ou encore à haute température avec une cellule en vapeur sèche.

L'utilisation d'un jet pourrait avoir un grand intérêt. On pourrait dans ce cas faire varier l'angle du champ magnétique et de la vitesse relative, testant ainsi directement les symétries et les anisotropies de la relaxation.

Enfin, un dernier aspect est l'existence de déplacements et d'élargissements différents des composantes de la raie optique. L'élargissement par collisions résonnantes des composantes issues des sous-niveaux $m = \pm 1$ est près de deux fois plus petit que l'élargissement de la composante $m = 0$ pour des champs magnétiques de l'ordre de 80 kG. Une étude expérimentale de ce point serait du plus grand intérêt mais exigerait des techniques de haute résolution.

TABLEAU 1

τ_c	$\frac{\overline{g}^{(11)(00)}(\tau_c)}{\overline{g}^{(11)(00)}(0)}$
0	1
0,2	1
0,4	0,96
0,6	0,92
0,8	0,87
1	0,82
1,5	0,70
2	0,60
3	0,46
4	0,36
5	0,30
6	0,26
7	0,23
8	0,21
9	0,20
10	0,18

LEGENDES DES FIGURES

I-C/FIG 1 - Montage expérimental

I-C/FIG 2 - Vues latérales et de dessus du montage montrant les directions d'excitation et de détection

I-C/FIG 3 - Courbes d'étalonnage obtenues avec un Gaussmètre RAWSON LUSH à bobines tournantes en fonction de l'intensité I et de la tension V aux bornes du shunt de l'alimentation.

I-C/FIG 4 - Structure isotopique du Mercure (6^3P_1) et principe des méthodes d'absorption utilisées.

I-C/FIG 5 - Courbes obtenues en balayant le champ sur une cellule à Mercure 198 contenant un taux de gaz résiduel non négligeable ($g/\Gamma \sim 2 \cdot 10^{-3}$). L'expérience est réalisée à -28°C ($N \sim 2 \cdot 10^{11}$ at/cm³) avec deux filtres à Hg¹⁹⁸ et Hg¹⁹⁹ dans le banc de détection.

I-C/FIG 6 - Collisions Hg^{*}-Hg. Comparaison des valeurs de $\rho = I_\sigma/I_\pi$ obtenues avec deux cellules, à la même densité de Mercure ($N = 1,7 \cdot 10^{13}$ at/cm³). L'une des cellules (ρ_1) contient des taux de gaz résiduels non négligeables ($g/\Gamma \approx 2 \cdot 10^{-3}$). La différence ($\rho_1 - \rho_2$) est constante en fonction du champ.

I-C/FIG 7 - Collisions Hg^{*}-Xe. Variation avec le champ à intensité lumineuse constante de I_σ et I_π pour une cellule à Xénon ($p = 4$ torr) utilisée à haute pression de Mercure ($N \approx 3 \cdot 10^{13}$ /cm³). L'homogénéité du champ est de $5 \cdot 10^{-2}$ dans les conditions de l'étude.

I-C/FIG 8 - Variations en fonction du champ pour différentes valeurs de la densité du rapport I_σ/I_π des intensités de fluorescence (proportionnel aux taux de transfert par collisions).

- I-C/FIG 9 - Variations en fonction du champ de $\rho(H)/\rho(5)$ (H en kG) pour différentes densités de Mercure dans la cellule. La courbe en traits pleins représente les valeurs théoriques après moyenne sur la vitesse et la courbe en pointillés les mêmes valeurs pour $v = u = (2kT/m^*)^{1/2}$
- I-C/FIG 10 - Variations avec τ_c du taux de transfert par collisions entre les sous-niveaux Zeeman $m = 0$ et $m = 1$. Les valeurs de $g^{(11)(00)}(\tau_c)$ sont normalisées à $g^{(11)(00)}(0)$. La courbe en traits pointillés représente le même coefficient sans moyenne sur la vitesse relative pour $v = (2kT/m^*)^{1/2}$.
- I-C/FIG 11 - Variations en fonction de $\tau_c^{-2/3}$ proportionnel à la vitesse relative, du taux de transfert $g^{(11)(00)}(\tau)/g^{(11)(00)}(0)$. On a porté dans le cas du Mercure (6^3P_1) les régions de la courbe atteintes pour une valeur fixée du champ en faisant varier la température T.

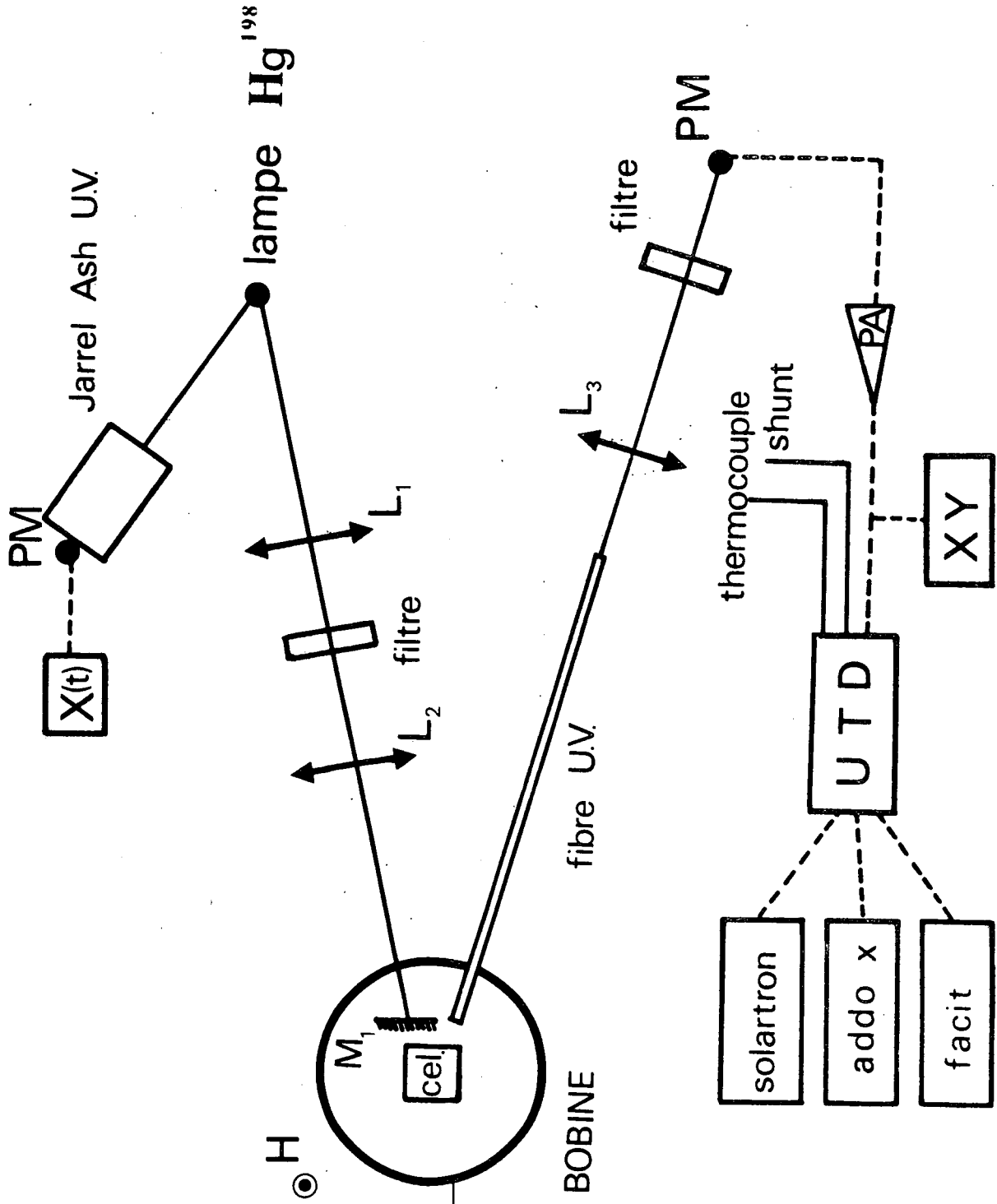
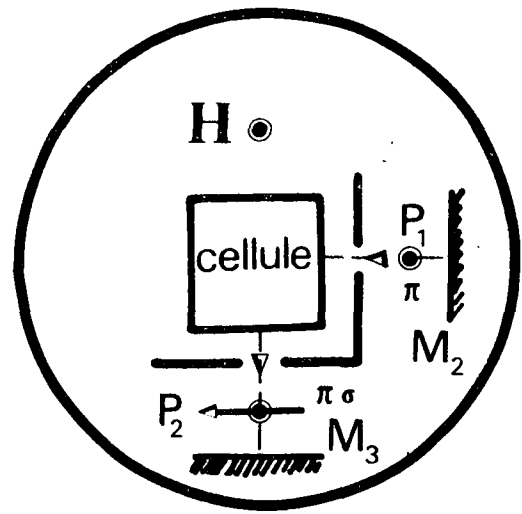
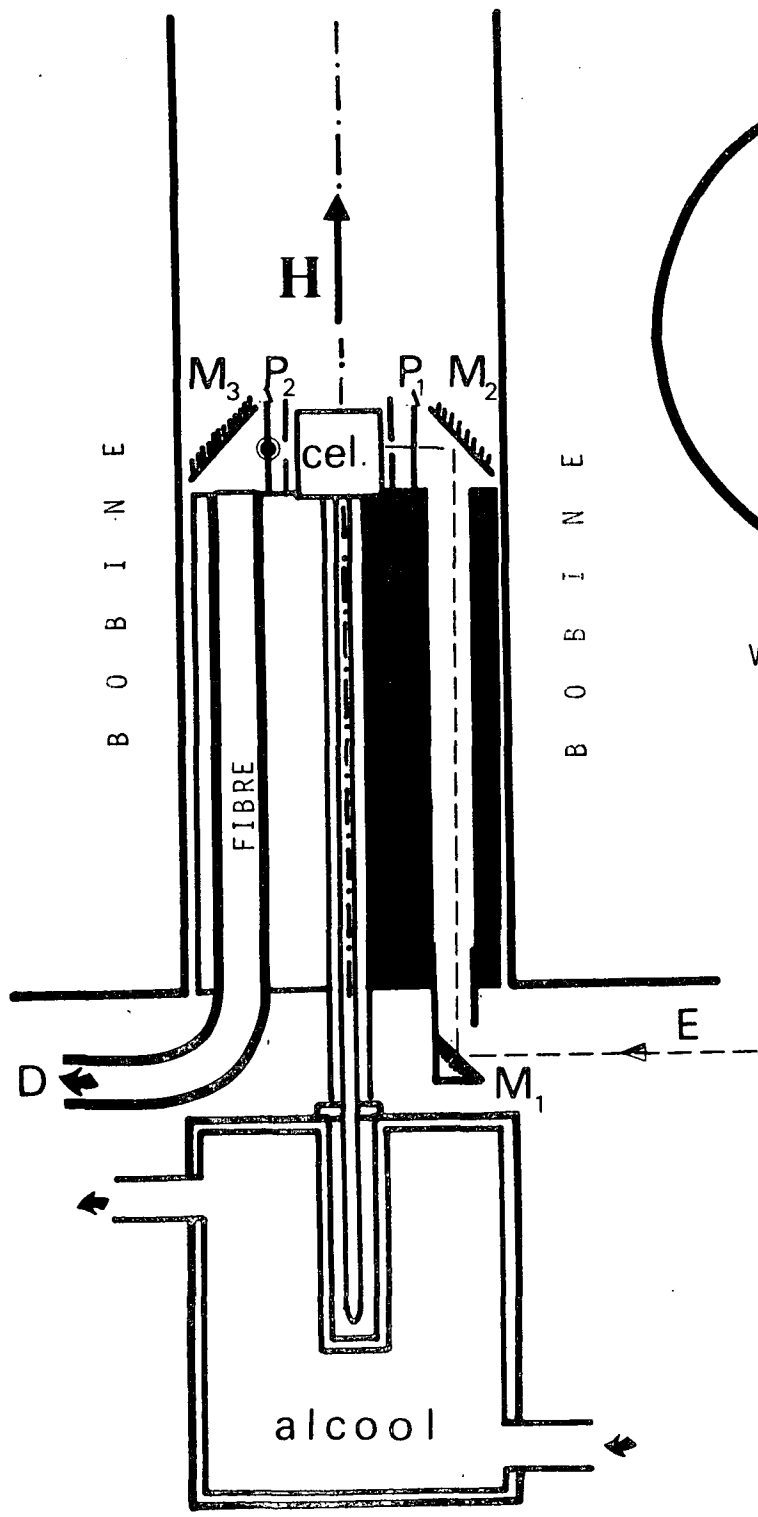
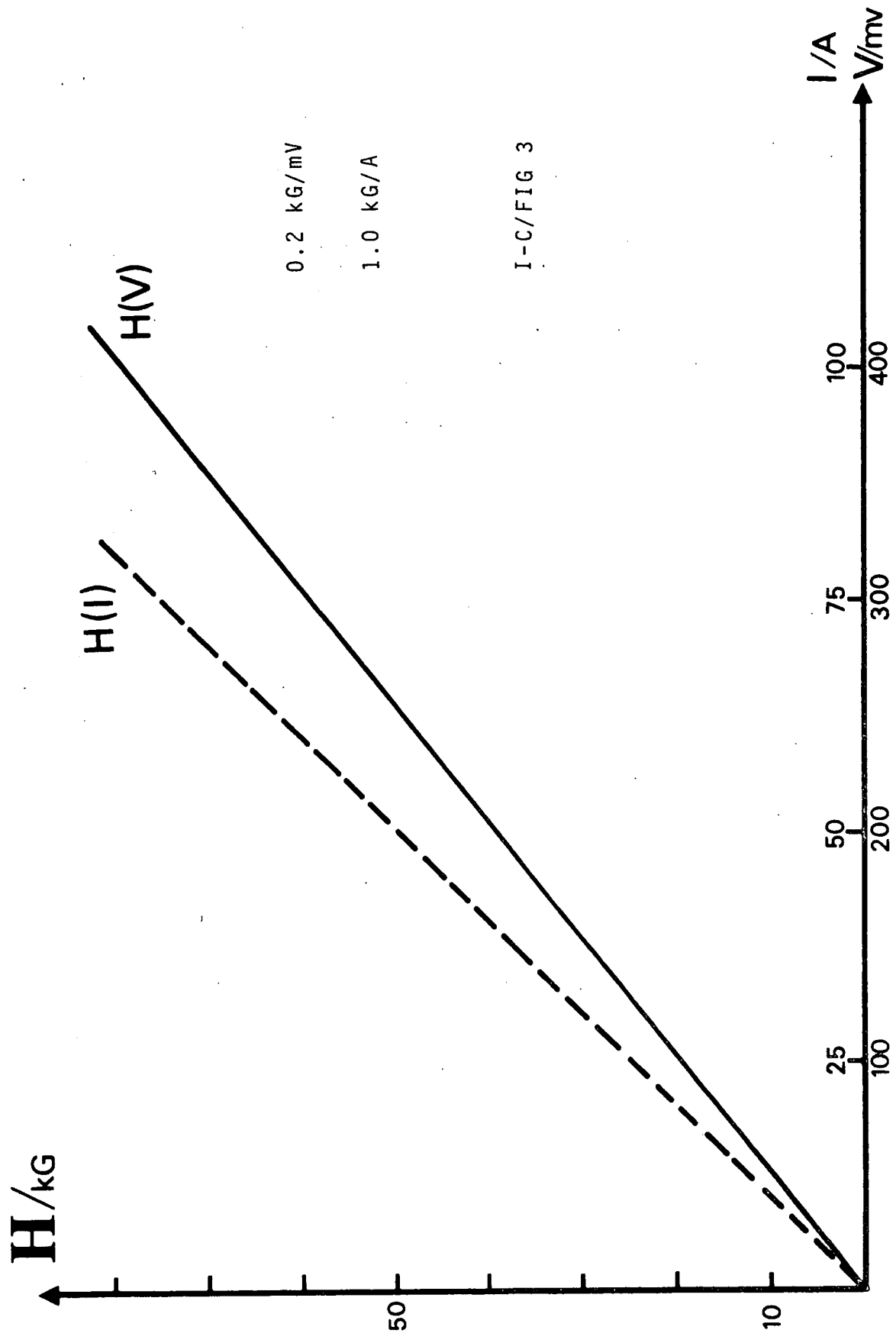


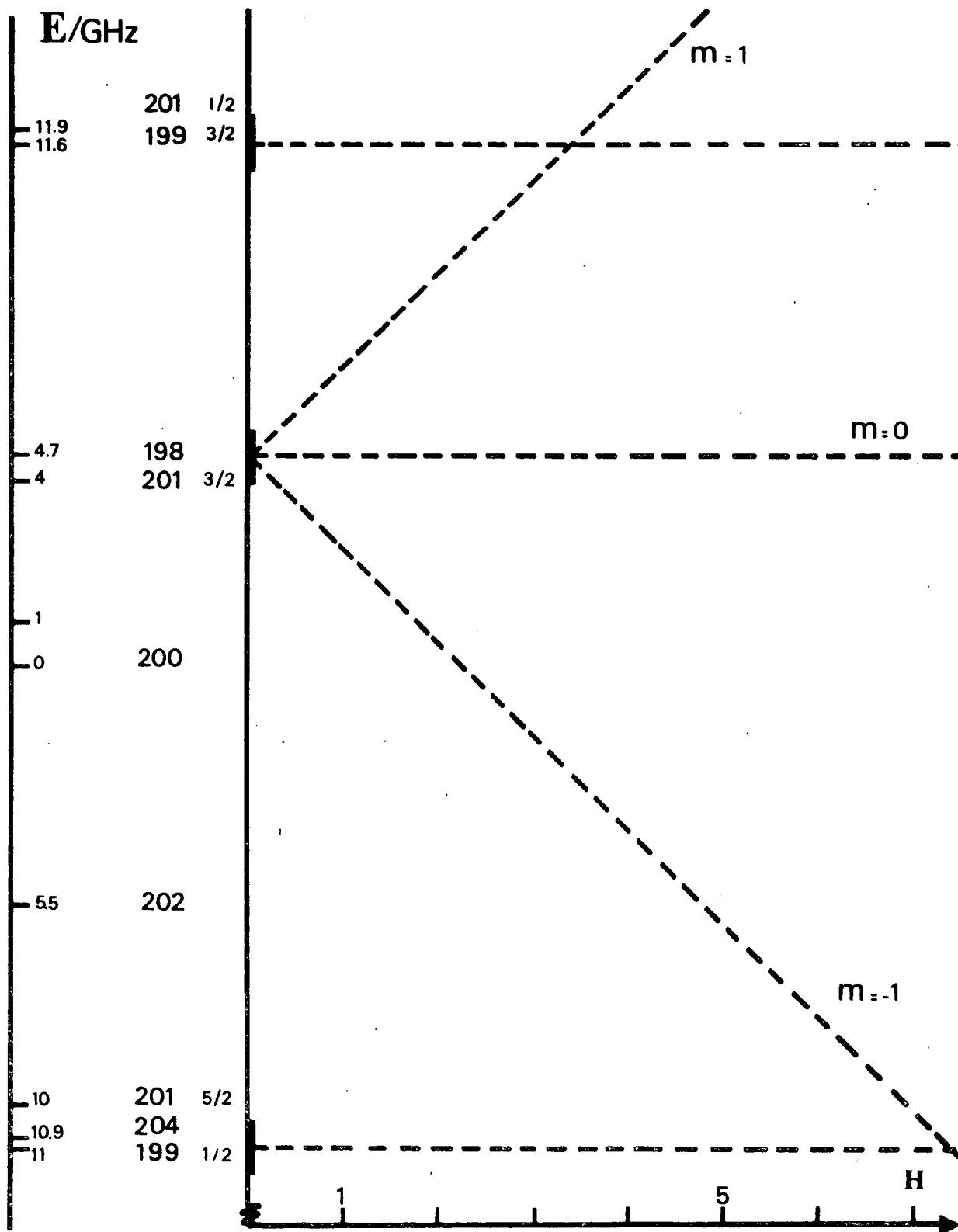
FIGURE 2



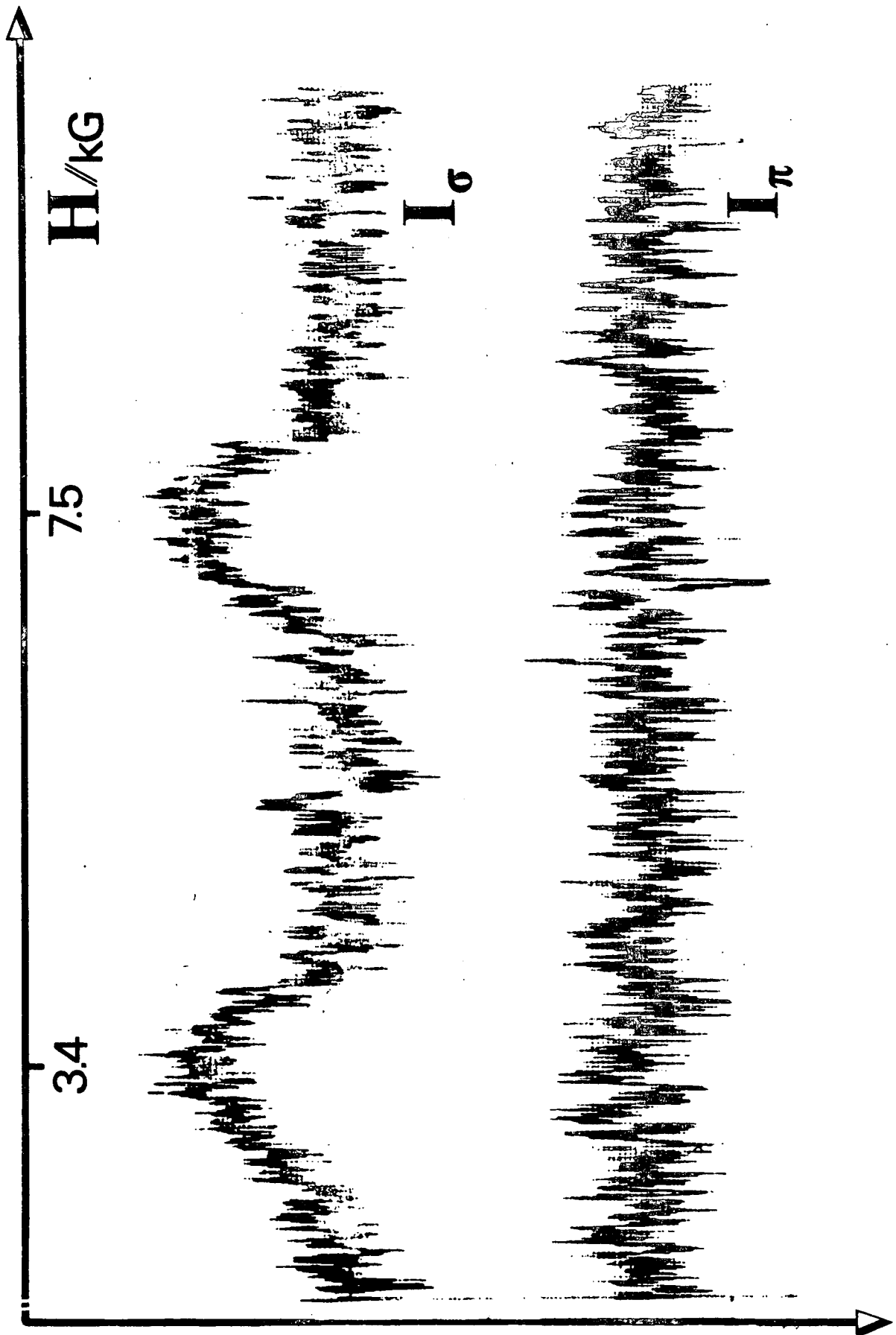
VUE DE DESSUS

VUES LATERALES (COUPES A 90°)

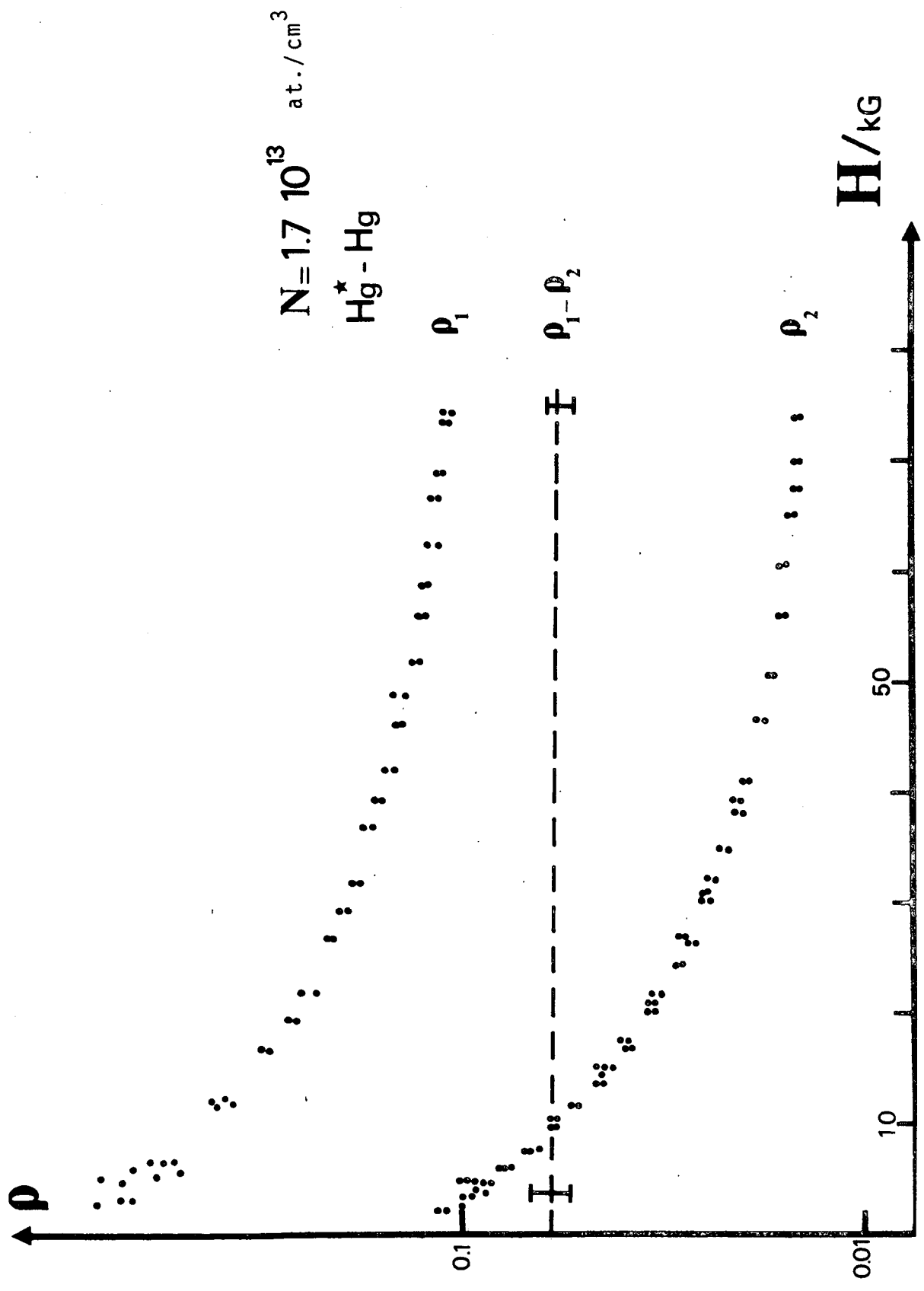




I-C/FIG 4

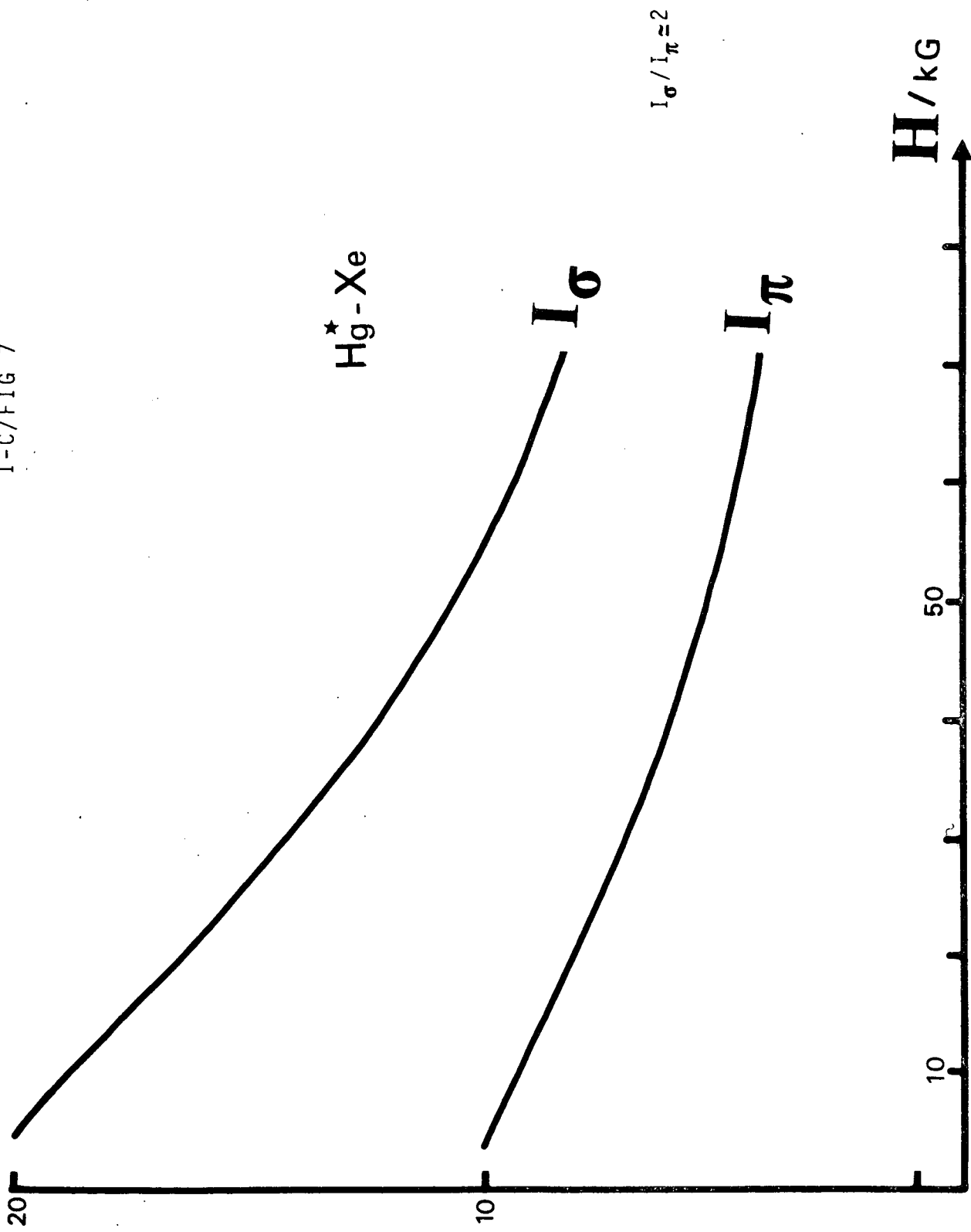


I-C/FIG 5

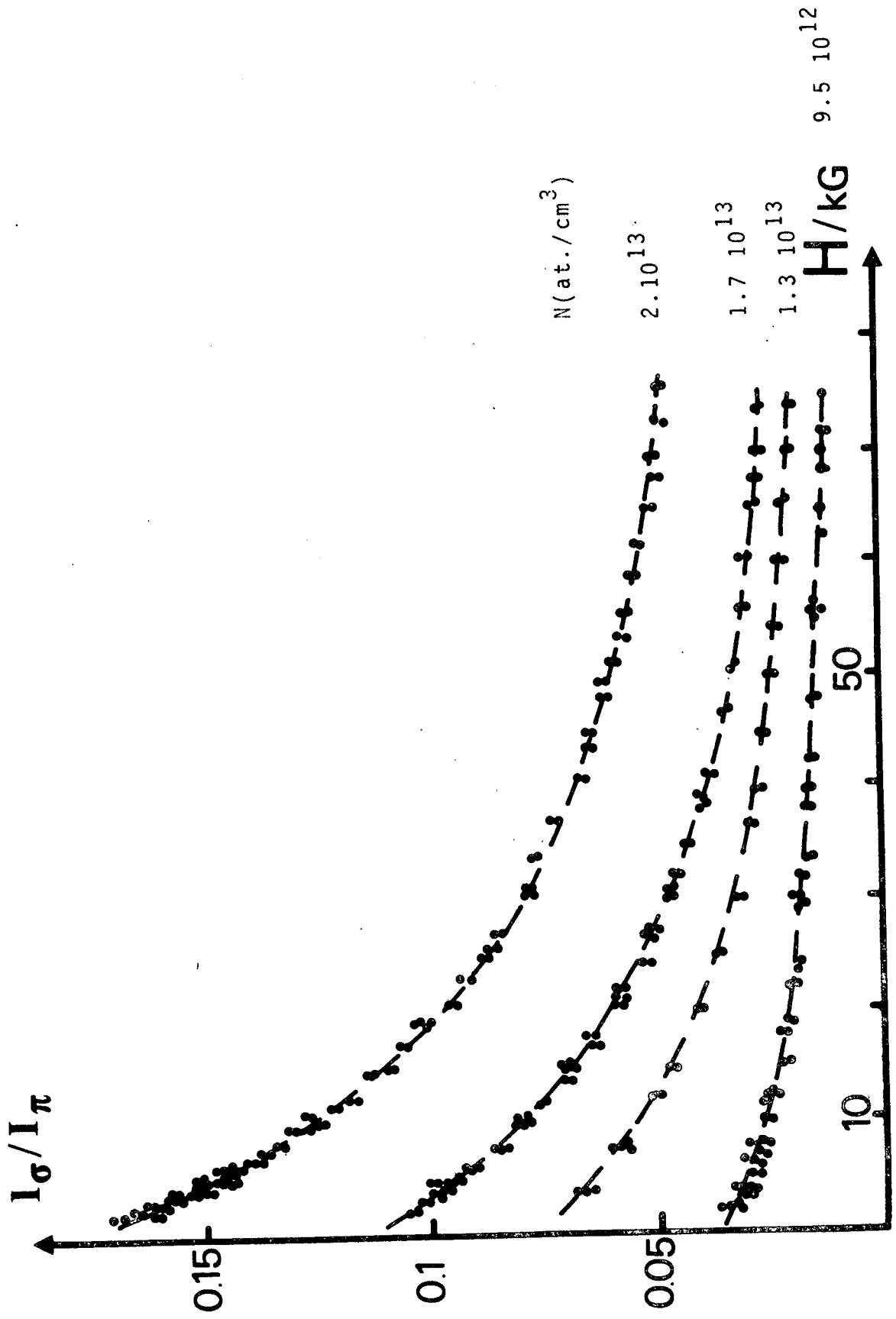


I-C/FIG 6

I-C/FIG 7



I-C/FIG 8



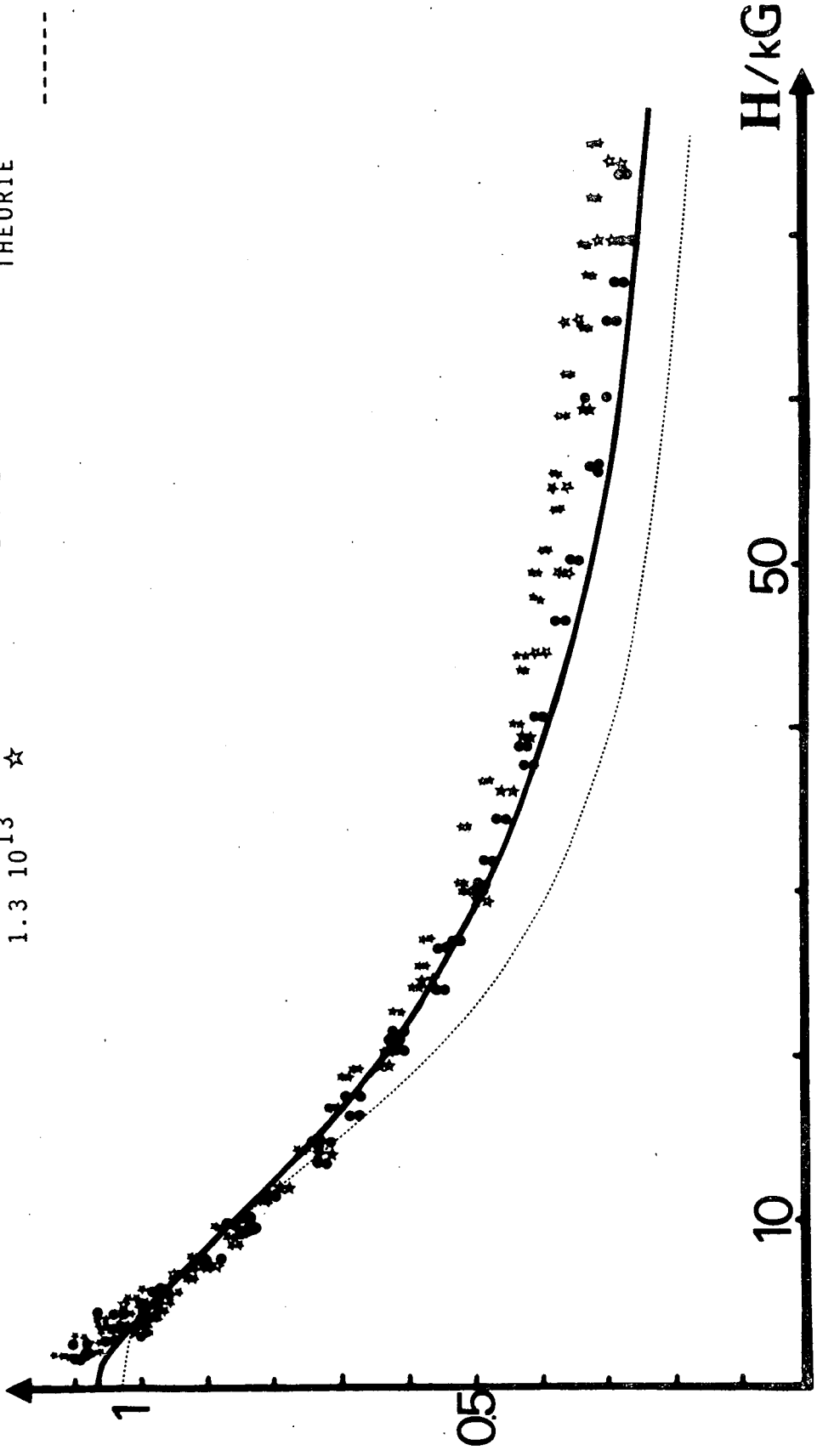
2.10¹³ at./cm³ ★

1.7 10¹³ ●

1.3 10¹³ ☆

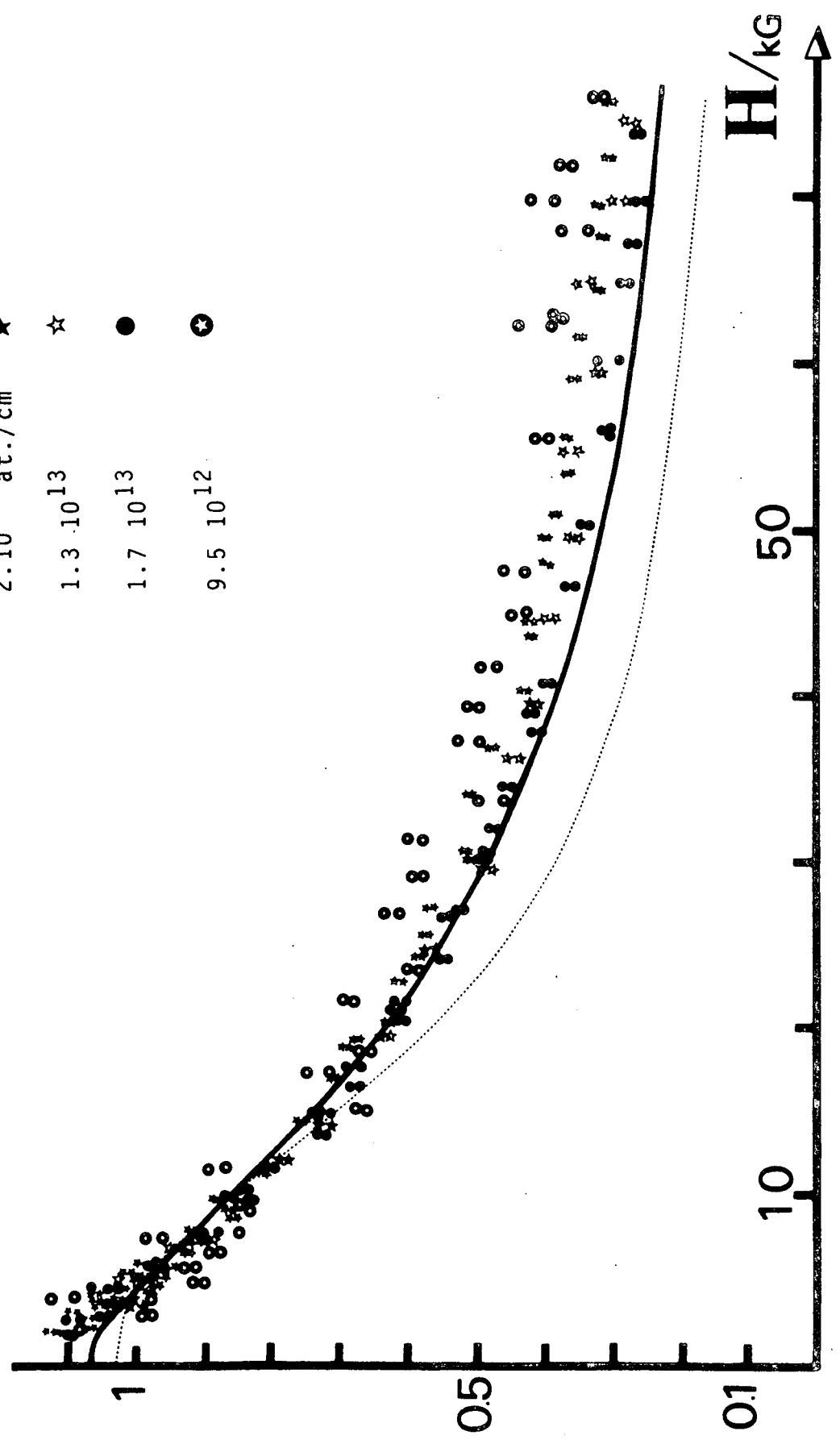
THEORIE

----- V=U

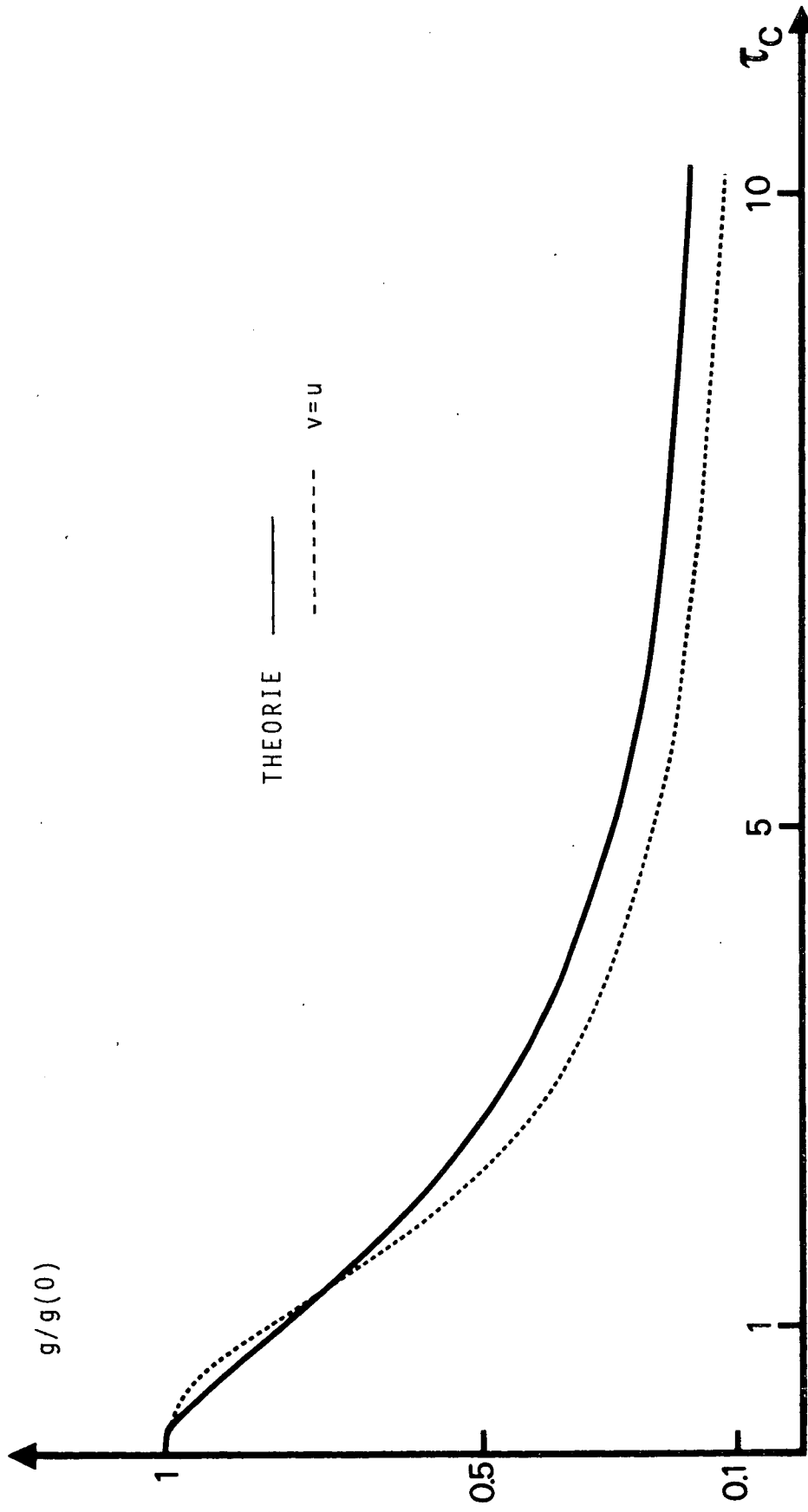


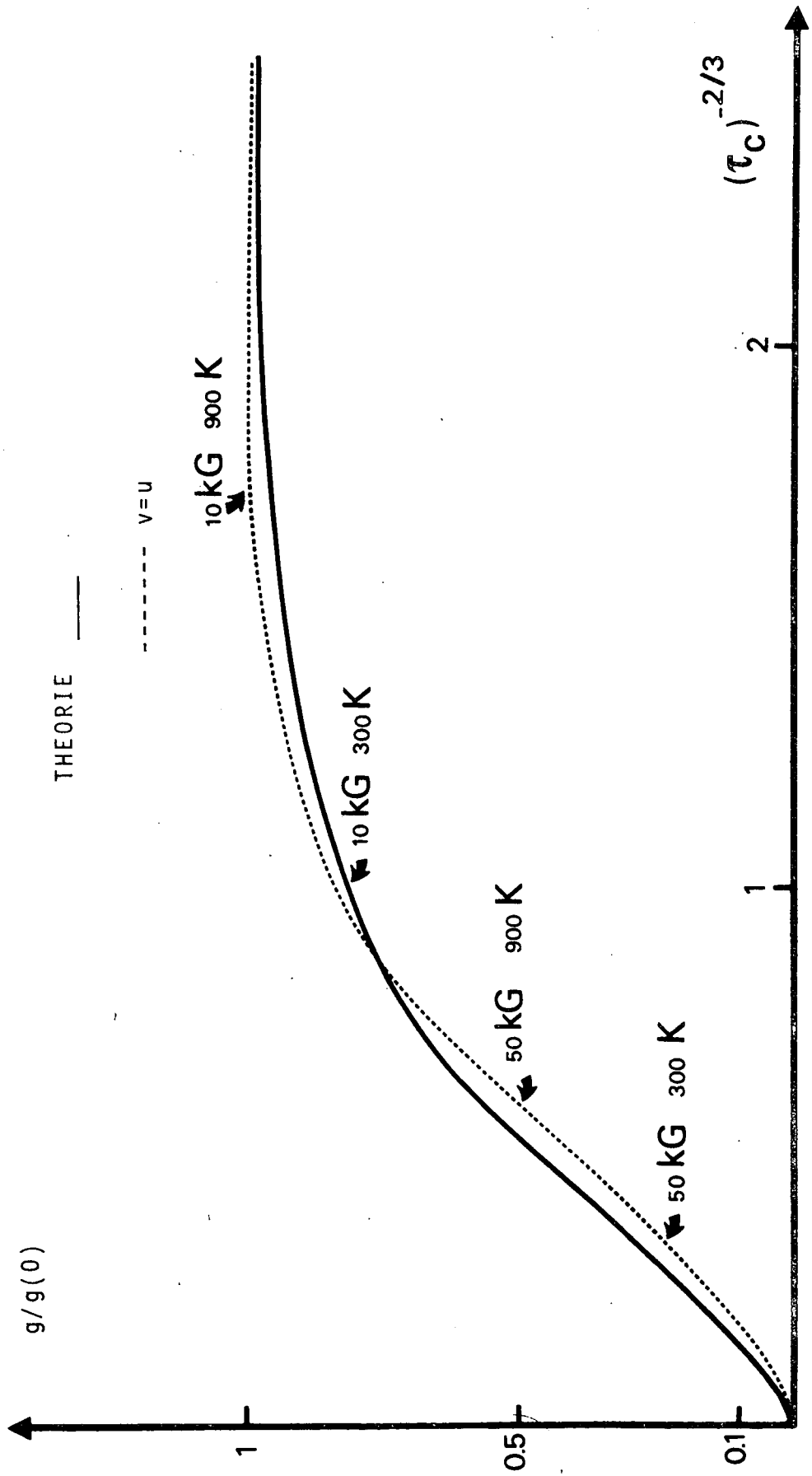
I-C/FIG 9

$2 \cdot 10^{13}$ at./cm³ ★
 $1.3 \cdot 10^{13}$ ☆
 $1.7 \cdot 10^{13}$ ●
 $9.5 \cdot 10^{12}$ ⊙



I-C/FIG 10





REFERENCES DE LA PREMIERE PARTIE

- BERMAN P.R. et LAMB W.E. : Phys. Rev. 187, 221 (1969)
- BUTAUX J. : Thèse - Paris (1972)
- CRANCE M. : Thèse 3ème cycle - Paris (1968)
- DYAKONOV M.I. et PEREL V.I. : JETP, 21, 227 (1965)
- DODSWORTH B.M. et OMONT A. : Phys. Rev. A 3, 1901 (1971)
- DODSWORTH B.M., GAY J.C. et OMONT A. : Phys. Rev. A 3, 1912 (1971)
- DODSWORTH B.M., GAY J.C. et OMONT A. : J. de Phys. 33, 65 (1972)
- DUSHMAN S. : Scientific foundations of vacuum technique - John Wiley et Sons N.Y. (1962)
- FAROUX J.P. : Thèse - Paris (1969)
- FUCHS B., HANLE W., OBERHEIM W. et SCHARMANN A. : Phys. Letters, 50, 337 (1974)
- GAY J.C. et SCHNEIDER W.B. : J. de Physique 36, L-185 (1975)
- HOLLAND : Properties of glass surface -Chapman et Hall - Londres (1966)
- HOLSTEIN T. : Phys. Rev. 72, 1212 (1947)
- NORTON F.J. : J. of Applied Physics, 28,1, 34 (1975)
- OMONT A. : Thèse 3ème cycle - Paris (1961)
- OMONT A. et BROSSEL J. : C.R.A.S. , 252, 710 (1961)

OMONT A. : J. Phys. 26, 26 (1965)

OMONT A. : Thèse - Paris (1967)

OMONT A. et MEUNIER J. : Phys. Rev. 169, 92 (1968)

QUARRE F. : Thèse 3ème cycle - Paris (1967)

DEUXIEME PARTIE

COLLISIONS NON-RESONNANTES $\text{Hg}^*(6^3\text{P}_1)$ -GAZ RARES
EN CHAMP MAGNETIQUE INTENSE

INTRODUCTION

A la différence des collisions résonnantes entre atomes identiques pour lesquelles le potentiel d'interaction est connu et les conditions de validité des hypothèses semi-classiques bien vérifiées en raison des fortes sections efficaces de transfert de l'excitation, la situation théorique est infiniment moins claire pour les collisions non-résonnantes entre un atome excité et un perturbateur dans l'état fondamental. On ne connaît pas généralement la forme précise du potentiel d'interaction. Les hypothèses semi-classiques ne sont pas toujours justifiées en raison des petites sections efficaces comparables aux sections cinétiques caractérisant ces processus.

Diverses études théoriques ont été effectuées sur des systèmes particuliers pour obtenir d'une part une évaluation des courbes de potentiel de la quasi-molécule constituée par les atomes au cours de la collision, d'autre part de façon à obtenir les sections efficaces que l'on peut calculer à partir de ces courbes de potentiel. Ceci a été effectué par PASCALE et VANDEPLANQUE (1974) pour le système Sodium-gaz rares, à partir de la méthode développée par BAYLIS (1969) pour le calcul des courbes de potentiel, et par PASCALE et OLSON (1976). Dans le cas du système Mercure-gaz rares, il n'existe pas de détermination précise des courbes de potentiel. Il s'agit d'un système à deux électrons périphériques qui n'est pas simple à traiter. On doit donc actuellement se contenter de formes phénoménologiques du potentiel, plus ou moins bien justifiées selon la valeur de la distance internucléaire.

Il faut distinguer deux catégories de difficultés pour la détermination d'une forme approchée du potentiel. A longue distance on peut admettre que l'approximation qui consiste à remplacer le potentiel réel par un potentiel de Van der Waals en R^{-6} est correcte. La détermination théorique des paramètres de ce potentiel exige cependant la connaissance de l'ensemble des éléments de matrice du dipôle électrique connectant le niveau 6^3P_1 aux autres niveaux du spectre discret et au continuum. Ce n'est donc pas réalisable mais en pratique l'emploi

de règles de somme et d'approximations diverses permet de simplifier le problème et de lui donner un caractère soluble. A courte distance, la détermination théorique ou le choix d'un modèle de potentiel est encore plus difficile. Les effets de l'échange sont alors essentiels pour l'évaluation de cette partie répulsive du potentiel.

Le calcul des sections efficaces pour le couple $\text{Hg}^*(6^3\text{P}_1)$ -gaz rares a été effectué avec différents modèles de potentiel et diverses méthodes, en particulier par OMONT (1965) , FAROUX (1969), BUTAUX et al (1972).

Les résultats expérimentaux de BARRAT et al. (1966) et FAROUX (1969) permettent d'estimer les paramètres caractérisant le potentiel de Lennard-Jones anisotrope utilisé par FAROUX pour décrire les collisions $\text{Hg}(6^3\text{P}_1)$ -gaz rares. On montre ainsi qu'un potentiel de Van der Waals attractif paraît suffisant pour interpréter les collisions $\text{Hg}(6^3\text{P}_1)$ -Kr et $\text{Hg}(6^3\text{P}_1)$ -Xe. Par contre, dans le cas des gaz rares légers, la partie d'échange répulsive du potentiel semble jouer un rôle très important, ainsi probablement que la courbure des trajectoires qui en résulte.

L'étude des collisions $\text{Hg}(6^3\text{P}_1)$ -gaz rares en champ magnétique intense pose donc un grand nombre de problèmes théoriques en ce qui concerne la forme du potentiel à adopter, et les hypothèses à admettre pour traiter la collision. Par ailleurs, le traitement complet avec un modèle semi-classique, pour un type de potentiel donné conduit à des temps de calcul importants. Il n'est donc pas possible dans le cas présent d'effectuer une étude détaillée de l'influence des hypothèses du modèle. Nous avons choisi d'effectuer l'étude théorique dans le cas où l'anisotropie du potentiel varie en R^{-6} avec la distance, avec un modèle semi-classique à trajectoires rectilignes ; ce choix est déterminé par le fait que ce modèle semble acceptable pour décrire les collisions du Mercure avec les gaz rares lourds et polarisables en champ magnétique nul.

L'étude théorique est dans le principe très voisine de celle effectuée au § I-B. En champ magnétique nul, on retrouve les résultats de l'étude de FAROUX (1969). En champ non nul, on montre que la relaxation est anisotrope. L'une des différences essentielles par rapport aux résultats obtenus au § I-B est l'existence de taux de transfert différents entre les sous-niveaux Zeeman $m = 0$ et $m = \pm 1$. Le signe de la différence entre ces taux de transfert dépend du signe de l'anisotropie du potentiel et de la valeur du champ . Ceci offre donc une possibilité de détermination directe de l'un des paramètres du potentiel. Les résultats de l'étude

théorique sont donnés au § II-B sous forme d'un article soumis au Journal de Physique, complété par quelques appendices et annexes qui développent certains points plus particulièrement.

L'étude expérimentale a été effectuée au cours de deux séries d'expériences dont l'une a été réalisée au Service National des Champs Intenses de Grenoble. Bien que les résultats expérimentaux soient peu précis en raison en particulier du mauvais rapport signal sur bruit à basse température et d'effets parasites dont l'origine n'a pu être élucidée dans les expériences de Grenoble, ils permettent de mettre en évidence l'essentiel des effets prévus théoriquement au § II-B. De la comparaison théorie-expériences, on peut conclure que les hypothèses de potentiel variant en R^{-6} avec la distance et de trajectoires rectilignes ne sont pas totalement justifiées dans le cas des collisions avec les gaz rares lourds (Xe, Kr), les variations des taux de transfert avec le champ paraissant plus faibles que celles prévues. Conformément à nos prévisions, on a montré que pour tous les gaz rares, les taux de transfert du sous-niveau Zeeman $m = 0$ vers les sous-niveaux $m = \pm 1$ sont différents et que les variations de leur rapport avec le champ diffèrent profondément selon que le gaz rare est lourd et polarisable ou léger. On a ainsi pu conclure que pour les gaz rares lourds, l'anisotropie du potentiel dans la région intervenant dans ces collisions aux énergies thermiques est telle que l'énergie du niveau Σ soit supérieure à celle des niveaux Π ce qui correspond pour le niveau 6^3P_1 du Mercure à la région du potentiel attractif à longue distance. Pour les collisions avec les gaz rares légers on trouve une anisotropie de signe opposé à la précédente ce qui indique que la région répulsive des courbes de potentiel joue dans ce cas un rôle essentiel.

Lorsque les conditions de thermalisation de l'état excité des atomes de Mercure sont réalisées pendant le temps d'emprisonnement du rayonnement, le rapport des populations mesurées pour les sous-niveaux $m = \pm 1$ obéit à la loi de Boltzmann.

Bien que les expériences soient peu précises et qu'on ne puisse pas exclure l'existence d'erreurs diverses que seules des études systématiques pourront révéler, on a mis en évidence que pour l'essentiel les effets observés dépendaient de la densité de Mercure et de la pression du gaz rare d'une manière que l'on peut prévoir intuitivement. Ceci permet d'écarter l'éventualité d'effets parasites pour interpréter les différents comportements observés. Une interprétation quanti-

tative des phénomènes exigera cependant la reprise des expériences dans des conditions améliorées, en faisant varier les différents paramètres intervenant dans le problème (pression du gaz rare, densité de Mercure) et le développement d'un modèle théorique plus élaboré dont une première étape pourrait être constituée par l'utilisation d'un potentiel de type Lennard-Jones avec l'emploi de la trajectoire classique pour traiter la collision.

Le plan de la seconde partie est le suivant :

Le modèle théorique est exposé dans la partie B sous la forme d'un article. Il est complété de diverses annexes justifiant plus particulièrement certains points, en particulier l'anisotropie de la relaxation que l'on évalue par des méthodes asymptotiques et numériques, la démonstration quantique des relations de symétrie que satisfait la relaxation en champ intense, la démonstration de la relation de bilan détaillé que satisfont les taux de transfert et l'exposé de la méthode de symétrisation permettant d'obtenir des taux de transfert vérifiant le principe de bilan détaillé.

Dans la partie C, on donne les conditions et les résultats des études expérimentales que l'on a effectuées et l'on compare aux prévisions théoriques du § B. Les extensions possibles de ce travail sont mentionnées dans la partie D.

- B -

COLLISIONS NON RESONNANTES EN CHAMP INTENSE
MODELE THEORIQUE POUR UNE INTERACTION DE VAN DER WAALS

L'étude théorique exposée dans cette partie est, en ce qui concerne les méthodes très semblable à celle réalisée dans la partie I-B.

On met cependant en évidence une différence importante dans la situation présente : l'existence de taux de transferts différents entre les sous-niveaux Zeeman $m = 0$ et $m = \pm 1$. Cet aspect et ses implications expérimentales sont discutées dans le texte et dans les annexes 1 et 2 à la partie théorique qui suivent immédiatement l'article.

La référence 1 de l'article désigne la partie I-B de ce mémoire et la référence 5, l'annexe 1 de la partie II-B. La référence 10 renvoie en général aux annexes à la partie théorique.

De manière générale, les notations et conventions adoptées sont celles définies dans la partie I-B dont cet article constitue l'extension logique.

- 1 - INTRODUCTION ET HYPOTHESES DU MODELE
- 2 - SYMETRIES DE LA RELAXATION
- 3 - METHODES DE CALCUL DES COEFFICIENTS DE RELAXATION
- 4 - RESULTATS
- 5 - DISCUSSION DES HYPOTHESES DU MODELE
 - 5-1-Trajectoire et expression du potentiel
 - 5-2-Conservation de l'énergie et bilan détaillé
- 6 - ANISOTROPIE DE LA RELAXATION
- 7 - APPLICATIONS
- 8 - CONCLUSIONS

APPENDICE 1 - Relations entre les coefficients de relaxation dans les deux bases de l'espace de Liouville

APPENDICE 2 - Formes asymptotiques des coefficients de relaxation

- ANNEXE 1 - Calcul asymptotique de la différence entre les taux de transfert $m=0 \rightarrow m=\pm 1$
- ANNEXE 2 - Etude numérique des probabilités de transfert $m=0 \rightarrow m=\pm 1$
- ANNEXE 3 - Démonstration quantique des relations de symétrie
- ANNEXE 4 - Bilan détaillé en présence d'un champ magnétique
- ANNEXE 5 - Symétrisation des résultats de la théorie semi-classique

R É S U M É

L'influence d'un champ magnétique intense sur les collisions en phase vapeur est étudiée dans le cas des collisions non résonnantes entre un atome excité dans un niveau $J = 1$ et un atome perturbateur sans structure dans l'état fondamental.

Le modèle suppose que le potentiel d'interaction varie en R^{-6} avec la distance. On ne prend en considération que la partie anisotrope de l'interaction. La collision est traitée dans l'approximation d'impact à trajectoires rectilignes. Les hypothèses admises dans ce modèle sont donc a priori justifiées essentiellement dans le cas des collisions entre atomes lourds.

Les effets du caractère fini de la durée de la collision comparée à la période de l'évolution du niveau excité sous l'influence du champ sont traités. On établit dans ce modèle simple les symétries de la matrice de relaxation à l'aide de méthodes exposées dans une précédente publication.

On montre que la relaxation est anisotrope et qu'il existe en particulier des termes de couplage entre les composantes de l'orientation et de l'alignement dans l'état excité de l'atome. Ceci se traduit par l'existence de taux de transferts différents du sous-niveau Zeeman $m = 0$ vers les sous-niveaux $m = \pm 1$. On en déduit une méthode simple pour déterminer le signe de l'anisotropie du potentiel.

On donne enfin, les variations en fonction du champ des diverses grandeurs décrivant la relaxation obtenues par résolution numérique de l'équation de Schrödinger. Les résultats sont comparés à ceux obtenus lors de récentes études expérimentales.

1 - INTRODUCTION ET HYPOTHESES DU MODELE

On étudie les effets d'un champ magnétique intense sur les transferts par collision entre sous-niveaux Zeeman d'un atome (¹), dans le cas des collisions entre un atome excité dans un niveau $J=1$ de résonance et un perturbateur sans structure à l'état fondamental.

Sous l'action du champ magnétique, l'état excité de l'atome précesse à la fréquence de Larmor ω . On se place dans des conditions telles que $\omega.T_c \gg 1$ où T_c est la durée moyenne d'une collision. On ne peut donc pas négliger l'évolution de l'état excité atomique sous l'action du champ, pendant la durée de la collision.

On supposera que les effets de la collision peuvent être décrits avec une interaction à longue distance du type Van der Waals en R^{-6} , et que l'hypothèse de trajectoires rectilignes est valable. Le modèle que nous développons, contrairement à celui de la référence 1, est beaucoup moins bien justifié physiquement dans la mesure où le potentiel est mal connu dans le cas des collisions non résonnantes. L'approximation de trajectoire rectiligne n'est pas toujours justifiée puisque les sections efficaces sont beaucoup plus faibles que dans le cas des collisions résonnantes et souvent comparables aux sections efficaces cinétiques. Ce modèle doit donc être considéré comme une première approche d'un problème complexe et est destiné essentiellement à mettre en évidence qualitativement les effets que l'on peut attendre en présence d'un champ magnétique intense.

On pourra cependant l'appliquer en première approximation aux collisions entre atomes lourds très polarisables pour lesquels les sections efficaces de transfert entre sous-niveaux Zeeman sont fortes : par exemple aux collisions $Hg^*(6^3P_1)$ -Xénon où l'interaction d'échange à courte distance semble jouer un rôle peu important (²).

Les méthodes utilisées dans la suite sont analogues à celles adoptées dans l'article précédent (¹). On se bornera donc à signaler les différences essentielles dans le traitement, liées à la dépendance en R^{-6} de l'interaction et à la non invariance du Hamiltonien dans l'échange des atomes.

2 - SYMETRIES DE LA RELAXATION

On suppose que la structure fine de l'état excité est grande par rapport à la levée de la dégénérescence Zeeman. L'effet du champ est alors décrit par le Hamiltonien Zeeman

$$H_z = g_J \cdot \mu_B \cdot J_z \cdot B = \omega \cdot J_z$$

où g_J est le facteur de Landé du niveau excité ($\hbar = 1$).

2-1-Forme du potentiel d'interaction

L'expression du potentiel à longue distance entre un atome dans l'état excité de moment cinétique J et un perturbateur à symétrie sphérique dans l'état fondamental peut se mettre moyennant un certain nombre d'approximations ⁽²⁾ ⁽³⁾ sous la forme :

$$V(\vec{J}, \vec{R}) = A \frac{J^2}{R^6} + \frac{p}{R^6} \left(J_u^2 - \frac{J^2}{3} \right)$$

où u est la direction de l'axe internucléaire pendant la collision. Le premier terme représente la partie isotrope du potentiel et le second la partie anisotrope. Les signes des paramètres A et p dépendent des situations physiques envisagées. Comme le potentiel est en général attractif à longue distance, la constante A est négative. Le signe de p dépend de la nature du couplage de configuration dans le niveau considéré. Ceci peut être mis en évidence à l'aide d'un modèle simplifié de la façon suivante ⁽²⁾ : l'interaction à longue distance est de nature purement orbitale. Elle se met donc sous la forme $(L_u^2 - \frac{L^2}{3})$ à une constante proportionnelle à A près en supposant que le couplage soit de type LS. Les éléments de matrice de cet opérateur à l'intérieur d'un niveau $^{2S+1}L_J$ déterminé ont le signe $(-)^{L+S+J}$. On montre ainsi, dans ce cas particulier, que le signe de la constante p dépend de L , S et J . En particulier, les signes de p pour des niveaux 1P_1 et 3P_1 issus de la même configuration sont opposés ⁽²⁾.

On peut décrire la collision entre l'atome dans l'état excité $J=1$ et le perturbateur à symétrie sphérique en termes moléculaires dans la mesure où les deux atomes constituent une quasi molécule en cours de la collision. Il existe respectivement deux états Π pour lesquels la projection de \vec{J} sur l'axe internucléaire vaut $|m_u| = 1$ et un état Σ ($m_u = 0$). La partie anisotrope $\frac{p}{R^6} (J_u^2 - \frac{J^2}{3})$ du potentiel caractérise donc les positions relatives des niveaux d'énergie de la quasi-

molécule au cours de la collision. Lorsque le paramètre p est positif, les états Π ont une énergie plus grande que l'état Σ .

A l'approximation de trajectoire rectiligne, la partie isotrope du potentiel n'a d'importance que pour la relaxation des trois composantes du dipôle électrique (2). Son effet sur l'état excité de l'atome se restreint à un déphasage. La relaxation des observables de l'état excité atomique n'en dépend donc pas et nous omettrons la partie isotrope du potentiel dans la suite de cet article. Notons néanmoins qu'on a généralement $A > p$ et que la partie isotrope serait essentielle pour la détermination d'une trajectoire non rectiligne (2).

2-2-Expression du potentiel et notations

La dépendance angulaire de la partie anisotrope du potentiel est identique à celle du potentiel dipôle-dipôle au premier ordre en R^{-3} pour un état excité $J=1$ et un état fondamental $J=0$ (1).

Dans une base standard dans la direction du champ magnétique, on peut donc l'écrire sous la forme (1) :

$$V(x) = q \sum_{q_1} (-)^{q_1} U_{-q_1}^2(\varphi, \theta, \gamma, x) \cdot T_{q_1}^2 \quad (1)$$

avec

$$U_q^2(\varphi, \theta, \gamma, x) = \sum_{q_1} u_{q_1}^2(x) \cdot R_{q_1 q}^{(2)}(\varphi, \theta, \gamma)$$

et des notations analogues à celles employées dans une publication précédente (1). $(\varphi, \theta, \gamma)$ sont les angles d'Euler de la rotation qui fait passer du système des axes de la collision (1) où Oz est perpendiculaire au plan de collision au référentiel fixe de l'espace où OZ est dans la direction du champ magnétique.

Lorsque la partie anisotrope du potentiel varie en R^{-6} avec la distance, l'expression des coefficients $u_q^2(x)$ est la suivante (5) :

$$u_{\pm 2}^2(x) = (1 \pm ix)^2 / 2r^8$$

$$u_{\pm 1}^2(x) = 0$$

$$u_0^2(x) = -1/\sqrt{6} r^6$$

où l'on a utilisé les variables réduites :

$$x = \frac{vt}{b} \quad r^2 = 1 + x^2 = R^2/b^2$$

pour décrire la collision.

Nous conviendrons que dans la suite le paramètre p , "force" de la partie anisotrope du potentiel qui s'exprime en fonction de la polarisabilité du gaz perturbateur et des valeurs de LSJ pour le niveau de l'atome considéré est positif.

On définit alors les variables q , η et τ :

$$q = p/b^5 v \quad \eta = \omega b/v = \tau/q^{1/5}$$

$$\tau = \omega/\omega_a = \omega \cdot p^{1/5}/v^{6/5}$$

Les modifications essentielles par rapport à la référence 1 proviennent seulement de la dépendance en R différente du potentiel.

Avec les définitions et conventions précédentes ($p > 0$), la partie anisotrope du potentiel est telle que l'énergie des états Π de la pseudomolécule est plus grande que l'énergie de l'état Σ . Nous désignerons cette situation dans la suite par l'indice (+). La situation inverse où $E_{\Sigma} > E_{\Pi}$ sera désignée par l'indice (-) et obtenue en changeant q en $(-q)$ dans l'équation (1).

2-3-Symétries de la matrice de collision

Le hamiltonien, en représentation d'interaction par rapport au champ s'écrit formellement de la même façon que le hamiltonien des systèmes symétrique ou antisymétrique dans l'échange, dans la référence 1.

$$P(\varphi, \theta, \gamma, x) = e^{i\eta J_H x} V(x) e^{-i\eta J_H x}$$

Les propriétés (5) de la référence 1 relatives aux symétries de la matrice de collision Σ restent donc valables. On obtient avec les mêmes notations :

$$\Sigma(\pm, \varphi, \theta, \gamma - \beta) = R_z(\beta) \cdot \Sigma(\pm, \varphi, \theta, \gamma) \cdot R_z^\dagger(\beta)$$

$$\Sigma(\pm, \varphi, \theta, \gamma) = T(\xi) \cdot \Sigma^*(\pm, \varphi, \theta, \gamma + 2\xi) \cdot T(\xi)$$

$$\Sigma(\pm, \varphi, \theta, \gamma) \stackrel{\sim}{=} \Sigma(\pm, 2\pi - \varphi, \theta, -\gamma)$$

$$\Sigma(\pm, \varphi, \theta, \gamma) \stackrel{\sim}{=} \Sigma(\pm, \pi - \varphi, \theta, -\gamma)$$

$$\Sigma(\pm, \varphi, \theta, \gamma) = \Sigma(\pm, \pi + \varphi, \theta, \gamma)$$

où $R_z(\beta)$ et $T(\xi)$ désignent ⁽¹⁾ respectivement les représentations matricielles des opérateurs de rotation autour de OZ et de réflexion dans des plans contenant OZ. Rappelons que l'indice \pm désigne ici le signe de la partie anisotrope du potentiel et caractérise la position relative des courbes de potentiel associées aux niveaux Σ et Π de la pseudo-molécule constituée par les atomes au cours de la collision. Notons également que les relations (2) s'appliquent à la matrice de collision de l'atome alors que les relations (5) de la référence 1 sont valables pour les systèmes symétrique et antisymétrique dans l'échange.

2-4-Symétries de la relaxation

On définit les coefficients de relaxation dans les deux bases de l'espace de Liouville définies dans la référence 1. Les formules de passage de l'une à l'autre représentation sont données dans l'appendice 1. Les crochets désignent la moyenne angulaire à effectuer sur $\{\varphi, \theta, \gamma\}$.

$$\Pi_{qq'}^{kk'}(\pm) = \delta_{kk'} \delta_{qq'} - \text{Tr} \left(\{ T_q^{k\pm} \Sigma(\pm, \varphi, \theta, \gamma) T_q^{k'} \Sigma^\dagger(\pm, \varphi, \theta, \gamma) \}_{\text{ang}} \right)$$

$$\Pi^{(rr')(pp')} = \delta_{rp} \delta_{r'p'} - \{ \langle r | \Sigma | p \rangle \langle p' | \Sigma^\dagger | r' \rangle \}_{\text{ang}}$$

On obtient après un calcul simple utilisant les relations (2) :

$$\Pi_{qq'}^{kk'} = \delta_{qq'} \cdot \Pi_q^{kk'} \quad 3.1$$

$$\Pi_q^{kk'} = \Pi_q^{k'k} \quad 3.2$$

$$\Pi_q^{kk'} = \Pi_{-q}^{kk'} \quad 3.3$$

$$\Pi_q^{kk'}(+)= \Pi_q^{k+k'}(-) \quad 3.4$$

Les trois premières relations de (3) traduisent respectivement ⁽¹⁾ l'invariance du milieu extérieur dans les rotations autour de la direction du champ, l'invariance dans le produit du renversement du temps et de la réflexion dans des plans contenant le champ ⁽⁴⁾ ⁽¹⁰⁾, et l'hermiticité de la matrice densité du système. Ces relations peuvent être déduites de manière simple en utilisant une formulation quantique du problème ⁽⁴⁾ ⁽¹⁰⁾.

La dernière relation qui est l'analogue de la relation (10-4) de la référence 1 permet de relier les paramètres de la relaxation pour des positions

relatives inversées des courbes de potentiel des niveaux Σ et Π .

Les matrices de collisions $\Sigma(\pm)$ étant unitaires, il existe des relations de conservation qui se traduisent par :

$$\forall k \quad \Pi_0^{0k} = \Pi_0^{k0} = 0 \quad 3.5$$

L'ensemble des relations (3) conduit dans le cas de collisions entre un atome excité et un perturbateur sans structure à des caractéristiques de la relaxation différentes de celles obtenues dans la situation de la référence 1 (self-relaxation).

Il ne peut exister de termes de couplage entre la population et les autres multipôles de l'état excité. Par contre, la relation (10-4) de la référence (1) n'ayant pas ici d'équivalent, il peut exister des termes de couplage entre alignement et orientation (5).

Bien qu'elles présentent une certaine analogie sur le plan mathématique, les situations de la référence 1 et de cet article sont en définitive assez différentes. Dans la référence 1 le perturbateur possède une structure et peut donc conserver après la collision une partie de l'excitation et du moment cinétique. Les matrices Σ_1 et Σ_2 ne sont pas unitaires. Au contraire, on suppose ici que le perturbateur est dépourvu de structure ce qui se traduit en particulier par la relation de conservation (3.5). Il faut noter également que la relation (3.4) permet de relier les solutions de deux problèmes physiques distincts. Dans la référence 1, il existe une certaine analogie mathématique mais les solutions des systèmes symétrique et antisymétrique dans l'échange interviennent simultanément dans la solution du problème physique avec des atomes identiques.

On peut utiliser pour décrire la relaxation, la base de l'espace de Liouville constituée par les dyadiques $|J_m \rangle \langle J_p|$ construits sur la base standard liée au champ magnétique. Les relations (3) se traduisent dans cette base par les relations (4) que l'on peut déduire, par exemple à l'aide des relations de passage données dans l'appendice 1.

$$\Pi^{(rr')(pp')} = \delta_{r-r', p-p'} \cdot \Pi^{(rr')(pp')} \quad 4.1$$

$$\bar{\Pi}^{(rr')(pp')} = \Pi^{(pp')(rr')} \quad 4.2$$

$$\Pi^{(rr')(pp')} = I \cdot (r'r)(p'p) \star \quad 4.3$$

$$\Pi^{(rr')(pp')}_{(+)} = \Pi^{(-r-r')(-p-p')}_{(-)} \star \quad 4.4$$

Les relations de conservation se traduisent dans cette base par :

$$\forall r \quad \sum_p \Pi^{(rr)}(pp) = 0 \quad 4.5$$

L'élargissement et le déplacement des composantes de la raie optique sont définis de la manière usuelle par la relation :

$${}_{ef} \Pi^{mm} = 1 - \{ \langle m | \Sigma | m \rangle \}_{ang}$$

Il en résulte que

$${}_{ef} \Pi^{mm(+)} = {}_{ef} \Pi^{-m-m(-)}$$

Cette relation ne tient pas compte de la relaxation due à la partie isotrope du potentiel de Van der Waals qu'il serait facile de rajouter si l'on connaissait ce potentiel.

En conclusion, dans le cas d'un état excité $J=1$, les relations (3) et (4) signifient qu'il peut exister des termes de couplage entre orientation et alignement Π_q^{21} lors de la relaxation par collisions en champ magnétique intense (5). Le signe de ces termes dépend de la position relative des courbes de potentiel des niveaux Σ et Π de la pseudo-molécule. En particulier, les taux de transfert entre les sous-niveaux Zeeman $m = 0$ et $m = \pm 1$, peuvent être différents.

En outre, les coefficients de relaxation relatifs à chaque composante tensorielle de l'opérateur de rang k sont a priori différents et les composantes Zeeman optiques ne sont pas élargies et déplacées de la même façon.

Rappelons qu'en l'absence de champ magnétique, la relaxation possède la symétrie sphérique (2) et que l'on a :

$$\Pi_{qq'}^{kk'} = \delta_{qq'} \cdot \delta_{kk'} \cdot \Pi^k$$

3 - METHODES DE CALCUL DES COEFFICIENTS DE RELAXATION

On a utilisé les méthodes décrites dans la référence 1 pour intégrer numériquement l'équation de Schrödinger (la seule différence provenant de la variation en R^{-6} du potentiel).

L'évaluation des taux de relaxation a été faite en 3 étapes :

Pour $q \leq 0,1$ on a utilisé une approximation asymptotique des coefficients de relaxation qui est exposée dans l'appendice 2.

Pour q compris entre 0,1 et 20, on a résolu numériquement les systèmes d'équations couplées pour 15 valeurs de q , 7 valeurs de θ et 5 valeurs de φ .

Pour q de l'ordre de 100, on a résolu numériquement puis effectué une moyenne

sur quelques oscillations des probabilités de relaxation ou de transfert.

Après sommation sur le paramètre d'impact, on obtient les taux de relaxation ou de transfert en fonction du champ que l'on exprimera sous la forme :

$$\alpha\beta g^{(mm')}(pp')(\tau) = 2\pi Nv \int_0^\infty \alpha\beta \Pi^{(mm')}(pp')_{b.db}$$

On utilisera pour la présentation des résultats, les coefficients $f_q^{kk'}$ ou $f^{(mm')}(pp')$ introduits par FAROUX (2) et définis par :

$$f = \pi \cdot \int_0^\infty \Pi(q) d(1/q^{2/5}) = \frac{g}{N p^{2/5} v^{3/5}} \quad (6)$$

Ces coefficients dépendent par l'intermédiaire de τ de la valeur ω de la fréquence de Larmor et de la vitesse relative. Nous nous bornerons à présenter les résultats obtenus sans effectuer la moyenne sur la vitesse relative.

4 - RESULTATS

Les résultats sont présentés dans le tableau 1 dans le cas d'un potentiel de type + (anisotropie telle que $E_\Sigma < E_\Pi$). Une partie d'entre eux a été présentée indépendamment dans la référence 5 pour illustrer l'anisotropie de la relaxation dans les collisions en champ intense.

La figure 1 montre que les termes de couplage f_q^{21} entre orientation et alignement prennent des valeurs notables dès que τ est différent de 0. Il pourra donc y avoir création d'orientation par collisions dans une vapeur alignée. D'après la relation (3.4) le sens de l'orientation créée dépend du signe de la partie anisotrope du potentiel. Le terme de couplage entre alignement et orientation longitudinaux f_0^{21} change de signe pour des valeurs de τ de l'ordre de 4. Remarquons que dans la situation de la référence 1, il existe des termes de même nature sous forme de corrélations entre les atomes après la collision. Celles-ci n'étant pas observables expérimentalement, nous avons négligé ces termes.

L'anisotropie de la relaxation se traduit également par l'existence d'élargissements et de déplacements différents pour les trois composantes de la raie optique. Nous ne présentons pas ces résultats puisque la partie isotrope du potentiel essentielle pour l'évaluation de l'élargissement et du déplacement

n'est pas prise en compte dans le calcul (le choix d'une forme précise et générale est difficile).

Les variations en fonction du champ des taux de relaxation et de transfert exprimés dans la base dyadique Zeeman sont données sur les figures 2 et 3.

On met en évidence le comportement très différent en fonction du champ des taux de transfert entre les sous-niveaux Zeeman $m=0$ et $m = \pm 1$. Lorsque l'anisotropie du potentiel est telle que l'énergie du niveau Σ de la quasi-molécule est inférieure à celle des niveaux Π (potentiel de type +), le taux de transfert de $m = 0$ vers $m = -1$ est plus grand que le taux de transfert de $m = 0$ vers $m = 1$ en champ faible ($\tau < 4$ - cf. FIG 2). En régime stationnaire, dans le cas où l'on excite continûment les atomes dans le sous-niveau $m = 0$, le sous-niveau $m = +1$ sera moins peuplé que le sous-niveau $m = -1$. Au contraire, lorsque $E_{\Sigma} > E_{\Pi}$ (potentiel de type -), le sous-niveau Zeeman $m = +1$ sera plus peuplé que le sous-niveau $m = -1$ pour les valeurs du champ telles que $\tau \lesssim 4$. Ceci fournit donc une méthode extrêmement simple pour déterminer le signe de la partie anisotrope du potentiel. Remarquons que le comportement des taux de transfert diffère selon la valeur du champ et selon le signe de la partie anisotrope du potentiel mais qu'il est décroissant aux fortes valeurs du champ ($\tau \approx 5$). Le taux de transfert entre les sous-niveaux $m = 1$ et $m = -1$ est toujours décroissant quelle que soit la valeur de τ .

Un modèle simple analogue à celui de la référence 1 (approximation séculaire) permet de prévoir que les valeurs de saturation en champ très fort de tous les coefficients sont nulles excepté pour $f^{(10)}(10)$ ce qui s'explique bien dans la mesure où le potentiel dans l'approximation séculaire vu par les niveaux $m = 1$ et $m = 0$ est différent. Les courbes présentées sur les figures 1, 2, 3 montrent donc que les différents taux de relaxation ou de transfert ne se satureront pas encore pour τ de l'ordre de 5. Néanmoins nous n'avons pas étendu l'étude à de plus grandes valeurs de τ en raison de la convergence très lente de la section efficace en fonction de q pour le potentiel en R^{-6} . De plus, pour $\tau \approx 5$, la contribution à longue distance à la section efficace a décru notablement. Les résultats de la résolution numérique dépendront donc de plus en plus du modèle adopté dans la région de collisions fortes où de toute façon le modèle de potentiel et les hypothèses de cette étude sont peu réalistes.

5 - DISCUSSION DES HYPOTHESES DU MODELE

Pour une première approche des problèmes de collisions en champ magnétique intense la méthode semi-classique avec trajectoire rectiligne que nous avons employée semble s'imposer, ne serait-ce que parce qu'elle permet de dégager l'existence d'un certain nombre d'effets fondamentaux caractérisant l'action du champ magnétique et parce que son emploi permet de simplifier assez considérablement la résolution de ce problème complexe.

5-1-Trajectoire et expression du potentiel

Même dans le cas des atomes lourds, il est probable que l'approximation de trajectoires rectilignes n'est pas totalement justifiée. Dans le cas des collisions entre atomes légers, c'est à fortiori une approximation médiocre puisque les valeurs du moment orbital relatif l sont de l'ordre de quelques dizaines. En outre, l'expression adoptée pour le potentiel n'est pas valable dans ce cas puisque les atomes animés d'une grande vitesse relative interagissent à de plus courtes distances où les effets du potentiel répulsif d'échange sont dans doute primordiaux. Il peut en résulter de grandes déviations de la particule relative après la collision.

L'approximation d'impact à trajectoire rectiligne, avec un potentiel de Van der Waals attractif peut être valable en première approximation pour décrire les collisions entre atomes lourds (²). Mais même dans ce cas la partie répulsive à courte distance du potentiel ne sera pas totalement négligeable, en particulier pour les très grandes valeurs du champ. De plus, les effets de courbure de la trajectoire avec un potentiel en R^{-6} ne sont pas nécessairement négligeables (⁶).

5-2-Conservation de l'énergie et bilan détaillé

Le modèle que nous avons développé ne conserve pas l'énergie. L'hypothèse de trajectoire classique rectiligne décrite à vitesse constante suppose implicitement que l'évolution de l'état interne des atomes est découplée de l'évolution des variables décrivant la trajectoire. Ceci constitue l'hypothèse la plus simple mais il est bien clair qu'elle n'est justifiée que pour des changements de l'énergie de l'état interne petits devant kT .

En présence d'un champ magnétique appliqué au système la démonstration habituelle du principe de bilan détaillé n'est pas valable. Elle suppose en effet que le système soit invariant par renversement du temps ce qui permet de relier les amplitudes de diffusion des processus direct et inverse temporels (8). Cette condition n'est pas réalisée en présence du champ magnétique. On peut cependant éviter la difficulté en remarquant que le système est invariant dans le produit du renversement du temps et de la réflexion dans un plan contenant le champ magnétique (4). La suite de la démonstration du principe de bilan détaillé s'applique alors et l'on obtient (10) :

$$g^{(mm)}(pp) = e^{-(m-p)\hbar\omega/kT} g^{(pp)}(mm) \quad (7)$$

Les taux de transfert par collision obtenus au §4 ne satisfont pas à la relation (7). Les relations de symétrie obtenues au §2 ne sont valables qu'à la limite $\hbar\omega \ll kT$.

Mais en définitive les effets parasites à attendre de la non conservation de l'énergie dans le modèle ne sont certainement pas importants à la limite des faibles champs magnétiques ($H < 200$ kG). La correction des petits effets possibles peut être faite en utilisant la méthode proposée par JAMIESON et REID (7) qui donne de bons résultats dans le cas des collisions électron-atome et permet d'obtenir des expressions satisfaisant le principe de bilan détaillé à partir des résultats du tableau 1 (10).

6 - ANISOTROPIE DE LA RELAXATION

L'illustration la plus intéressante de l'anisotropie de la relaxation en champ fort est l'existence de taux de transfert différents entre les sous-niveaux Zeeman $m=0$ et $m = \pm 1$. L'effet est observable expérimentalement ; il dépend du signe de la partie anisotrope du potentiel (5). Le calcul asymptotique effectué dans la référence (5) révèle que pour les grandes valeurs du paramètre d'impact et les petites valeurs du champ on a :

$$\Pi^{(11)(00)}_{(+)} - \Pi^{(-1-1)(00)}_{(+)} \approx \frac{7}{2(16)^3} \pi^2 \eta q^3 \propto \Pi_0^{21}_{(+)}$$

Lorsque l'anisotropie du potentiel est telle que $E_{\Sigma} < E_{\Pi}$ (potentiel +), le taux de transfert de $m = 0$ vers $m = -1$ aux petites valeurs du champ est donc plus grand que le taux de $m = 0$ vers $m = 1$ (avec la définition des coefficients utilisée §2, les taux de transfert sont négatifs).

La forme asymptotique en ηq^3 obtenue pour Π_0^{21} ne permet pas de donner à l'existence de ce terme une interprétation simple. On peut cependant remarquer qu'il est du 1er ordre en champ et du 3ème ordre dans le potentiel ce qui est le résultat obtenu par LOMBARDI (9) dans une autre situation, mais on doit remarquer qu'ici la nécessité d'effectuer des moyennes angulaires rend difficile toute interprétation simple. L'étude numérique pour une valeur de (q, τ) déterminée en fonction de (θ, φ) fait apparaître que les collisions pour lesquelles la trajectoire est contenue dans un même plan que le champ jouent un rôle privilégié encore qu'il ne soit pas déterminant, pour l'obtention de probabilités de transfert $\Pi^{(11)(00)}$ et $\Pi^{(-1-1)(00)}$ différentes. On peut également montrer (10) qu'il existe dans cette situation des anticroisements des niveaux d'énergie au cours de la collision ce qui ne se produit pas lorsque le champ est nul ($\tau = 0$). L'étude des probabilités de transition au cours de la collision ne permet cependant pas de corréler formellement à l'existence de ces anticroisements le fait que le transfert s'effectue préférentiellement vers l'un des sous-niveaux Zeeman au cours du processus (10).

Un raisonnement intuitif permet de prévoir l'influence de la non-conservation de l'énergie sur les valeurs des taux de transfert obtenues dans le tableau 1.

La transition de $m = 0$ vers $m = -1$ est plus probable que la transition de $m = 0$ vers $m = +1$ (réactions exo et endothermiques). Par conséquent dans le cas où l'anisotropie du potentiel est de type + ($E_{\Sigma} < E_{\Pi}$) cela va renforcer la différence entre les taux de transfert. Dans le cas où l'anisotropie est de type - ($E_{\Sigma} > E_{\Pi}$) les effets liés à la conservation de l'énergie vont diminuer les effets spécifiques du potentiel qui favorisent la transition vers le niveau $m = +1$. On peut montrer (10) en utilisant la méthode de symétrisation de la référence 7 que pour les petites valeurs de l'écart d'énergie les estimations de notre modèle peuvent être améliorées en remplaçant les taux de transfert obtenus dans le tableau 1 par les quantités :

$$\tilde{g} (pp) (mm) = e^{\frac{\hbar\omega}{2kT} (m-p)} g (pp) (mm)$$

ce qui constitue le choix le plus simple pour obtenir des taux de transfert satisfaisant au principe de bilan détaillé.

7 - APPLICATIONS

Nous allons donner les ordres de grandeur pour quelques éléments de ω_a et du champ B_a qu'on peut lui associer. La valeur de ω_a est définie par la relation

$$\omega_a = 2\pi \cdot \nu_a = (\nu^6/p)^{1/5} \quad (8)$$

On peut lui associer une valeur caractéristique du champ magnétique définie par

$$\omega_a = g_J \cdot \mu_B \cdot B_a \quad (8')$$

L'évaluation des ordres de grandeur de ω_a ou de B_a nécessite de connaître la valeur de p "force" de la partie anisotrope du potentiel. Une détermination théorique est actuellement problématique puisqu'elle exige la connaissance des forces d'oscillateur de toutes les transitions aboutissant au niveau considéré (2)(3). Nous prendrons donc pour déterminer la valeur de p une approche expérimentale sous-entendant les hypothèses suivantes : on suppose que les collisions peuvent être décrites avec le potentiel de Van der Waals en R^{-6} à l'approximation de trajectoire rectiligne. On déduit en champ nul l'expression des sections efficaces moyennées sur les vitesses $\bar{\sigma}^k$ (*) pour la relaxation des multipôles d'ordre k de l'état excité de l'atome.

L'expression donnée par FAROUX (2) est :

$$\bar{\sigma}^k = p^{2/5} \cdot \Gamma(9/5) \cdot f^{(k)} \cdot \left(\frac{2kT}{m^*} \right)^{-1/5}$$

où $f^{(k)}$ est défini par l'équation (6) et vaut respectivement 2,86 pour $k=1$ et 2,55 pour $k=2$, et m^* est la masse réduite des atomes.

(*) Note : La définition des sections efficaces est celle de FAROUX (2). Si γ^k désigne le taux de relaxation de l'observable d'ordre k de l'état excité, on a :

$$\gamma^k = N \bar{\sigma}^k \langle v \rangle = 2N \bar{\sigma}^k \left(\frac{2kT}{\pi m^*} \right)^{1/2}$$

La connaissance des sections expérimentales permet l'évaluation de p dans ce modèle. On peut déduire, compte tenu de (8') une expression du champ B_a , en adoptant pour valeur de la vitesse dans (8), la vitesse relative la plus probable.

$$u = \left(\frac{2kT}{m^*} \right)^{1/2}$$

(Ce choix se justifie dans la mesure où la quantité u s'introduit naturellement lorsque l'on effectue la moyenne sur la vitesse relative des atomes avec une distribution de Maxwell-Boltzmann). On obtient ainsi :

$$B_a = \frac{2,6 \cdot 10^3}{g_J} \left[\frac{f(k)}{\sigma(k)} \frac{1}{M^*} \right]^{1/2} \left(\frac{T}{300} \right)^{1/2} \quad (9)$$

où σ^k est la section efficace expérimentale exprimée en Å^2 , M^* la masse réduite atomique du système en grammes. Le champ B_a est exprimé en kilogauss. Cette définition du champ critique (pour lequel $\omega = \omega_a$) qui sous-entend que le potentiel varie en R^{-6} avec la distance, n'est certainement pas valable pour les collisions entre atomes légers pour lesquelles les forces d'échange à courte distance jouent un grand rôle et pour lesquelles l'hypothèse de trajectoires rectilignes est mauvaise. Par contre, les hypothèses doivent être assez bien réalisées dans le cas des collisions entre atomes lourds. Soulignons une nouvelle fois que des champs magnétiques de l'ordre de plusieurs fois B_a sont nécessaires si l'on veut observer des variations significatives des sections efficaces.

Nous donnons dans le tableau 2 les champs critiques calculés à partir des sections efficaces en champ nul mesurées par divers auteurs, dans le cas des collisions du Cadmium ou du Mercure avec divers types de perturbateurs. Il va sans dire que dans la plupart des cas les valeurs calculées n'ont de sens que pour les gaz perturbateurs lourds et polarisables (Kr, Xe), les autres valeurs étant données à titre indicatif. De manière générale les cas favorables caractérisés par de faibles valeurs du champ critique seront constitués par les collisions d'atomes lourds (masse réduite élevée) très polarisables (sections efficaces élevées). Les collisions Plomb-Gaz rares ou Thallium-Gaz rares entrent donc dans cette catégorie. Les atomes légers dans des niveaux très excités pourront également offrir des situations favorables.

Les études expérimentales réalisées jusqu'à présent l'ont été dans le cas des collisions Mercure (6^3P_1)-Gaz rares et Sodium-Gaz rares. Dans ce dernier cas les variations observées avec le champ paraissent faibles ⁽¹¹⁾.

Dans le cas des collisions Mercure-Gaz rares, on a observé au cours de deux séries d'expériences effectuées dans des gammes de champ de 80 et 200 kG les variations des taux de transfert par collision ⁽¹²⁾⁽¹³⁾. La comparaison des résultats expérimentaux obtenus pour le Xénon et le Krypton aux prévisions de notre modèle permet de montrer que les variations de la moyenne des taux de transfert de $m=0$ vers $m=\pm 1$ sont plus faibles que celles prévues théoriquement. Ceci suggère que même dans le cas des gaz rares lourds, l'hypothèse d'un potentiel en R^{-6} attractif avec trajectoire rectiligne n'est pas suffisante pour interpréter les résultats expérimentaux.

Le résultat le plus important ⁽¹³⁾ est sans doute l'observation expérimentale de comportements très différents en fonction du champ du rapport $g^{(-1-1)(00)}/g^{(11)(00)}$ des taux de transfert du niveau $m=0$ vers les niveaux $m = \pm 1$, selon la nature du gaz rare.

Dans le cas des gaz rares lourds, on observe que le rapport passe par un minimum aux valeurs prévues par la théorie précédente (≈ 50 kG pour le Xénon et 60 kG pour le Krypton). Dans le cas des gaz rares légers, au contraire, le rapport croît rapidement avec le champ et reste toujours supérieur à 1. Ceci est en accord qualitatif avec nos prévisions bien que dans le cas du Xénon et du Krypton l'amplitude du minimum soit plus faible que celle prévue par la théorie (sans moyenne sur la vitesse).

On peut ainsi conclure que pour les collisions Hg (6^3P_1)-Xénon ou Krypton, l'énergie du niveau Σ est supérieure à celle des niveaux Π ce qui est la disposition que l'on peut prévoir à l'aide d'un potentiel de Van der Waals attractif. Dans le cas de l'Argon, il n'existe pas de minimum du rapport mais un comportement stationnaire jusqu'à 60 kG suivi d'une croissance rapide à la manière des gaz rares légers. Ce comportement pourrait résulter d'effets combinés des potentiels attractif et répulsif. Dans le cas des gaz rares légers le signe de l'anisotropie est tel que $E_{\Pi} > E_{\Sigma}$ ce qui correspond à la disposition que donnerait le potentiel d'échange répulsif. Ces résultats sont en accord avec la disposition admise habituellement ⁽²⁾.

8 - CONCLUSIONS

En conclusion, les valeurs des champs magnétiques nécessaires pour observer des variations importantes des taux de transfert sont dans le cas des collisions non résonnantes beaucoup plus élevées que dans le cas des collisions résonnantes ⁽¹⁾. Ceci est aisément prévisible dans la mesure où les sections efficaces sont 5 à 10 fois plus faibles et le temps de collision plus court. Il faut donc pour réaliser la condition $\omega.T_c \gg 1$ des valeurs plus élevées du champ.

Dans le cas général où la structure fine des niveaux excités n'est pas très grande devant l'énergie Zeeman (ce qui n'est pas le cas pour le mercure pour $H \lesssim 200$ kG), il sera nécessaire de tenir compte des effets de découplage de \vec{L} et \vec{S} et cela compliquera le modèle théorique et l'interprétation des résultats expérimentaux ⁽¹¹⁾.

Le modèle que nous avons présenté est destiné à fixer quelques ordres de grandeur et à mettre en évidence certains effets nouveaux liés à l'action du champ. Il ne prétend pas dispenser d'une étude précise de chaque cas particulier qui pourra éventuellement exiger un traitement quantique de la collision.

L'extension des calculs au cas où le potentiel en R^{-6} comporte une correction répulsive en R^{-12} (potentiel de Lennard-Jones) avec la trajectoire classique permettra une comparaison avec les résultats expérimentaux obtenus pour les collisions $Hg^*(6^3P_1)$ -Gaz rares en particulier dans le cas de l'Argon.

LEGENDES DES FIGURES

FIG 1 - Variations en fonction de τ (proportionnel à $B.v^{-6/5}$) des coefficients de couplage orientation-alignement et de la partie imaginaire des coefficients de relaxation des grandeurs transversales

$$\begin{array}{lll} \text{a) } f_1^{21}(+) \text{ R} & \text{b) } f_0^{21}(+) & \text{c) } f^{(10)(10)}(+) \text{ I} \\ \text{d) } f^{(0-1)(0-1)}(+) \text{ I} & & \text{e) } f^{(1-1)(1-1)}(+) \text{ I} \end{array}$$

FIG 2 - Variations en fonction de τ de la valeur absolue des taux de transfert $f^{(mm)(pp)}(+)_{\pm}$ entre les sous-niveaux Zeeman

$$\begin{array}{ll} \text{a) } f^{(11)(-1-1)}(+) & \text{b) } f^{(-1-1)(00)}(+) = f^{(11)(00)}(-) \\ \text{c) } f^{(11)(00)}(+) = f^{(-1-1)(00)}(-) & \end{array}$$

L'indice \pm repère le signe de l'anisotropie du potentiel (+ correspond à $E_{\Sigma} < E_{\Pi}$).

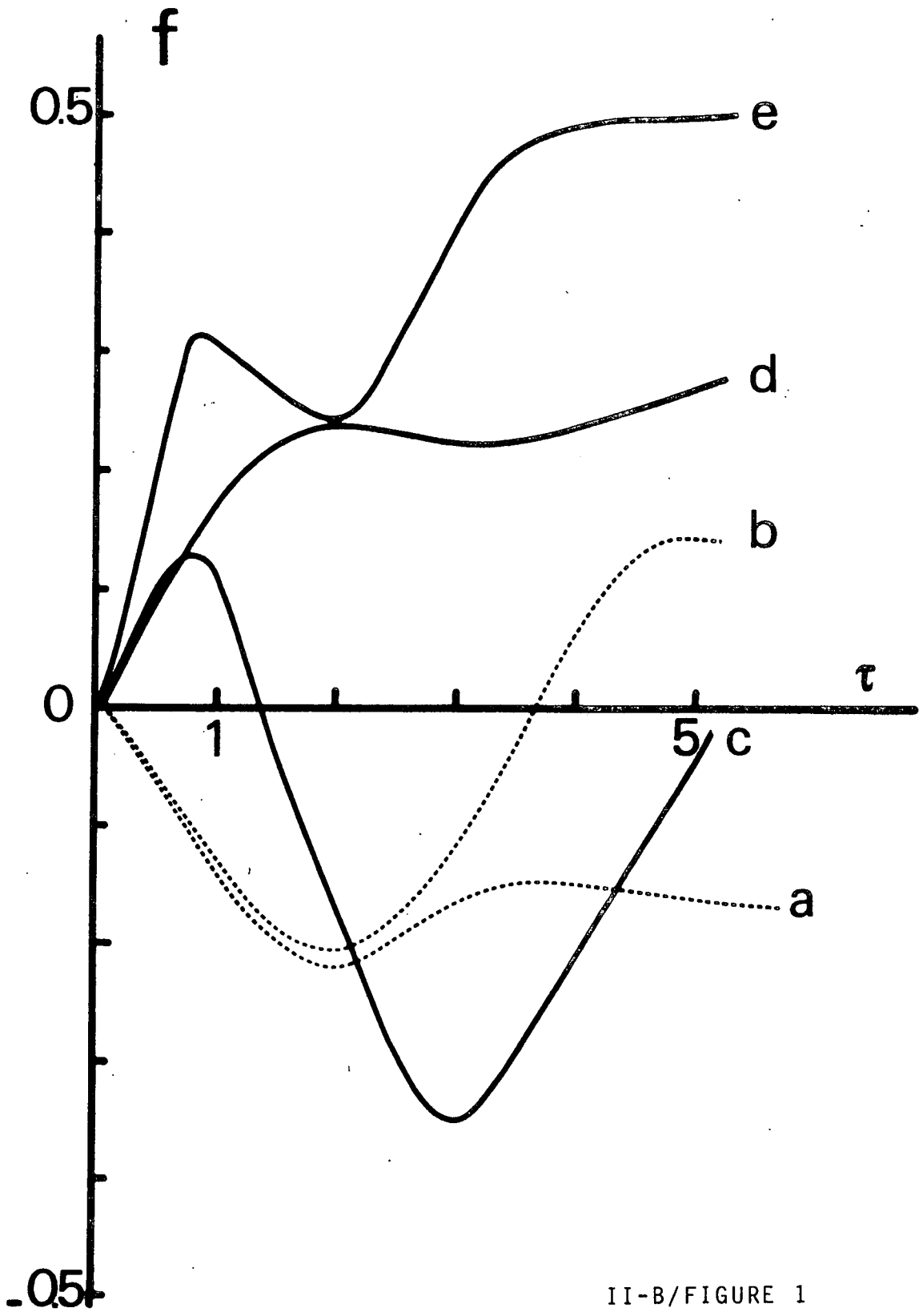
FIG 3 - Variations en fonction de τ de la partie réelle des taux de relaxation

$$\begin{array}{lll} \text{a) } f^{(-1-1)(-1-1)}(+) & \text{b) } f^{(11)(11)}(+) & \text{c) } f^{(00)(00)}(+) \\ \text{d) } f^{(1-1)(1-1)}(+) \text{ R} & \text{e) } f^{(10)(10)}(+) \text{ R} & \text{f) } f^{(0-1)(0-1)}(+) \text{ R} \end{array}$$

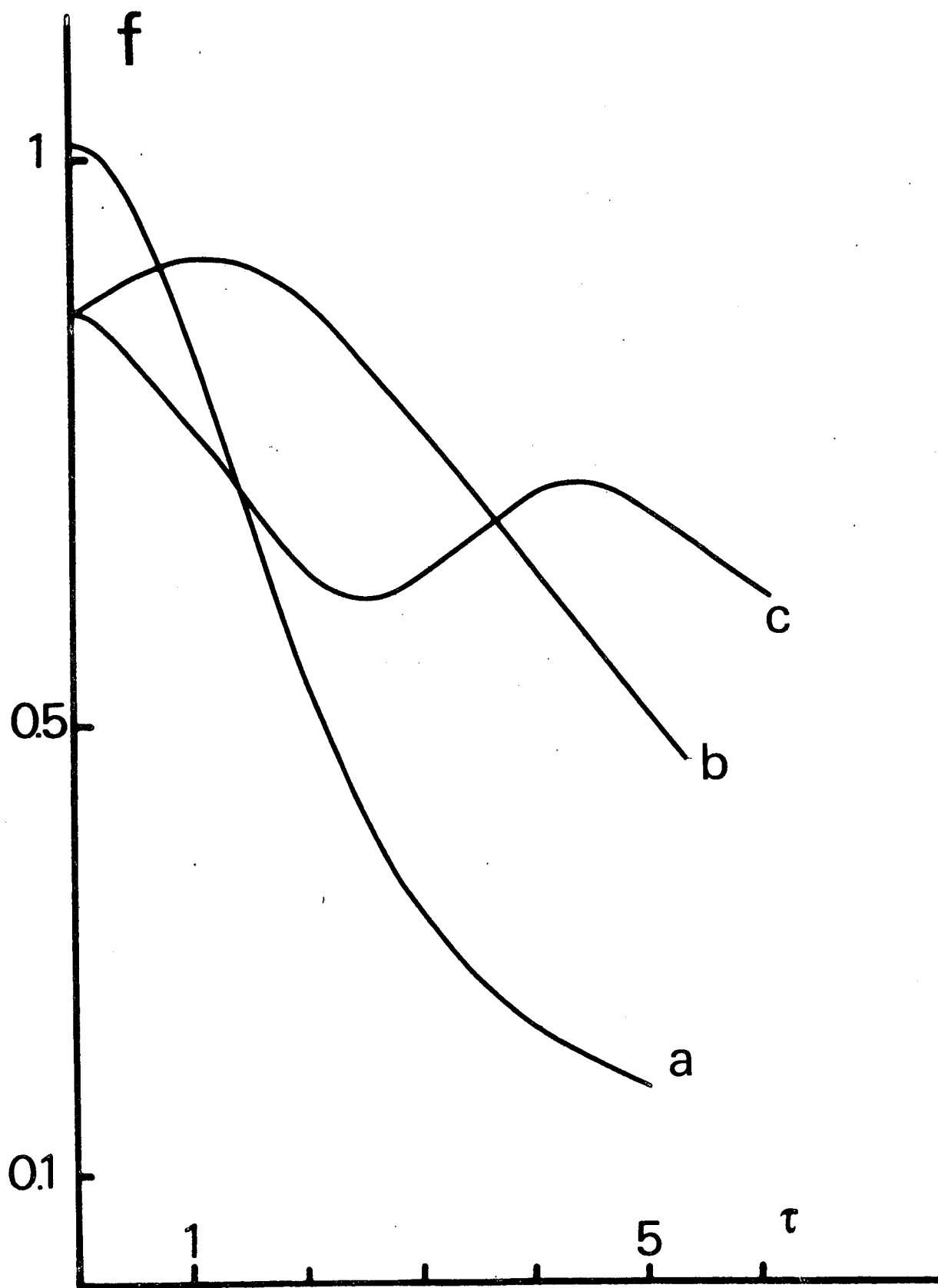
LEGENDES DES TABLEAUX

Tableau 1 - Valeurs des coefficients $f^{(mm')(pp')}(+)_{\pm}$ et des coefficients $f^{21}(+)_{\pm}$ de couplage alignement-orientation en fonction de τ .

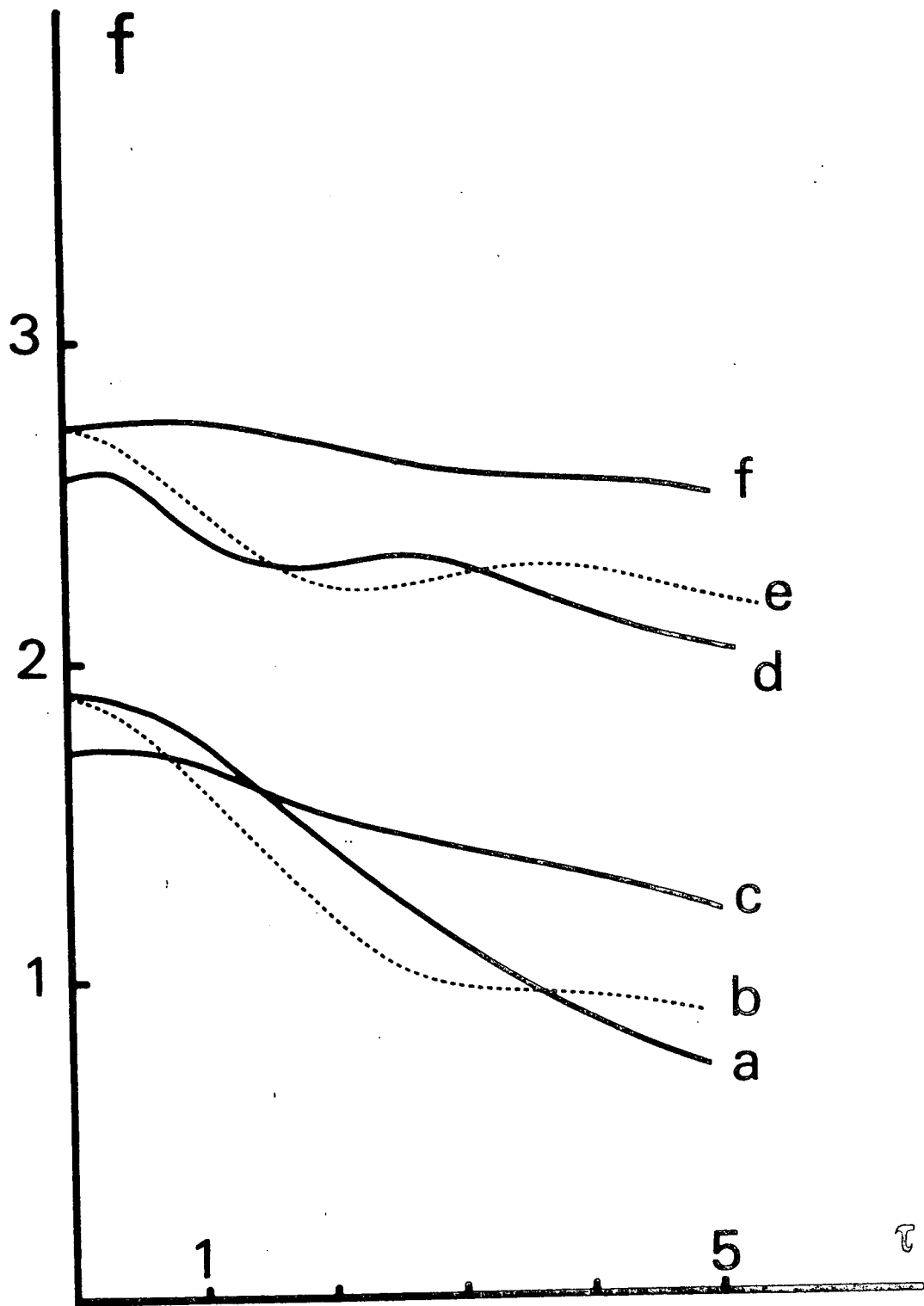
Tableau 2 - Ordres de grandeur des champs critiques définis par la formule (9) pour le Cadmium et le Mercure, dans le cas de divers perturbateurs.



II-B/FIGURE 1



II-B/FIGURE 2



τ \ / \ f	(11) (11)	(00) (00)	(-1 -1) (-1 -1)	(10) (10) R	(10) (10) I	(1 -1) (1 -1) R	(1 -1) (1 -1) I	(0 -1) (0 -1) R	(0 -1) (0 -1) I	(11) (00)	(-1 -1) (00)	(-1 -1) (11)	f_{21}^0	f_{21}^R	f_{21}^I
0	1.88	1.72	1.88	2.74	0	2.58	0	2.74	0	-0.86	-0.86	-1.02	0	0	0
0.5	1.60	1.73	1.86	2.65	0.10	2.56	0.21	2.76	0.09	-0.83	-0.90	-0.96	-0.06	-0.06	0
1	1.63	1.68	1.77	2.48	0.11	2.39	0.31	2.76	0.17	-0.77	-0.91	-0.86	-0.13	-0.14	-0.03
2	1.18	1.51	1.42	2.23	-0.18	2.30	0.24	2.67	0.24	-0.63	-0.88	-0.55	-0.21	-0.22	-0.21
3	0.97	1.40	1.10	2.28	-0.34	2.30	0.41	2.60	0.22	-0.63	-0.76	-0.34	-0.12	-0.16	-0.28
4	0.94	1.33	0.87	2.28	-0.21	2.14	0.49	2.57	0.24	-0.71	-0.63	-0.24	0.06	-0.15	-0.22
5	0.87	1.20	0.70	2.19	-0.04	2.03	0.49	2.52	0.27	-0.69	-0.51	-0.18	0.14	-0.16	-0.15

T A B L E A U 1 - Valeurs des coefficients $f^{(mm')}(pp')$ (+) et des coefficients f^{21} (+) de couplage alignement-orientation en fonction de τ .

Valeurs des champs critiques (kG) définis par la formule (9) du texte.

Les valeurs expérimentales des sections efficaces $\sigma^{(2)}$ utilisées sont celles des références (a)(b)(c)(d)(e).

(a) FAROUX J.P. : Thèse (Paris) 1969

(b) PIKETTY-RIVES C.A., GROSSETÊTE F. et BROSSEL J. : C.R.A.S. 258, 1189 (1964)

(c) JEAN P., MARTIN M. et LECLERC D. : C.R.A.S., 264, 1791 (1967)

(d) LANIEPCE B. et BARRAT J.P. : C.R.A.S. 264, 146 (1967)

(e) SAUSSEREAU H. et BARRAT M. : C.R.A.S., 268, 475 (1969)

	He ⁴	Ne	A	Kr	Xe	H ₂	N ₂	O ₂
Hg(6 ³ P ₁) T = 300 K	225	93	49	34	24	278	50,5	51
			(a)				(b)	
Hg(6 ¹ P ₁) T = 300 K	213	113	46	37	27	274	54	53
				(c)				
Cd(5 ³ P ₁) T = 460 K	261	113	60	43	31			
			(d)					
Cd(5 ¹ P ₁) T = 460 K	301	127	57	42	33	373	72	
				(e)				

★ R E F E R E N C E S ★

- (1) GAY J.C. : J. Phys. , article précédent
- (2) FAROUX J.P. : Thèse (Paris) 1969
- (3) OMONT A. : Journal de Physique 26 , 26 (1965)
- (4) OMONT A. : Progress in Quantum Electronics (1976) , à paraître
- (5) GAY J.C. : Journal de Physique-Lettres 36 L-239 (1975)
- (6) BARRAT J.P. et VIENNE-CASALTA D. : J. Physique 36, 919 (1975)
- (7) JAMIESON M.J. and REID R.H.G. : J. Phys. B 3 L104 (1970)
BATES D.R. : Comments Atomic and Molecular Physics 3, 23 (1971) et références de cet article
- (8) MESSIAH A. : Mécanique quantique Tome II - Dunod - Paris (1964)
- (9) LOMBARDI M. : Thèse - Grenoble (1969)
Journal de Physique 30, 631, 789 (1969)
- (10) GAY J.C. : Thèse (Paris 1976), à paraître
- (11) GAY J.C. et SCHNEIDER W.B. : soumis à Z. Für Physik
- (12) GAY J.C. et SCHNEIDER W.B. : Journal de Physique - Lettres, 36, L-185 (1975)
- (13) GAY J.C. et OMONT A. : Journal de Physique - Lettres, avril 1976
- (14) TSAO C.J. et CURNUTTE B. : J.Q.S.R.T. 2, 41 (1962)
- (15) ABRAMOWITZ M. and SEGUN A. : Handbook of Mathematical Functions
Dover New York (1968)
- (16) ABRAGHAM A. : Principes du magnétisme nucléaire P.U.F.-Paris (1961)

★ A P P E N D I C E 1 ★

*Relations entre les coefficients de relaxation
dans les deux bases de l'espace de Liouville*

Les relations entre les coefficients de relaxation $\Pi_{q}^{kk'}$ et $\Pi^{(rr')(pp')}$ dans les deux bases de l'espace de Liouville définies dans le texte sont données par la formule (1) :

$$\Pi^{(rr')(pp')} = \sum_{kqk'q'} (-)^{r'+p'} \langle 1|r-r'|k'q' \rangle \langle 1|p-p'|kq \rangle \Pi_{q'q}^{k'k}$$

Tenant compte des relations de symétrie obtenues au § 2, on obtient :

$$\Pi^{(11)(11)} = \frac{1}{6} \Pi_0^{22} + \frac{1}{2} \Pi_0^{11} + \frac{1}{\sqrt{3}} \Pi_0^{21}$$

$$\Pi^{(00)(00)} = \frac{2}{3} \Pi_0^{22}$$

$$\Pi^{(-1-1)(-1-1)} = \frac{1}{6} \Pi_0^{22} + \frac{1}{2} \Pi_0^{11} - \frac{1}{\sqrt{3}} \Pi_0^{21}$$

$$\Pi^{(10)(10)} = \frac{1}{2} \Pi_1^{22} + \frac{1}{2} \Pi_1^{11} + \Pi_1^{21}$$

$$\Pi^{(1-1)(1-1)} = \Pi_2^{22}$$

$$\Pi^{(0-1)(0-1)} = \frac{1}{2} \Pi_1^{22} + \frac{1}{2} \Pi_1^{11} - \Pi_1^{21}$$

$$\Pi^{(11)(00)} = -\frac{1}{3} \Pi_0^{22} - \frac{1}{\sqrt{3}} \Pi_0^{21}$$

$$\Pi^{(11)(-1-1)} = \frac{1}{6} \Pi_0^{22} - \frac{1}{2} \Pi_0^{11}$$

$$\Pi^{(00)(-1-1)} = -\frac{1}{3} \Pi_0^{22} + \frac{1}{\sqrt{3}} \Pi_0^{21}$$

$$\Pi^{(10)(0-1)} = -\frac{1}{2} \Pi_1^{22} + \frac{1}{2} \Pi_1^{11}$$

★ APPENDICE 2 ★

Formes asymptotiques des coefficients de relaxation

Le principe du calcul est analogue à celui effectué dans l'appendice 2 de la référence 1. La matrice de collision incluant les termes d'ordre 2 en q a la forme :

$$\Sigma = I + A + B$$

$$\begin{aligned} \text{avec} \quad A &= -i \int_{-\infty}^{+\infty} P(x) \cdot dx \\ B &= - \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{x'} P(x') \cdot P(x'') \cdot dx' \cdot dx'' \end{aligned} \quad (\text{A.1})$$

L'expression des coefficients $\Pi_{qq'}^{kk'}$, est donc au 2ème ordre en q :

$$\Pi_{qq'}^{kk'} = - \text{Tr} \{ T_q^{k\dagger} \cdot A \cdot T_{q'}^{k'} \cdot A^\dagger \} - \text{Tr} \{ (B) \cdot T_q^{k'} \cdot T_{q'}^{k\dagger} \} - \text{Tr} \{ T_q^{k\dagger} \cdot T_{q'}^{k'} \cdot (B^\dagger) \}$$

où les crochets désignent la moyenne angulaire à effectuer sur les orientations de \vec{b} et \vec{v} . Les termes en A et A^\dagger ont disparu de l'expression précédente en raison des moyennes angulaires.

Utilisant l'expression (1) du potentiel et la relation

$$\{ R_{q_2' - q_2}^{(2)} \cdot R_{q_1' - q_1}^{(2)} \} = \frac{(-)^{q_1' + q_1}}{5} \cdot \delta_{-q_2 q_1} \cdot \delta_{q_2' - q_1'}$$

il vient :

$$\{ U_{-q_1}^2 \cdot U_{-q_2}^2 \} = \frac{1}{5} \sum_{q_1'} (-)^{q_1' + q_1} u_{-q_1'}^2(x'') \cdot u_{q_1'}^2(x')$$

d'où

$$\{B\} = -\frac{q^2}{5} \sum_{q_1} (-)^{q_1} T_{q_1}^2 \cdot T_{-q_1}^2 \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{x'} (-)^{q_1} e^{inq_1(x'-x'')} u_{q_1}^2(x') \cdot u_{-q_1}^2(x'') dx' \cdot dx''$$

$$\{T_q^{k+} \cdot A \cdot T_{q'}^{k'} \cdot A^+\} = \frac{q^2}{5} \sum_q (-)^{q_1} T_q^{k+} \cdot T_{q_1}^2 \cdot T_{q'}^{k'} \cdot T_{-q_1}^2 \sum_{q_1} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} (-)^{q_1} e^{inq_1(x'-x'')} u_{-q_1}^2(x'') \cdot u_{q_1}^2(x') dx' \cdot dx''$$

On peut évaluer les intégrales doubles en introduisant les transformées de Fourier des coefficients $u_q^2(x)$

On pose

$$\beta_q(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} u_q^2(x) \cdot e^{i\omega x} dx \quad (A.2)$$

On obtient après avoir effectué le changement de variable $u = x' - x''$ et posé

$$G(\eta) = \sum_{q_1} |\beta_{q_1}(\eta)|^2$$

$$\sum_{q_1} (-)^{q_1} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{x'} e^{inq_1(x'-x'')} u_{q_1}^2(x') \cdot u_{-q_1}^2(x'') dx' \cdot dx'' =$$

$$\frac{1}{2} G(\eta q_1) + \frac{i}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} G(\omega) \mathcal{P} \frac{1}{\eta q_1 - \omega} \cdot d\omega$$

$$\text{et} \quad \sum_{q_1} (-)^{q_1} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{inq_1(x'-x'')} u_{q_1}^2(x') \cdot u_{-q_1}^2(x'') \cdot dx' \cdot dx'' = G(\eta q_1)$$

Dans le cas d'un potentiel en R^{-6} , l'expression de $G(\eta)$ est ⁽¹⁴⁾ :

$$G(\eta) = \frac{\pi^2 \cdot e^{-2\eta}}{(48)^2} (4\eta^6 + 24\eta^5 + 78\eta^4 + 168\eta^3 + 252\eta^2 + 252\eta + 126) \quad (A.3)$$

On posera

$$D(\eta) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} G(\omega) \cdot \mathcal{P} \frac{1}{\eta - \omega} \cdot d\omega$$

L'expression des coefficients est alors :

$$\begin{aligned}
\Pi_q^{kk'} &= -\frac{q^2}{5} \sum_{q_1} (-)^{q_1} \text{Tr} \{ T_q^{k\dagger} \cdot T_{q_1}^2 \cdot T_q^{k'} \cdot T_{-q_1}^2 \} G(\eta q_1) \\
&+ \frac{q^2}{10} \sum_{q_1} (-)^{q_1} \text{Tr} \{ T_{q_1}^2 \cdot T_{-q_1}^2 \cdot T_q^{k'} \cdot T_q^{k\dagger} \} [G(\eta q_1) + i D(\eta q_1)] \quad (\text{A.4}) \\
&+ \frac{q^2}{10} \sum_{q_1} (-)^{q_1} \text{Tr} \{ T_{q_1}^2 \cdot T_{-q_1}^2 \cdot T_{-q}^{k'} \cdot T_{-q}^{k\dagger} \} [G(\eta q_1) - i D(\eta q_1)]
\end{aligned}$$

On obtiendrait de même les coefficients dans la base dyadique Zeeman par une évaluation directe ou l'utilisation des formules de l'appendice 1

$$\begin{aligned}
\Pi^{(rr')(pp')} &= \delta_{r'p'} \cdot \delta_{rp} \sum_{q_1} \frac{(-)^{q_1}}{10} \langle r | T_{q_1}^2 \cdot T_{-q_1}^2 | r \rangle [G(\eta q_1) + i D(\eta q_1)] \\
&+ \delta_{rp} \cdot \delta_{r'p'} \sum_{q_1} \frac{(-)^{q_1}}{10} \langle r' | T_{q_1}^2 \cdot T_{-q_1}^2 | r' \rangle [G(\eta q_1) - i D(\eta q_1)] \quad (\text{A.5}) \\
&- \delta_{r-r'} \cdot \delta_{p-p'} \sum_{q_1} \frac{(-)^{q_1}}{5} \langle r | T_{q_1}^2 | p \rangle \langle p' | T_{-q_1}^2 | r' \rangle G(\eta(r-p))
\end{aligned}$$

Les coefficients relatifs au dipôle optique sont donnés par

$$\begin{aligned}
\text{ef} \Pi^{rr} &= 1 - \langle r | \{ \Sigma \} | r \rangle \\
&= \sum_{q_1} \frac{(-)^{q_1}}{10} \langle r | T_{q_1}^2 \cdot T_{-q_1}^2 | r \rangle [G(\eta q_1) + i D(\eta q_1)] \quad (\text{A.6})
\end{aligned}$$

On obtient finalement :

$$\Pi^{(11)(11)} = \frac{q^2}{5} \left[G(2\eta) + \frac{G(\eta)}{2} \right] = \Pi^{(-1-1)(-1-1)}$$

$$\Pi^{(00)(00)} = \frac{q^2}{5} G(\eta)$$

$$\Pi^{(11)(00)} = \Pi^{(-1-1)(00)} = -\frac{q^2}{10} G(\eta)$$

$$\Pi^{(11)(-1-1)} = -\frac{q^2}{5} G(2\eta)$$

$$\begin{aligned}
\Pi^{(10)(10)} &= \frac{q^2}{5} \left[\frac{G(2\eta)}{2} + \frac{3}{4} G(\eta) + \frac{3}{4} G(0) \right] + \\
&\quad i \frac{q^2}{10} \left[D(2\eta) + \frac{D(\eta)}{2} \right]
\end{aligned}$$

$$\Pi^{(1-1)(1-1)} = \frac{q^2}{5} \left[G(2\eta) + \frac{G(\eta)}{2} \right] + i \frac{q^2}{5} \left[D(2\eta) + \frac{D(\eta)}{2} \right]$$

$$\Pi^{(-10)(01)} = \frac{q^2}{10} G(\eta)$$

$$\begin{aligned} e^{f\Pi^{(11)}} &= e^{f\Pi^{(-1-1)^*}} = \frac{q^2}{10} \left[G(2\eta) + \frac{G(\eta)}{2} + \frac{G(0)}{6} \right] \\ &\quad + i \frac{q^2}{10} \left[D(2\eta) + \frac{D(\eta)}{2} \right] \end{aligned}$$

$$e^{f\Pi^{(00)}} = \frac{q^2}{10} \left[G(\eta) + \frac{2}{3} G(0) \right]$$

On peut donner une expression analytique du déplacement des raies $D(\eta)$.

On introduit les expressions

$$\int_0^\infty \omega^p \cdot e^{-2\omega} \left(\mathcal{P} \frac{1}{\eta-\omega} + \mathcal{P} \frac{1}{\eta+\omega} \right) d\omega$$

qui peuvent s'exprimer à partir des fonctions exponentielles intégrales $E_1(\eta)$ et $E_i(\eta)$ définies dans la référence 15. On obtient :

$$\begin{aligned} D(\eta) &= \frac{\pi}{(48)^2} \left[(-4\eta^5 - 92\eta^3 - 399\eta) \right. \\ &\quad + e^{-2\eta} E_i(2\eta) (4\eta^6 + 24\eta^5 + 78\eta^4 + 168\eta^3 + 252\eta^2 + 252\eta + 126) \\ &\quad \left. + e^{2\eta} E_1(2\eta) (4\eta^6 - 24\eta^5 + 78\eta^4 - 168\eta^3 + 252\eta^2 - 252\eta + 126) \right] \end{aligned} \quad (A.7)$$

La sommation sur le paramètre d'impact des expressions précédentes peut être effectuée analytiquement y compris pour le déplacement. On se ramène à des intégrales du type $\int_\gamma^\infty (d\eta/\eta^\alpha) e^{-2|\eta|}$ que l'on calcule à partir de (15) :

$$E_n(Z) = \int_1^{+\infty} \frac{e^{-Zt}}{t^n} dt$$

On obtient ainsi : avec $\gamma = \tau/(A^{1/5})$

$$\frac{2\pi}{5} \int_0^A G(\eta) \frac{dq}{q^{7/5}} = \frac{2\pi^3}{(48)^2} \tau^8 e^{-2\gamma} \left[\frac{2}{\gamma^3} + \frac{9}{\gamma^4} + \frac{21}{\gamma^5} + \frac{63}{2} \frac{1}{\gamma^6} + \frac{63}{2} \frac{1}{\gamma^7} + \frac{63}{4} \frac{1}{\gamma^8} \right]$$

et pour le déplacement des raies :

$$\int_{\gamma}^{\infty} \frac{d\eta}{\eta^9} D(\eta) = \frac{\pi}{(48)^2} \left[-\frac{10}{\gamma^5} - \frac{48}{\gamma^7} \right. \\ \left. + \left[e^{2\gamma} E_1(2\gamma) + e^{-2\gamma} E_i(2\gamma) \right] \left[\frac{9}{\gamma^4} + \frac{63}{2\gamma^6} + \frac{63}{4} \frac{1}{\gamma^8} \right] \right. \\ \left. + \left[e^{-2\gamma} E_i(2\gamma) - e^{2\gamma} E_1(2\gamma) \right] \left[\frac{2}{\gamma^3} + \frac{21}{\gamma^5} + \frac{63}{2\gamma^7} \right] \right]$$

Les expressions précédentes sont en bon accord avec le calcul numérique jusqu'à des valeurs de q de l'ordre de 2. A l'ordre 2 en q , les coefficients de transfert de $m = 0$ vers $m = \pm 1$ sont égaux. Ceci peut être déduit des relations de symétrie démontrées dans le § 2. Le changement de q en $-q$ change le signe de l'anisotropie du potentiel. D'après la relation 4.4, il y a donc échange des coefficients $\Pi^{(00)(11)}$ et $\Pi^{(00)(-1-1)}$ mais l'expression ne dépend que de q^2 et est donc invariante. Il faut donc pousser le calcul à l'ordre 3 pour trouver une différence entre les coefficients (5). Le terme d'ordre 3 en q représente alors à un facteur près le coefficient Π_0^{21} de couplage entre l'orientation et l'alignement longitudinaux. On démontrerait de même que la première contribution asymptotique non nulle au coefficient Π_1^{21} est de l'ordre 3 en q .

Remarquons que le traitement de perturbation que l'on vient de développer n'est qu'un cas particulier de la théorie générale de la relaxation par des interactions faibles et aléatoires (16). En particulier l'expression des taux de relaxation (cf. relation A.4) se présente sous une forme caractéristique faisant apparaître les transformées de Fourier $G_1(\eta q)$ correspondant aux différentes fréquences des transitions entre les sous-niveaux Zeeman.

★ ANNEXE 1 ★

*Calcul asymptotique de la différence
entre les taux de transfert ($M = 0 \rightarrow M = \pm 1$)*

Classification
Physics Abstracts
 5.250 — 5.280

COUPLAGE ENTRE ALIGNEMENT ET ORIENTATION PAR COLLISIONS EN CHAMP MAGNÉTIQUE INTENSE

J.-C. GAY

Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'ENS (*) et Université Paris VII
 4, place Jussieu, Tour 12, 1^{er} étage, 75230 Paris Cedex 05, France

(Reçu le 16 juin 1975, accepté le 8 juillet 1975)

Résumé. — Un modèle théorique simple nous permet de montrer qu'il peut se créer de l'orientation dans une vapeur alignée, lors de collisions en champ magnétique intense. Il suffit pour cela que la précession de Larmor de l'état excité des atomes ne soit pas négligeable pendant la durée de la collision. L'ordre de grandeur de l'effet est donné pour un potentiel de Van der Waals en R^{-6} et une possibilité de mise en évidence expérimentale est décrite.

Abstract. — Using a simple theoretical model we predict the occurrence of orientation in an aligned vapour when the atoms undergo collisions in a high magnetic field. The main condition for this to occur is that the Larmor precession of the excited states of the atoms is not negligible during the collision. We give the order of magnitude of the effect for a R^{-6} Van der Waals interaction and we describe possible conditions for observing it experimentally.

1. Introduction. — L'étude théorique de l'action d'un champ magnétique intense sur les processus de collision en phase vapeur fait apparaître deux catégories d'effets nouveaux par rapport à la situation où le champ est nul :

1.1 Les taux de relaxation ou de transfert par collision dépendent de l'intensité du champ.

1.2 Les symétries de la matrice de relaxation sont modifiées. Sous certaines hypothèses, la matrice de relaxation présente la symétrie sphérique en champ nul. Il n'en est plus de même en présence d'un champ magnétique qui privilégie une direction de l'espace.

Ces effets ne sont évidemment notables que pour des champs magnétiques tels que l'évolution atomique qu'ils produisent pendant la durée de la collision soit appréciable [1].

Nous présentons ci-dessous l'illustration de l'un des aspects du point 2 dans le cas de collisions entre un atome excité et un perturbateur sans structure avec la possibilité d'orienter par collisions en champ intense, une vapeur alignée.

Nous montrons pour un niveau excité $J = 1$ et une interaction en R^{-6} du type Van der Waals que les probabilités de transferts entre les sous-niveaux Zeeman $m = 0$ et $m = \pm 1$ sont différentes, à l'aide d'un calcul de perturbation au 3^e ordre de l'interaction.

Nous donnons ensuite, afin d'évaluer l'ordre de

grandeur de l'effet, les taux de transfert par collision entre les sous-niveaux Zeeman. Ces résultats sont obtenus par intégration numérique de l'équation de Schrödinger et seront décrits plus en détail dans une prochaine publication. Ceci nous permet de discuter brièvement les possibilités de mise en évidence expérimentale de l'effet.

2. Hypothèses du modèle. — On se limite à des situations où la différence d'énergie entre les sous-niveaux Zeeman est petite devant kT . On considère des atomes dans l'état excité $J = 1$. Les perturbateurs sont dans l'état fondamental que l'on suppose à symétrie sphérique et sans structure. La collision est traitée dans l'approximation d'impact à trajectoire classique rectiligne. Nous supposons l'isotropie dans l'espace de la distribution des paramètres d'impact et des vitesses relatives. La partie isotrope du potentiel d'interaction qui ne présente d'intérêt que pour le calcul de l'élargissement et du déplacement des raies optiques est ignorée. La partie anisotrope du potentiel a la symétrie d'un alignement dans la direction interatomique.

L'effet des collisions est décrit dans une base standard liée au champ magnétique. Le trièdre de collision lié à une collision particulière est tel que Ox soit parallèle au paramètre d'impact \mathbf{b} , Oy à la vitesse relative \mathbf{v} et Oz perpendiculaire au plan de la collision.

Il se déduit d'un repère fixe de l'espace où Oz est parallèle au champ magnétique par la rotation $R^{-1}(\varphi, \theta, \gamma)$ où $(\varphi, \theta, \gamma)$ sont les angles d'Euler [2].

(*) Associé au C.N.R.S. N° 18.

Le principe du calcul est d'évaluer l'effet d'une collision définie par $(\varphi, \theta, \gamma)$ sur l'état excité de l'atome, compte tenu de son évolution sous l'influence du champ magnétique, et d'effectuer la moyenne angulaire sur toutes les orientations possibles dans l'espace du paramètre d'impact et de la vitesse relative.

3. Calcul asymptotique des probabilités de transfert.

— Nous emploierons les notations suivantes :

$$q = \frac{p}{b^5 v} \quad \eta = \frac{\omega b}{v} = \frac{\tau}{q^{1/5}}$$

$$\tau = \frac{\omega \cdot p^{1/5}}{v^{6/5}}$$

où ω, p, v sont respectivement la fréquence de Larmor, la force du potentiel et la vitesse relative; le sens de ces notations a déjà été explicité dans une précédente publication, dans le cas d'un potentiel en R^{-3} [3].

La partie anisotrope du potentiel s'écrit sous la forme :

$$V(x) = q \sum_{q_1} (-)^{q_1} U_{-q_1}^2(\varphi, \theta, \gamma, x) \mathbf{T}_{q_1}^2 \quad (1)$$

où $\mathbf{T}_{q_1}^2$ est un tenseur irréductible de rang 2 construit sur la base standard liée à \mathbf{H} et

$$U_{q_2}^2(\varphi, \theta, \gamma, x) = \sum_{q_1} u_{q_1}^2(x) R_{q_1 q_2}^{(2)}(\varphi, \theta, \gamma) \quad (2)$$

dans le cas d'un potentiel en R^{-6} :

$$\begin{aligned} u_{\pm 2}^2 &= (1 \pm ix)^2 / 2 r^8 \\ u_{\pm 1}^2 &= 0 \\ u_0^2 &= -1/\sqrt{6} r^6 \end{aligned} \quad (3)$$

avec

$$r^2 = 1 + x^2 \quad \text{et} \quad x = vl/b$$

$(\varphi, \theta, \gamma)$ sont les angles d'Euler caractérisant une collision particulière.

En représentation d'interaction par rapport au hamiltonien Zeeman, l'équation de Schrödinger s'écrit ($\hbar = 1$) :

$$i \frac{d}{dx} |\psi(x)\rangle = H(x) |\psi(x)\rangle$$

avec

$$H(x) = e^{inJ_H x} V(x) e^{-inJ_H x}$$

Notant $S(\varphi, \theta, \gamma)$ la matrice de collision associée à la collision définie par les angles d'Euler $(\varphi, \theta, \gamma)$, on définit les probabilités de transfert entre les sous-

niveaux Zeeman pour un paramètre d'impact, une vitesse relative et une valeur du champ magnétique de la manière usuelle :

$$\Pi^{(mm)(pp)} = - \{ |\langle m | S | p \rangle|^2 \} \quad (4)$$

où les crochets désignent la moyenne angulaire à effectuer sur l'ensemble des orientations de \mathbf{b} et \mathbf{v} .

On développe la matrice $S(\varphi, \theta, \gamma)$ au 3^e ordre de l'interaction. Le développement comporte donc 4 termes

$$S^{AS} = I + A(q) + B(q^2) + C(q^3). \quad (5)$$

Un tel développement permet d'obtenir les coefficients $\Pi^{(mm)(pp)}$ au 3^e ordre en q inclus.

Le premier terme non nul est du second ordre en q . Il correspond formellement aux termes AA^\dagger, B, B^\dagger de l'expression (5). Des considérations de symétrie permettent de prévoir *a priori* qu'il est le même pour $p = 0, m = \pm 1$ et $p = \pm 1, m = 0$.

On obtient

$$\Pi^{(00)(\pm 1 \pm 1)}(q^2) = \Pi^{(\pm 1 \pm 1)(00)}(q^2) = - \frac{S(\eta)}{10}$$

$$S(\eta) = \frac{\pi^2 \cdot e^{-2\eta}}{(48)^2} q^2 (4\eta^6 + 24\eta^5 + 78\eta^4 + 168\eta^3 + 252\eta^2 + 252\eta + 126).$$

Cette expression a déjà été trouvée par Tsao et Cur-nutte [4] lors de l'analyse d'un problème analogue.

Nous allons montrer que le terme d'ordre 3 en q qui est nul lorsque $\eta = 0$ (cas du champ nul), ne l'est plus dès que le champ H diffère de la valeur 0, et qu'il contribue avec des signes opposés aux probabilités de transfert $\Pi^{(00)(11)}$ et $\Pi^{(00)(-1-1)}$.

Les termes contribuant à l'ordre 3 en q sont $BA^\dagger, AB^\dagger, C, C^\dagger$. Lorsque m diffère de p , les termes en C et C^\dagger donnent une contribution nulle.

Il reste donc :

$$\Pi^{(mm)(pp)}(q^3) = 2 \operatorname{Re} \{ \langle m | B | p \rangle \langle p | A | m \rangle \} \quad (6)$$

avec

$$A = -i \int_{-\infty}^{+\infty} H(x) dx$$

$$B = - \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{x'} H(x') H(x'') dx' \cdot dx''$$

Les moyennes angulaires dans (6) sont effectuées en utilisant la formule (2) et la relation

$$\{ R_{q_0 - q_0}^{(2)} R_{q_1 - q_1}^{(2)} R_{q_2 - q_2}^{(2)} \} = \frac{(-)^{q_0 + q_0}}{5} \langle 22 q_1' q_2' | 2 - q_0' \rangle \langle 22 - q_1 - q_2 | 2 q_0 \rangle$$

On obtient alors :

$$\Pi^{(mm)(pp)}(q^3) = i \sum_{\substack{q_0 q_1 q_2 \\ q_0 q_1 q_2}} \frac{(-)^{q_1 + q_2 - q_0}}{5} \langle p | \mathbf{T}_{q_0}^2 | m \rangle \langle m | \mathbf{T}_{q_1}^2 \mathbf{T}_{q_2}^2 | p \rangle \langle 22 q_1' q_2' | 2 - q_0 \rangle \times \\ \times \langle 22 - q_1 - q_2 | 2 q_0 \rangle J_{q_0}(\eta q_0) \{ \Phi_{q_1 q_2}(\eta q_1, \eta q_2) - \Phi_{q_1 q_2}^*(\eta q_1, \eta q_2) \}$$

avec

$$\Phi_{q_1 q_2}(\eta_1, \eta_2) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{x'} dx' . dx'' e^{i\eta_1 x' + i\eta_2 x''} u_{q_1}^2(x') u_{q_2}^2(x'') \\ J_{q_0}(\eta) = \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i\eta x} u_{q_0}^2(x) . dx .$$

Il reste à prouver que ce terme est non nul. Son évaluation analytique complète dans le cas d'un potentiel en R^{-6} paraît difficile à mener à bien. Nous nous bornerons donc à effectuer un développement limité au 1^{er} ordre en η . Le terme d'ordre 0 en η est nul. L'évaluation des intégrales doubles dans le terme du 1^{er} ordre en η ne présente pas de difficultés. On obtient :

$$\Pi^{(mm)(pp)}(q^3) = - \sqrt{\frac{7}{3}} \frac{\pi^2}{(16)^3} \eta q^3 \sum_{q_0 q_1 q_2} (-)^{q_0} \times \\ \times \langle 22 - q_1 - q_2 | 2 q_0 \rangle (q_2 - q_1) \langle p | \mathbf{T}_{q_0}^2 | m \rangle \\ \times \langle m | \mathbf{T}_{q_1}^2 \mathbf{T}_{q_2}^2 | p \rangle .$$

En prenant le complexe conjugué de cette expression réelle et en changeant les indices q_i en leurs opposés, on démontre la relation $\Pi^{(mm)(pp)} = \Pi^{(pp)(mm)}$ que l'on peut obtenir par des considérations plus générales de symétrie sur la matrice de relaxation [1]. Le changement global des signes de m et de p et des indices q_i joint à quelques transformations simples des coefficients de Clebsch-Gordan conduit à la relation :

$$\Pi^{(mm)(pp)}(q^3) = - \Pi^{(-m-m)(-p-p)}(q^3) .$$

L'expression de la correction du 3^e ordre en q aux probabilités de transfert s'écrit finalement :

$$\Pi^{(11)(00)}(q^3) = \Pi^{(00)(11)}(q^3) = \\ = - \Pi^{(-1-1)(00)}(q^3) = - \Pi^{(00)(-1-1)}(q^3) \\ = \frac{7}{4(16)^3} \pi^2 \eta q^3 . \quad (7)$$

La relation (7) qui révèle que les taux de transfert du niveau $m = 0$ vers les niveaux $m = \pm 1$ sont différents prouve qu'il existe un terme de couplage non nul entre orientation et alignement longitudinal défini par $\Pi_0^{12} = \Pi_0^{21} = - \text{Tr} \{ T_0^{1\dagger} S T_0^2 S^\dagger \}$ et dont le développement asymptotique est

$$\Pi_0^{12} \simeq - \frac{7\sqrt{3}}{4(16)^3} \pi^2 \eta q^3 . \quad (7')$$

La création par excitation optique par exemple d'un alignement dans l'état excité de l'atome entraî-

nera donc la création d'une orientation sous l'effet combiné des collisions et du champ magnétique. De plus, le sens de l'orientation créée, c'est-à-dire le signe de la différence de population en régime stationnaire entre les niveaux $m = \pm 1$ dépend du signe de la partie anisotrope du potentiel. Si cette partie du potentiel est attractive pour les niveaux Σ de la pseudo-molécule, le niveau $m = + 1$ sera moins peuplé que le niveau $m = - 1$.

Remarque. Les résultats qui précèdent ne dépendent pas en définitive de la forme explicite adoptée pour les variations du potentiel avec la distance interatomique, mais seulement des propriétés de symétrie de celui-ci. Il suffit en effet que la partie anisotrope du potentiel ait le caractère d'un alignement le long de l'axe internucléaire (les éléments de symétrie d'un champ électrique) pour que l'on puisse prévoir le résultat par des considérations de symétrie sur la matrice de collision et sur la matrice de relaxation [1].

4. Ordre de grandeur de l'effet. — Par intégration numérique de l'équation de Schrodinger nous avons obtenu des résultats qui seront publiés prochainement [1] et que nous résumons ci-dessous. Nous donnons sur la figure 1 le comportement des coefficients $\Pi^{(11)(00)}$ et $\Pi^{(-1-1)(00)}$ en fonction de $q^{-2/5}$ ($q^{-2/5}$ est proportionnel au carré du paramètre d'impact). Pour $q < 2$, les résultats sont en bon accord avec ceux de la formule approchée (7). On peut noter que la différence entre $\Pi^{(11)(00)}$ et $\Pi^{(-1-1)(00)}$ se manifeste à longue distance pour $q \simeq 1$ lorsque le paramètre d'impact est de l'ordre du rayon de Weisskopf, et que l'hypothèse d'un potentiel en R^{-6} dans cette région n'est pas *a priori* dénuée de sens.

Le calcul de la matrice de relaxation après intégration numérique du système de collision et sommation sur le paramètre d'impact permet d'obtenir une évaluation des effets précédents : les variations avec le champ des taux de transfert $g^{(mm)(pp)}$ entre les sous-niveaux Zeeman sont données sur la figure 2. Il y apparaît que l'écart entre les taux de transfert de $m = 0$ vers $m = \pm 1$ peut atteindre 30 % dans ce modèle et par suite qu'une mise en évidence expérimentale n'est pas exclue. De plus, la relative impor-

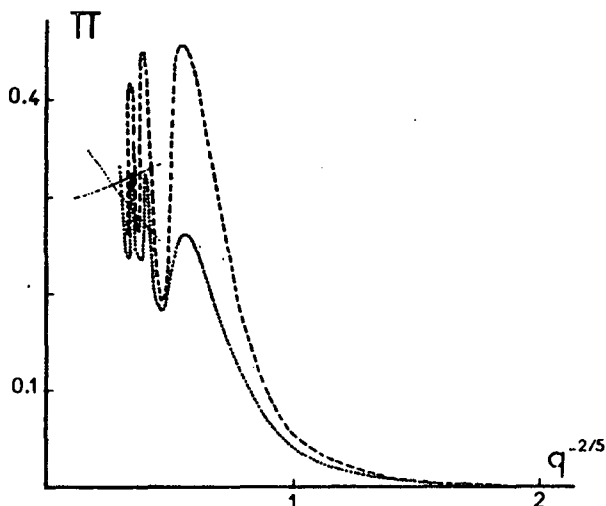


FIG. 1. — Variations en fonction de $q^{-2/5}$ (proportionnel au carré du paramètre d'impact) des probabilités de transfert par collision entre les sous-niveaux Zeeman $m = 0$ et $m = \pm 1$, pour τ égal à 1 :
 ---- $|\Pi^{(-1-1)(00)}|$; $|\Pi^{(11)(00)}|$.

tance de l'effet prévu permet de supposer que certaines approximations telles celles de trajectoires rectilignes ne sont pas cruciales et que l'effet se produisant à longue distance, un traitement quantique de la collision n'est pas nécessaire.

L'allure des courbes données sur la figure 2 appelle pour $\tau > 3$ quelques commentaires. L'effet semble en effet s'inverser en champ plus élevé. Ceci peut être compris de la façon suivante : lorsque l'on sépare l'évaluation de la section efficace en deux régions q supérieur ou inférieur à 20, on constate que ces deux régions contribuent au terme de couplage orientation-alignement avec le signe contraire. Lorsque τ est inférieur à 3 la contribution $q < 20$ est largement prédominante mais la situation s'inverse pour des

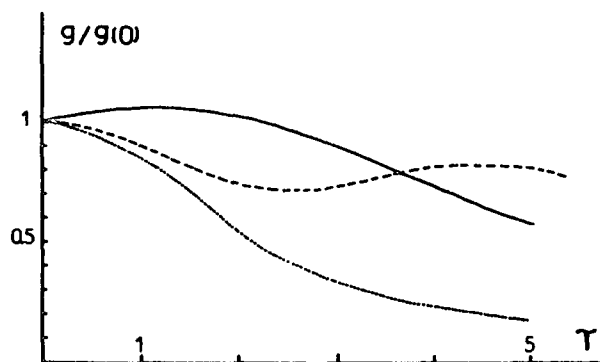


FIG. 2. — Variation des taux de transfert en fonction de τ (proportionnel au champ magnétique) pour une interaction en R^{-6} . Les taux de transfert sont normalisés à leurs valeurs en champ nul.
 — $g^{(-1-1)(00)}$; ---- $g^{(11)(00)}$; $g^{(11)(-1-1)}$.

valeurs de τ plus grandes. Dans ce cas, la contribution des collisions à courte distance est prépondérante et le modèle en R^{-6} adopté est certainement irréaliste [1].

Le cas des collisions $\text{Hg}^*(6^3\text{P}_1)$ -Xénon semble favorable à une mise en évidence expérimentale de l'effet que nous venons de décrire. L'ordre de grandeur des champs nécessaires peut être évalué à partir des sections de dépolariation en champ nul [5] et des paramètres atomiques. Le paramètre τ est de l'ordre de 1 pour un champ de 25 kG. Les conditions expérimentales les plus favorables semblent donc se situer entre cette valeur et 100 kG.

Remarquons que dans les conditions de la référence [6], la section efficace mesurée correspond à $\frac{1}{2}(\sigma^{(11)(00)} + \sigma^{(-1-1)(00)})$. Pour un champ de 60 kG, τ vaut environ 2,4, et les variations relatives théoriques de 15 % sont en bon accord avec celles obtenues expérimentalement. Néanmoins, cela n'autorise évidemment pas à conclure quant à la validité d'un potentiel en R^{-6} pour décrire de telles collisions.

Bibliographie

- [1] GAY, J.-C., soumis à *J. Physique*.
 [2] Nous adoptons pour les rotations les notations de A. MESSIAH, *Mécanique Quantique* (Dunod) Paris.
 [3] GAY, J.-C., *J. Physique* **35** (1974) 813.
 [4] TSAO, C. J. et CURNUTTE, B., *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **2** (1962) 41.
 [5] BARRAT, J. P., CASALTA, D., COJAN, J. L. et HAMEL, J., *J. Physique* **27** (1966) 608.
 FAROUX, J. P., Thèse (Paris) 1969.
 [6] GAY, J. C. et SCHNEIDER, W. B., *J. Physique Lett.* **36** (1975) L-185.

★ ANNEXE 2 ★

*Etude numérique des probabilités de
transfert du sous-niveau Zeeman $M = 0$ vers $M = \pm 1$*

Nous montrons dans cette annexe comment se construit dans un cas choisi la différence entre les probabilités de transfert $\Pi^{(11)(00)}(+)$ et $\Pi^{(-1-1)(00)}(+)$ dans les collisions non résonnantes en champ magnétique intense.

On se placera en général dans des conditions telles que les valeurs du champ, du paramètre d'impact et de la vitesse relative soient fixées. Les valeurs de q et τ sont donc déterminées. Le choix de ces paramètres est effectué de telle sorte qu'il corresponde à des régions où la différence entre les probabilités de transfert $\Pi^{(11)(00)}$ et $\Pi^{(-1-1)(00)}$ soit grande, ce qui est réalisé par exemple pour $\tau = 2$ et $q = 4$.

Le plan de collision est repéré par les angles $(\varphi, \theta, \gamma)$ par rapport au référentiel fixe de l'espace où l'axe OZ est parallèle au champ magnétique. La dépendance en γ du problème étant sans intérêt, on se bornera à faire les études en fonction de φ et θ . L'angle ψ (cf. FIG 1) varie de $-\pi/2$ à $+\pi/2$ au cours de la collision et est relié au temps t (cf. §I-B et II-B) par la relation :

$$\psi = \text{Arc tg } x \quad \text{avec} \quad x = vt/b$$

r désigne la distance en variables réduites et est relié à ψ par $r^2 = 1/\cos^2 \psi$. Les principales notations utilisées sont rappelées dans la figure 1.

● NIVEAUX D'ENERGIE

Pour une collision définie par (φ, θ) , les valeurs propres du Hamiltonien qui est de la forme

$$H = H_z + V_{12}(r) = \eta J_z + \frac{q}{r^6} \left(J_u^2 - \frac{J^2}{3} \right)$$

ont l'expression :

$$\begin{cases} E_k = 2 - \sqrt{\frac{P}{3}} \cos\left(\frac{\xi}{3} + 2k \frac{\pi}{3}\right) \\ k = 0, 1, 2 \end{cases}$$

avec

$$\xi = \text{Arc cos} \left(\frac{3Q}{2P \sqrt{-P/3}} \right)$$

$$P = - \left(\eta^2 + \frac{q^2}{3r^{12}} \right)$$

$$Q = \frac{2}{27} \frac{q^3}{r^{18}} - \frac{2q}{\sqrt{6}} \eta^2 U_0^2$$

$$U_0^2 = \frac{\sqrt{6}}{4r^6} \left(\sin^2 \theta \cdot \cos 2(\psi - \varphi) + \sin^2 \theta - \frac{2}{3} \right)$$

En champ nul, les expressions précédentes se simplifient et l'on retrouve les valeurs $(-2q/3r^6)$ et $(q/3r^6)$ correspondant respectivement aux énergies de l'état Σ et des états Π dégénérés. C'est le seul cas où deux valeurs de l'énergie coïncident.

Les expressions (1) possèdent un certain nombre de symétries qui sont en définitive celles de U_0^2 . On a donc :

$$E_k(\varphi, \theta, \psi) = E_k(\varphi, \pi - \theta, \psi) = E_k(2\pi - \varphi, \theta, -\psi) = E_k(\pi + \varphi, \theta, \psi)$$

Pour une collision de paramètres $(\varphi, \theta, q, \tau)$ déterminés les niveaux d'énergie du système au cours de la collision ne sont pas symétriques par rapport à la valeur $\psi=0$ ce qui est une conséquence directe de la non-invariance du hamiltonien par renversement du temps. (Excepté pour $\varphi=0$ et $\pi/2$ ce qui correspond aux collisions pour lesquelles le paramètre d'impact ou la vitesse relative est perpendiculaire au champ).

Les expressions (1) se mettent sous une forme plus simple lorsque les plans de collision sont perpendiculaires au champ. Les valeurs propres sont alors :

$$\frac{q}{3r^6}, \quad -\frac{q}{6r^6} \pm \left(\eta^2 + \frac{q^2}{4r^{12}} \right)^{1/2}$$

Ces cas sont de peu d'intérêt puisque les taux de transfert du sous-niveau Zeeman $m = 0$ vers $m = \pm 1$ sont nuls. (L'état $m = 0$ est état propre du hamiltonien).

On peut également déterminer les valeurs propres et états propres dans le cas où l'axe internucléaire est parallèle au champ ($\theta = \pi/2$, $\varphi = \psi_0$).

Les valeurs propres sont alors $(\frac{q}{6} + \eta ; -\frac{2}{3} \frac{q}{r_0^6} ; \frac{q}{6} - \eta)$, et les états propres associés sont les états standards $3r_0$ dans r_0 dans $3r_0$ la direction du champ.

L'impossibilité d'obtenir dans le cas général les valeurs propres et les états propres sous une forme utilisable analytiquement rend difficile une tentative de résolution approximative du problème dans la base adiabatique, comme cela a été fait par exemple dans la partie V dans un cas beaucoup plus simple.

• DIAGRAMME DE CORRELATION

On peut prévoir approximativement par une théorie de perturbation l'allure des niveaux d'énergie en fonction de ψ .

Lorsque les deux atomes sont très éloignés ($\psi \sim \pm\pi/2$), le potentiel d'interaction est négligeable. Il peut être traité comme une perturbation du Hamiltonien Zeeman.

Pour $\eta \gg qr^{-6}$, on obtient les valeurs

$$E = \left\{ \eta + \frac{q}{\sqrt{6}} U_0^2, -\frac{2q}{\sqrt{6}} U_0^2, -\eta + \frac{q}{\sqrt{6}} U_0^2 \right\}$$

Au contraire, pour $\psi \approx 0$, on peut admettre en première approximation que l'interaction électrostatique domine. Ceci suppose $\eta \ll q$.

Les valeurs non perturbées de l'énergie sont alors $(-2q/3)$ et $(q/3)$ qui est dégénérée. Le hamiltonien Zeeman lève la dégénérescence caractéristique de l'effet Stark et l'on obtient :

$$E = \left\{ -\frac{2q}{3}, \frac{q}{3} (1 + \epsilon), \frac{q}{3} (1 - \epsilon) \right\}$$

avec
$$\epsilon = \frac{3\eta}{q} \sin \theta \cos (\psi - \varphi)$$

On obtient ainsi le diagramme de corrélation de la figure 2 pour $\theta = \pi/2$ $\varphi = 3\pi/4$. Le problème est équivalent à celui d'un effet Zeeman combiné à un effet Stark dans un champ de direction et de module variables dans l'espace. Les états propres n'ont donc jamais une symétrie bien déterminée comme c'est le cas par exemple dans la situation de la partie V.

• ETUDE DU TRANSFERT D'EXCITATION DE $M = 0$ vers $M = \pm 1$

Au temps $t = -\infty$ ($\psi = -\pi/2$), on suppose le système excité dans le sous-niveau Zeeman $M = 0$. On calcule au cours de la collision la probabilité de

trouver le système dans les sous-niveaux Zeeman $M = \pm 1$ et corrélativement la position des niveaux d'énergie. On se place dans des conditions ($\tau = 2$, $q = 4$) telles que la différence entre les taux de transfert soit importante et on fait varier l'orientation des plans de collision par rapport au champ. On désignera par $P_{01}(\psi, \theta, \varphi)$ et $P_{0-1}(\psi, \theta, \varphi)$ la probabilité de trouver le système dans les états ± 1 à l'instant ψ , pour l'orientation (φ, θ) du plan de collision, et $P_{0\pm 1}(\theta, \varphi)$ les probabilités de transfert après la collision.

1) Etude en fonction de ψ pour $\theta = \pi/2$

Les plans de collision sont alors parallèles à la direction du champ. On a représenté sur la figure 3 pour $\theta = \pi/2$, $\varphi = 3\pi/4$, les variations en fonction de ψ des probabilités P_{01} et P_{0-1} de transfert et les valeurs propres du Hamiltonien. Dans la situation choisie, le transfert s'effectue préférentiellement de $M = 0$ vers $M = -1$ au cours de la collision. Il est tentant d'attribuer ce comportement à la présence d'un anticroisement des niveaux d'énergie issus de $M = 0$ et $M = -1$ d'autant plus que lorsque le champ est nul, il n'existe plus d'anticroisement et $P_{01}(\psi)$, $P_{0-1}(\psi)$ sont égaux quelle que soit la valeur de ψ . Lorsque l'on suit adiabatiquement la courbe de potentiel du niveau $M = 0$, il est clair que la voie de sortie la plus naturelle est la voie $M = -1$. Cependant les variations de $P_{0\pm 1}(\psi)$ avec ψ dans ce cas révèlent qu'il n'existe pas au voisinage de la région d'anticroisement de comportement permettant de confirmer cette tentative d'interprétation. De plus, on peut voir sur la figure 4 pour $\theta = \pi/2$, $\varphi = \pi/8$, qu'en l'absence d'anticroisement dans la région $\psi < 0$ les probabilités de transfert sont d'ores et déjà notablement différentes.

Notons que la forme des niveaux d'énergie obtenue dans la figure 3 est en accord avec celle prévue avec le diagramme de corrélation de la figure 2. La présence d'anticroisements résulte donc de l'existence simultanée d'effets STARK et ZEEMAN, de symétries différentes.

2) Etude de $P_{0\pm 1}(\theta, \varphi)$ en fonction de θ et φ .

On donne sur la figure 5 (pour $\tau = 2$, $q = 4$) les variations de $P_{0\pm 1}(\theta, \varphi)$ dans deux situations caractéristiques. (Les conclusions sont semblables quelles que soient les valeurs de θ et φ). Pour le potentiel de type (+) choisi le transfert de $M = 0$ vers $M = -1$ est dans la plus grande partie des cas notablement plus grand que le transfert de $M = 0$ vers $M = +1$. Notons également qu'en champ nul, pour $\theta = \pi/2$, les taux de transfert $P_{0\pm 1}$ sont égaux quelle que soit la valeur de φ (comparer à la figure 5a).

3) Etude en fonction de τ et θ de la moyenne sur φ de $(P_{01} - P_{0-1})$

On a porté sur la figure 6 pour différentes valeurs de τ , les variations en fonction de θ de la moyenne de $(P_{01} - P_{0-1})$ sur l'angle φ (à un facteur multiplicatif négatif près). Pour $\tau = 0$, l'expression de cette moyenne est :

$$\langle P_{10} - P_{-10} \rangle_{\varphi} = 2 \cos \theta \cdot \sin^2 \theta \cdot \beta(q) \cdot \sin q$$

La courbe obtenue est donc impaire par rapport à la valeur $\pi/2$. La moyenne sur θ donne ensuite dans ce cas :

$$\langle P_{01} \rangle_{\varphi\theta} = \langle P_{0-1} \rangle_{\varphi\theta}$$

ce qui est le résultat bien connu obtenu en l'absence de champ magnétique où les probabilités de transfert de $M = 0$ vers $M = \pm 1$ sont après moyennes angulaires égales en raison de l'isotropie de la relaxation.

On peut suivre sur la figure 6 les modifications avec la valeur de τ (pour $q = 4,31$) de la différence $\langle P_{01} - P_{0-1} \rangle_{\varphi}$ pour un potentiel de type +. Il est bien clair qu'après moyenne sur l'angle θ , les probabilités de transfert vérifieront pour $q \approx 4,31$

$$\langle P_{01} \rangle_{\varphi\theta} < \langle P_{0-1} \rangle_{\varphi\theta}$$

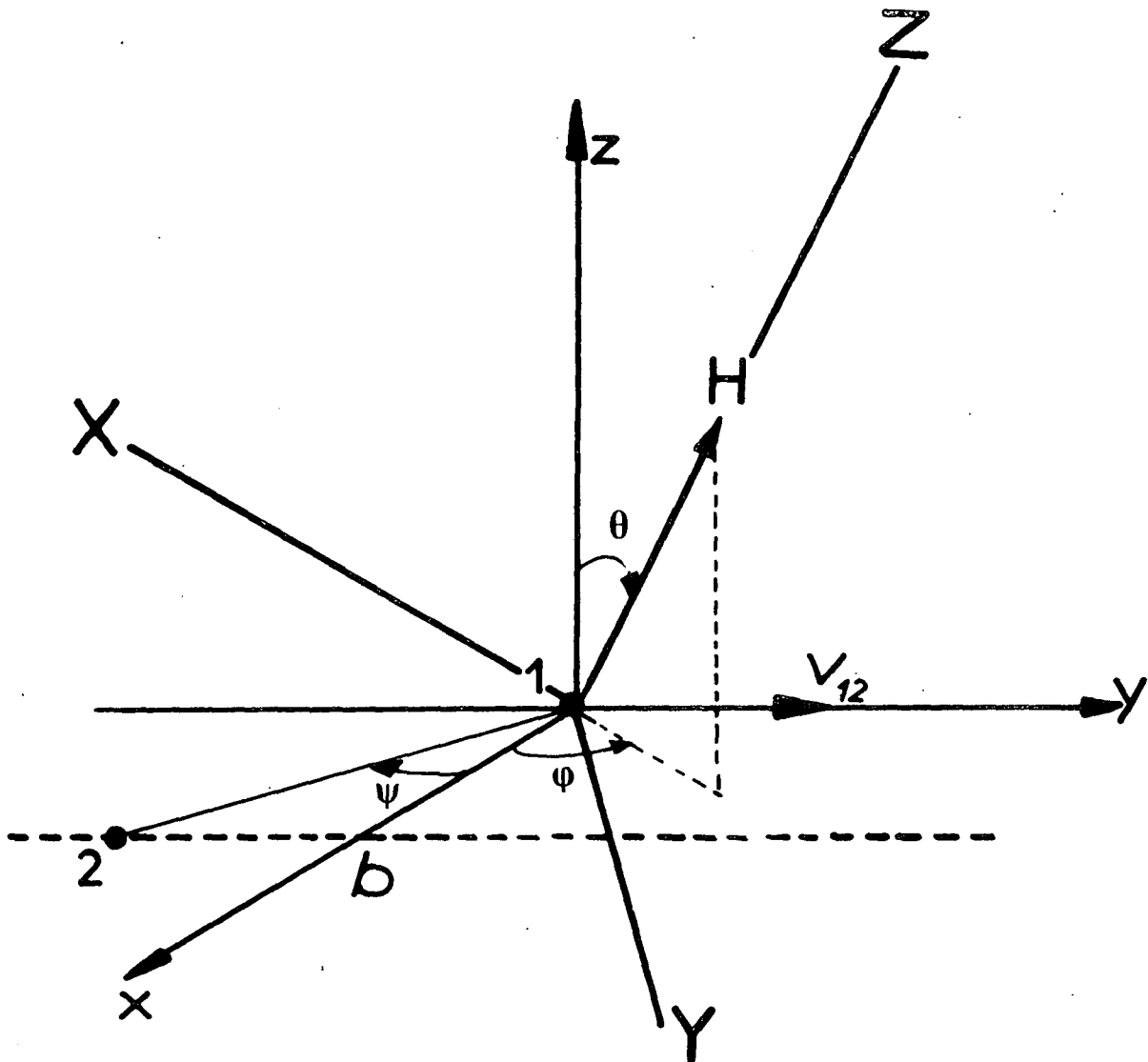


FIG 1
 II-B/ANNE>E 2

DIAGRAMME DE CORRELATION

$$\begin{aligned} \tau &= 2 & q &= 4 \quad (+) \\ \theta &= \pi/2 & \varphi &= 3\pi/4 \end{aligned}$$

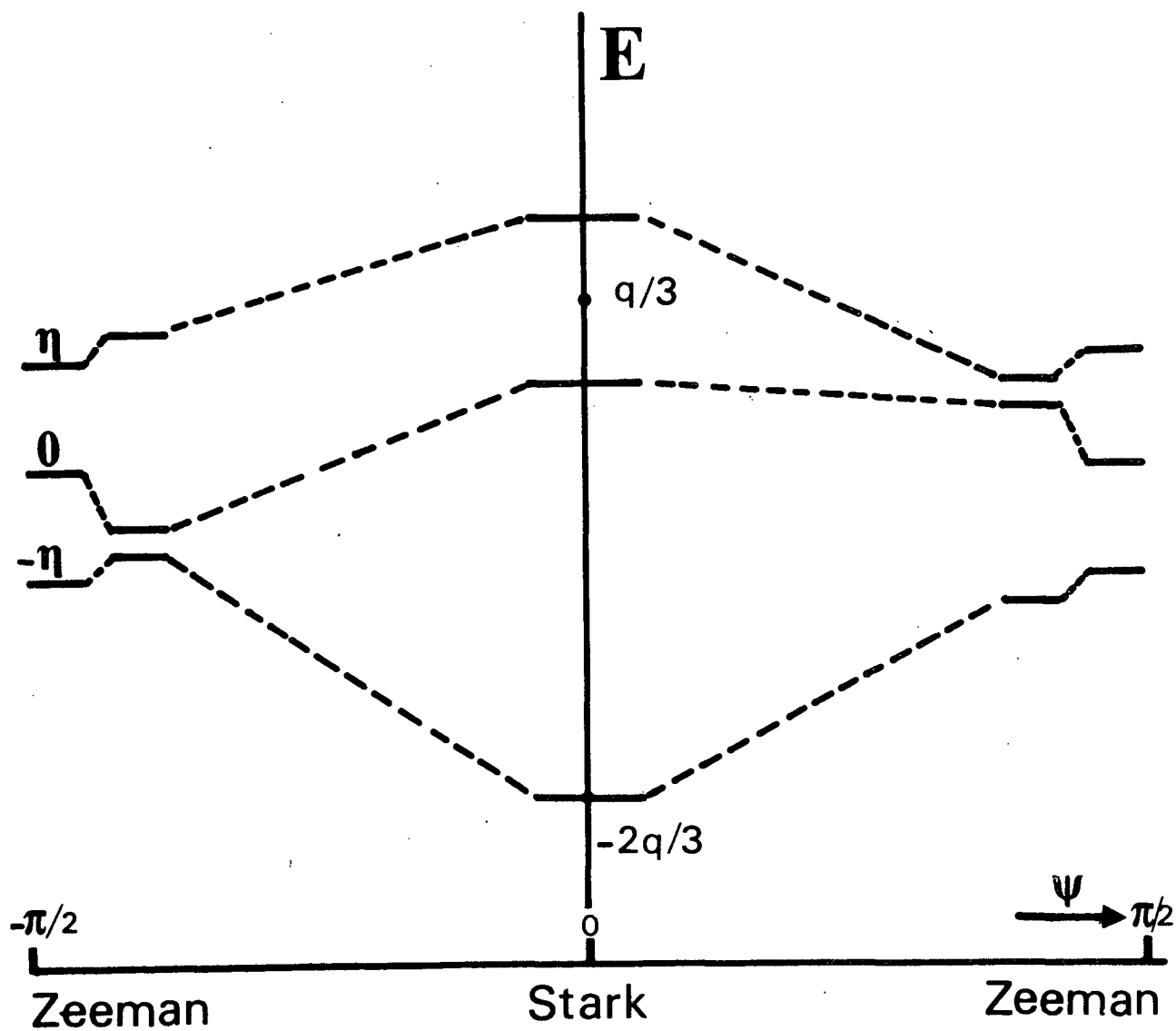
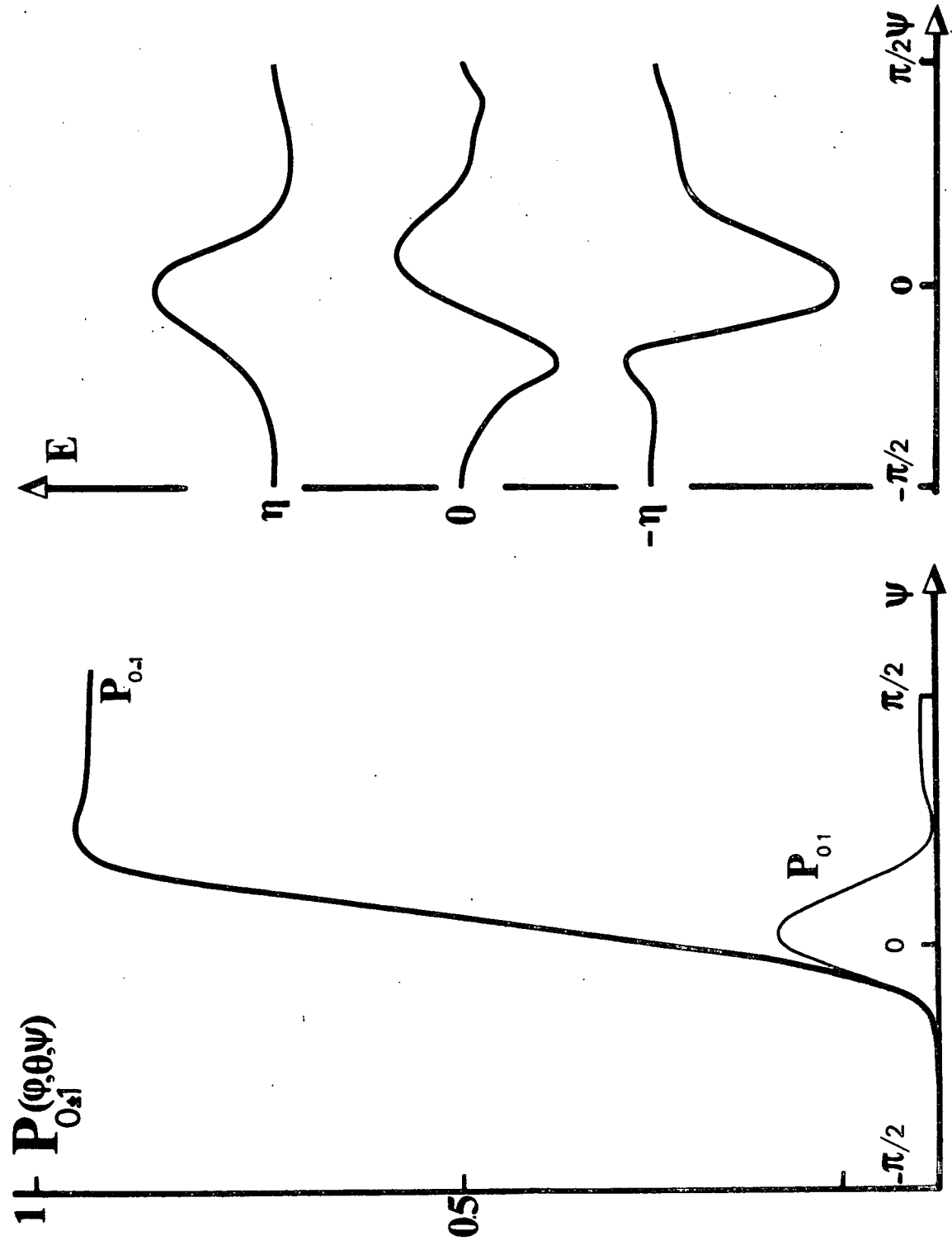


FIG 2
II-B/ANNEXE 2

EVOLUTION DES PROBABILITES DE TRANSFERT DE $M=0$ VERS $M=\pm 1$ au cours de la collision

NIVEAUX D'ENERGIE DU SYSTEME



$\tau = 2$ $q = 4$ (+)
 $\theta = \pi/2$ $\varphi = 3\pi/4$

FIG 3

EVOLUTION DES NIVEAUX D'ENERGIE DU SYSTEME ET DES PROBABILITES DE TRANSFERT DE

$M=0$ VERS $M=\pm 1$ AU COURS DE LA COLLISION

$\tau = 2$ $q = 4$ (+)
 $\theta = \pi/2$ $\varphi = \pi/8$

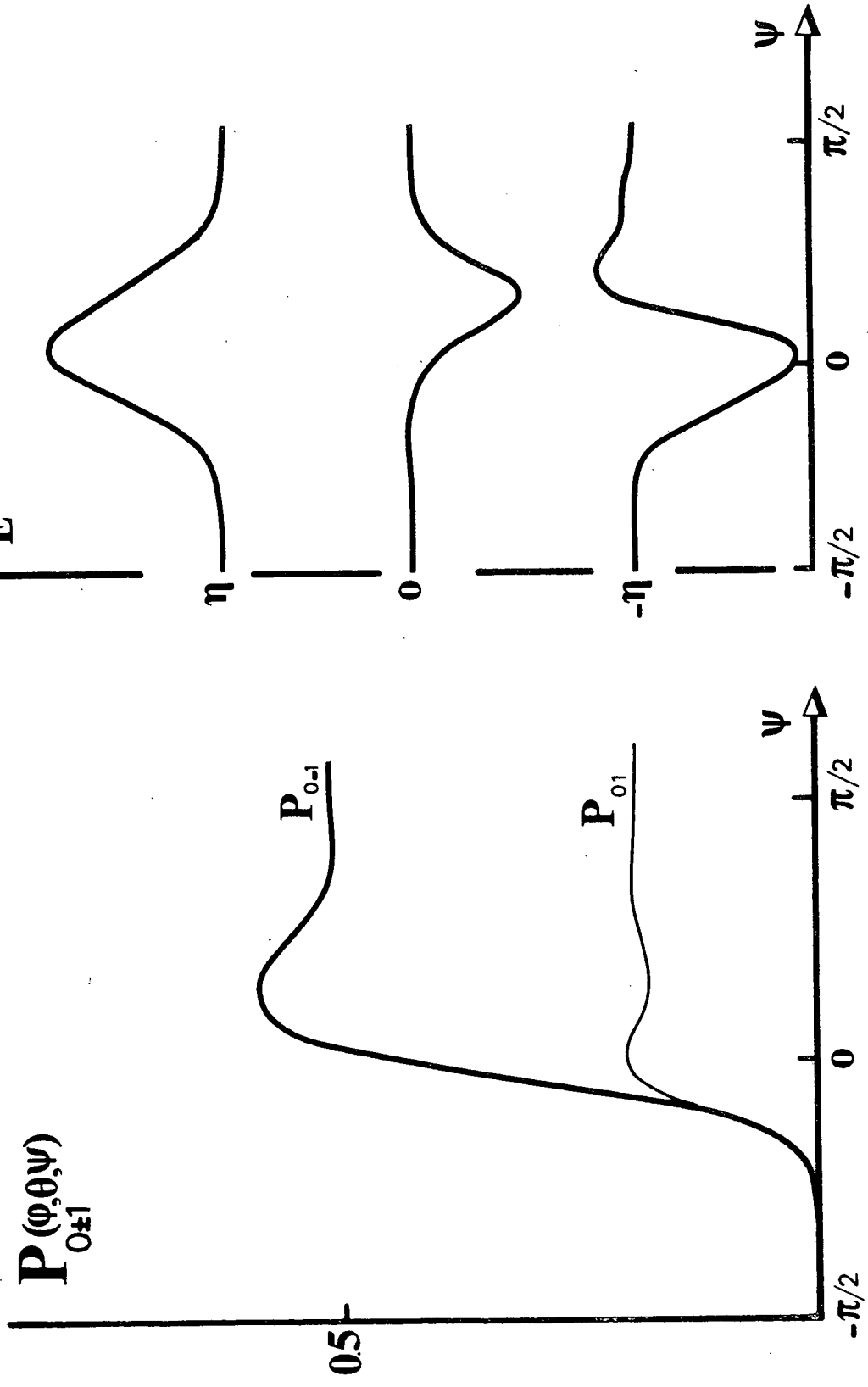
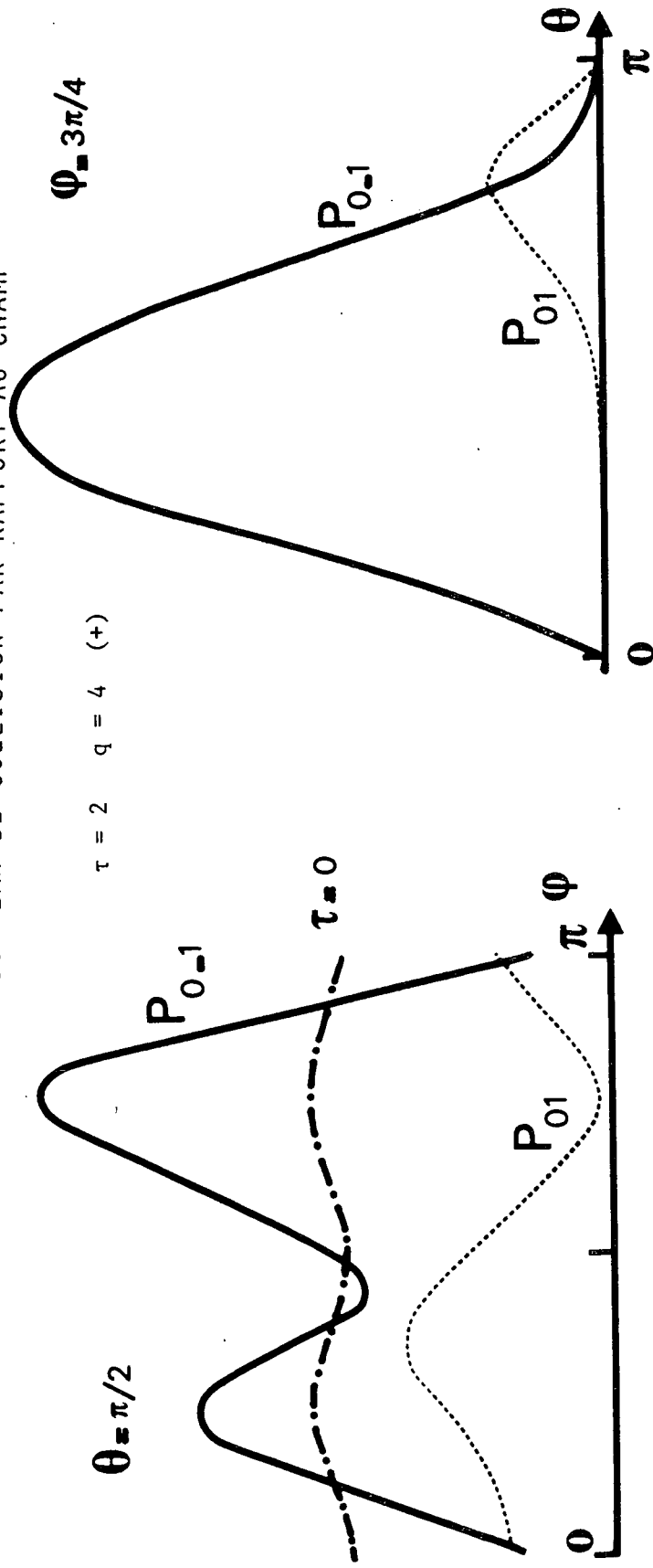


FIG 4

PROBABILITES DE TROUVER LE SYSTEME DANS LES ETATS $M=+1$ APRES LA COLLISION
 EN FONCTION DE L'ORIENTATION DU PLAN DE COLLISION PAR RAPPORT AU CHAMP



$\theta = \pi/2$

$\theta = 3\pi/4$

(a)

$\tau = 2$
 $q = 4$

(b)

FIG 5
 II-B/ANNEXE 2

VARIATIONS EN FONCTION DE τ ET DE θ DE $(P_{01}-P_{0-1})$ APRES MOYENNE SUR Φ

potentiel (+) - $q=4.3131$

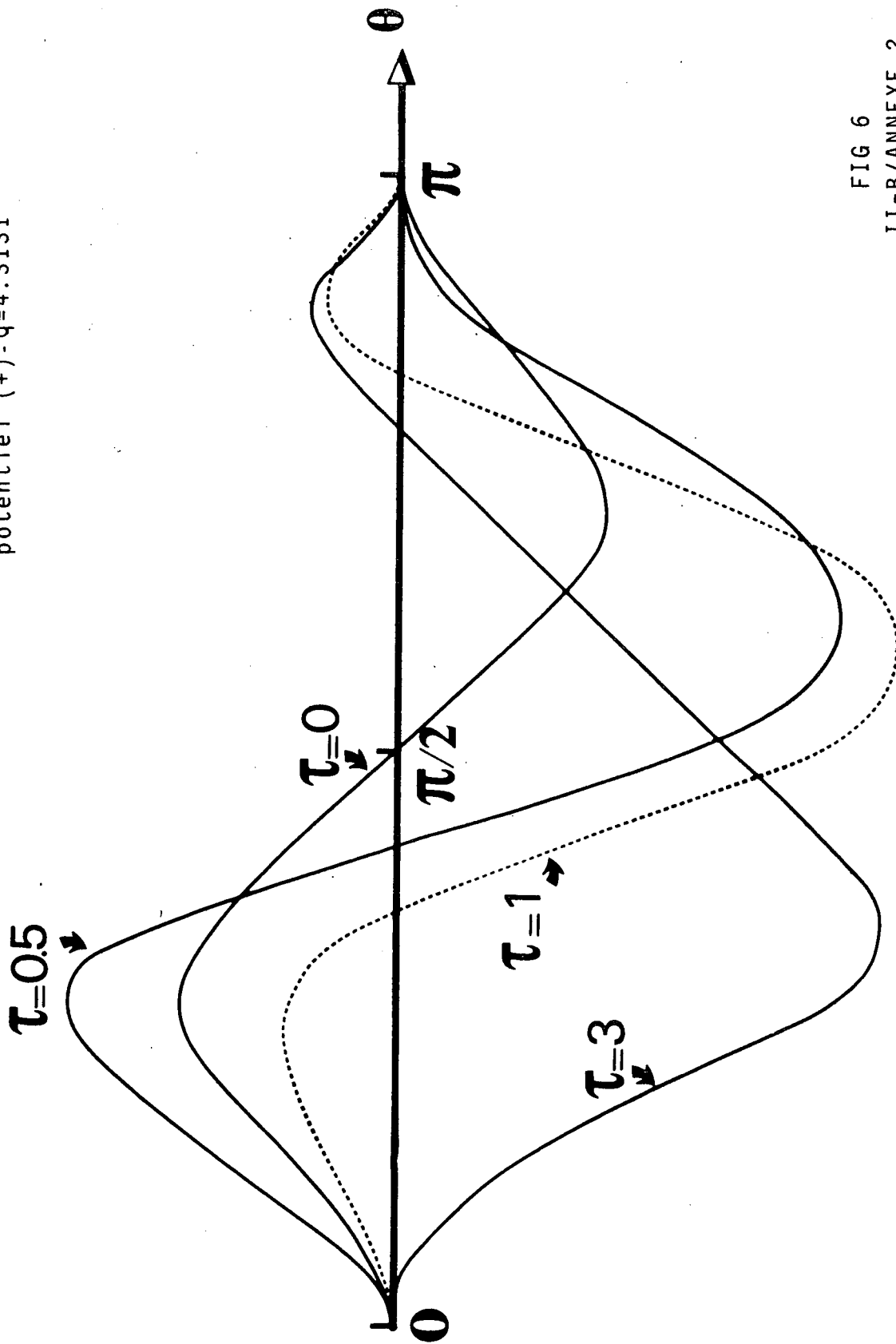


FIG 6
II-B/ANNEXE 2

★ ANNEXE 3 ★

Démonstration quantique des relations de symétrie

On peut démontrer quantiquement les relations (4) en faisant un minimum d'hypothèses sur le système au cours de la collision. Nous suivons l'analyse d'OMONT (4) en nous attachant plus particulièrement à démontrer que

$$g^{(mm)}(pp) = g^{(pp)}(mm)$$

On notera ρ_b la matrice densité du "réservoir", H le hamiltonien total du système, S la matrice de collision associée, K l'opération de renversement du temps, T l'opération de réflexion dans un plan XOZ contenant le champ et A le produit KT des deux dernières transformations.

Les opérateurs introduits vérifient les relations suivantes :

$$A \rho_b A^\dagger = \rho_b \qquad A H A^\dagger = H \qquad A^\dagger S^\dagger A = S$$

$$A |m \rangle \langle m| A^\dagger = |m \rangle \langle m|$$

Les taux de transfert par collision sont définis de la manière habituelle en supposant qu'il n'existe pas de corrélations entre le système et le "réservoir" à l'état initial :

$$g^{(mm)}(pp) = \delta_{mp} - \text{Tr} \{ |m \rangle \langle m| S |p \rangle \langle p| \rho_b S^\dagger \}$$

En remplaçant S par $A^\dagger S^\dagger A$ et après quelques transformations simples, on obtient :

$$g^{(mm)}(pp) = \delta_{mp} - \text{Tr} \{ (A^\dagger S^\dagger |p \rangle \langle p| \rho_b S) (A |m \rangle \langle m|) \}$$

La permutation de l'ordre des deux opérateurs antilinéaires entre parenthèses dans la trace conduit à prendre le complexe conjugué de l'expression :

$$\begin{aligned}
g^{(mm)(pp)} &= \delta_{mp} - \text{Tr} \{ A |m \rangle \langle m| A^\dagger S^\dagger |p \rangle \langle p| \rho_b S \}^* \\
&= \delta_{mp} - \text{Tr} \{ |m \rangle \langle m| S^\dagger |p \rangle \langle p| \rho_b S \}^*
\end{aligned}$$

d'où après transposition des opérateurs dans la trace :

$$g^{(mm)(pp)} = \delta_{mp} - \text{Tr} \{ |p \rangle \langle p| S |m \rangle \langle m| S^\dagger \rho_b \}$$

Pour obtenir le résultat cherché il faut donc faire une hypothèse supplémentaire qui est :

$$[S, \rho_b] = 0$$

ce qui est vrai en particulier si la perturbation du "réservoir" et le couplage avec le système sont faibles (par exemple pour un perturbateur sans structure lorsque le mouvement extérieur n'est pas perturbé). Mais ceci est vrai de façon plus générale, par exemple pour des collisions élastiques (sans transfert d'énergie) avec des perturbateurs dont l'état interne et l'état externe sont isotropes. Ceci n'est plus vrai de façon générale lorsque la condition $\hbar\omega \ll kT$ n'est pas vérifiée.

Si $[S, \rho_b] = 0$, on obtient alors

$$g^{(mm)(pp)} = g^{(pp)(mm)}$$

Remarquons que si le hamiltonien était invariant par renversement du temps on obtiendrait par un raisonnement analogue la relation ⁽⁹⁾

$$g^{(mm)(pp)} = g^{(-p-p)(-m-m)}$$

Lorsque de plus le système est invariant par rotation ou par réflexion planes ⁽⁹⁾ on a

$$g^{(mm)(pp)} = g^{(-m-m)(-p-p)}$$

★ ANNEXE 4 ★

Bilan détaillé en présence d'un champ magnétique

L'établissement du principe de bilan détaillé en présence d'un champ magnétique peut être déduit de la démonstration usuelle en prenant quelques précautions. La démonstration habituelle suppose la microréversibilité du système (8) ce qui n'est pas vérifié en présence du champ magnétique.

On définit à partir de la matrice S du système total, la matrice de transition T par la relation (8) :

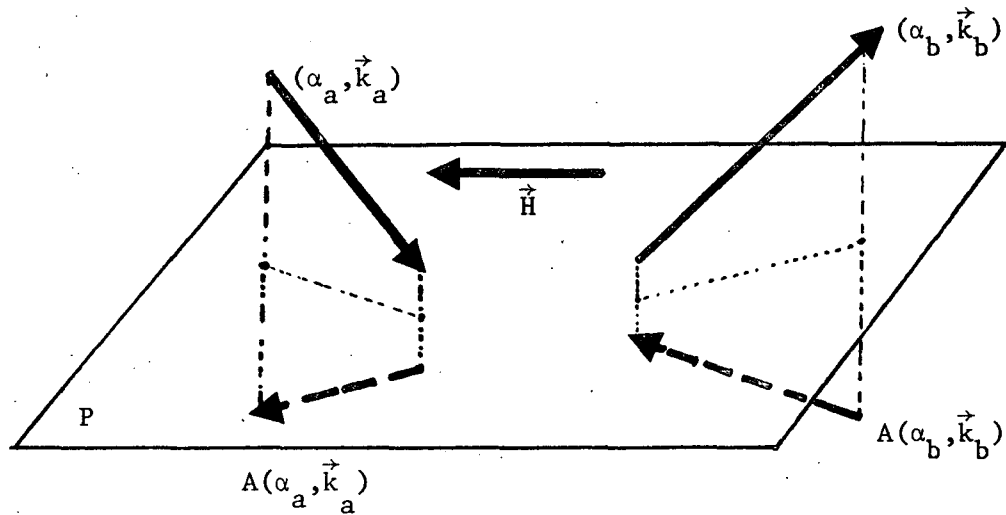
$$T = \frac{i}{2\pi} (S - 1)$$

On notera dans la suite (a) l'état initial du système spécifiant l'ensemble des variables internes (α_a) et les degrés de liberté externes (\vec{k}_a impulsion de l'onde entrante) et (b) l'état final du système (α_b , \vec{k}_b impulsion de l'onde sortante). L'opérateur A désigne le produit du renversement du temps et de la symétrie dans un plan P contenant le champ magnétique.

En présence du champ magnétique, le hamiltonien est invariant dans l'opération A qui présente par ailleurs des propriétés mathématiques analogues à celles de l'opérateur K de renversement du temps. Une démonstration en tous points semblable à celle de la microréversibilité en l'absence de champ (8) conduit alors en utilisant $[H, A] = 0$ où H est le hamiltonien du système total, à la relation :

$$T_{Ab \rightarrow Aa} = T_{a \rightarrow b} \quad (1)$$

La relation précédente exprime l'égalité des amplitudes de diffusion pour le processus direct et le processus déduit par inversion temporelle et réflexion d'espace pour l'énergie E du système total. (cf. schéma ci-dessous).



La démonstration usuelle du principe de bilan détaillé est alors directement applicable. Le nombre de particules diffusées par unité d'angle solide dans la direction \vec{k}_b par unité de temps et de flux incident est donné par :

$$\frac{d\sigma_{a \rightarrow b}}{d\Omega} = \frac{2\pi}{h v_a} |T_{a \rightarrow b}|^2 \rho_b(E) \quad (2)$$

où $\rho_b(E)$ désigne la densité d'états finaux ayant la même énergie E que l'état initial. $\rho_b(E)$ est de la forme :

$$\rho_b(E) = \frac{m \hbar k_b}{(2\pi\hbar)^3} \quad (3)$$

Pour le processus inverse dans la transformation A , on obtient de manière identique

$$\frac{d\sigma_{Ab \rightarrow Aa}}{d\Omega} = \frac{2\pi}{h v'_b} |T_{Ab \rightarrow Aa}|^2 \rho_{Aa}(E) \quad (4)$$

où \vec{v}'_b se déduit de \vec{v}_b dans la transformation A et est donc le symétrique de $-\vec{v}_b$ dans la réflexion plane considérée.

L'ensemble des relations précédentes conduit à :

$$\boxed{\frac{v'_b}{\rho_{Aa}(E)} d\sigma_{Ab \rightarrow Aa} = \frac{v_a}{\rho_b(E)} d\sigma_{a \rightarrow b}} \quad (5)$$

ou en explicitant la densité d'états finaux :

$$\boxed{\frac{v'_b}{v'_a} d\sigma_{Ab \rightarrow Aa} = \frac{v_a}{v_b} d\sigma_{a \rightarrow b}} \quad (5')$$

La sommation dans l'espace sur les orientations des vecteurs d'onde \vec{k}_a et \vec{k}_b , \vec{k}'_a et \vec{k}'_b qui se correspondent dans la transformation A s'effectue dans les deux membres de (5') de la même façon puisque les éléments différentiels se correspondent par une transformation géométrique simple et que la distribution des vitesses \vec{k}_a est supposée isotrope dans l'espace.

On obtient ainsi, compte tenu de $v'_b = v_b$
 $v'_a = v_a$

les sections efficaces totales $\sigma_{a \rightarrow b}$ et $\sigma_{Ab \rightarrow Aa}$ pour les processus d'énergie E considérés qui satisfont à la relation :

$$\boxed{v_b^2 \cdot \sigma_{Ab \rightarrow Aa} = v_a^2 \cdot \sigma_{a \rightarrow b}} \quad (6)$$

Cette relation est l'analogie de la relation (XIV-150) de MESSIAH (8). L'énergie totale du système dans le processus a→b se met sous la forme

$$E = E^i(\alpha_a) + \frac{1}{2} m v_a^2 = E^i(\alpha_b) + \frac{1}{2} m v_b^2 \quad (7)$$

où $E^i(\alpha_a)$ et $E^i(\alpha_b)$ désignent l'énergie interne du système avant et après la collision (c'est-à-dire en l'absence de toute interaction). Pour obtenir le taux moyen de transfert dans la vapeur entre les états (α_a) et (α_b) de la particule, il faut effectuer une moyenne sur le module de l'impulsion de l'onde entrante ($v_a \propto \hbar k_a$).

On posera donc :

$$\boxed{\bar{g}_{\alpha_a \rightarrow \alpha_b} = \int f(v_a) v_a \cdot \sigma_{a \rightarrow b} dv_a} \quad (8)$$

en supposant que $f(v_a)$ désigne la distribution de Maxwell-Boltzmann normalisée à un atome par unité de volume. $\bar{g}_{\alpha_a \rightarrow \alpha_b}$ est homogène à une probabilité de transition par unité de temps et :

$$f(v_a) \propto v_a^2 \cdot e^{-v_a^2/u^2}$$

L'utilisation de (8) et de (6) conduit à :

$$\bar{g}_{\alpha_a \rightarrow \alpha_b} = \int v_b^2 e^{-v_a^2/u^2} \sigma_{Ab \rightarrow Aa} \cdot v_a \cdot dv_a$$

et d'après (7)

$$v_a dv_a = v_b dv_b$$

soit

$$\bar{g}_{\alpha_a \rightarrow \alpha_b} = \int e^{-v_a^2/u^2} v_b^3 \cdot \sigma_{Ab \rightarrow Aa} \cdot dv_b$$

d'où d'après (7) (et compte tenu de $E^i(A\alpha) = E^i(\alpha)$)

$$\bar{g}_{\alpha_a \rightarrow \alpha_b} = e^{-[E^i(\alpha_b) - E^i(\alpha_a)]/kT} \bar{g}_{A\alpha_b \rightarrow A\alpha_a} \quad (9)$$

APPLICATIONS

Lorsque $(\alpha_a) = (J m)$
 $(\alpha_b) = (J p)$

ce qui suppose en particulier le perturbateur sans structure interne, la relation (9) conduit, compte tenu de $A |J M\rangle = |J M\rangle$, à :

$$\bar{g}_{(Jm) \rightarrow (Jp)} = g^{(pp)(mm)} = e^{-[E(p) - E(m)]/kT} g^{(mm)(pp)}$$

$$g^{(pp)(mm)} = e^{-(p-m)\hbar\omega/kT} g^{(mm)(pp)} \quad (10)$$

relation que l'on peut prévoir intuitivement et qui permet de fixer les limites de validité des relations de symétrie obtenues dans l'article ou dans l'annexe 3.

REMARQUE

Lorsque le champ magnétique est nul, ou petit, le système est invariant par renversement du temps. On est conduit par une démonstration analogue à la précédente à :

$$g^{(pp)(mm)} = g^{(-m-m)(-p-p)}$$

Ce cas est évidemment trivial puisque les sous-niveaux Zeeman sont dégénérés.

Un cas beaucoup plus intéressant est celui où en l'absence de champ magnétique appliqué, on s'intéresse au transfert de l'excitation entre deux ensembles (Jm) et (J'm') de sous-niveaux séparés par l'écart d'énergie E.

L'invariance par renversement du temps produit alors la relation (8)

$$\overline{g}_{(JM) \rightarrow (J'M')} = e^{-[E(J') - E(J)]/kT} \overline{g}_{(J'-M') \rightarrow (J-M)} \quad (11)$$

qui n'est pas strictement analogue à (10).

Cependant, en général, la relaxation possède dans un tel cas l'invariance de rotation, où l'invariance par réflexion dans un plan de symétrie du système, ce qui permet d'écrire (8) :

$$\overline{g}_{(JM) \rightarrow (J'M')} = \overline{g}_{(J-M) \rightarrow (J'-M')} \quad (12)$$

L'ensemble des relations (11) et (12) conduit donc à (13)

$$\overline{g}_{(JM) \rightarrow (J'M')} = e^{-[E(J') - E(J)]/kT} \overline{g}_{(J'M') \rightarrow (JM)} \quad (13)$$

formellement analogue à (10), bien que les hypothèses de la démonstration soient en définitive assez différente et qu'en présence d'un champ magnétique appliqué au système (11) et (12) ne soient plus valables séparément.

* ANNEXE 5 *

Symétrisation des résultats de la théorie semi-classique

Les taux de transfert que nous avons obtenus avec le modèle semi-classique de l'article précédent ne satisfont pas après moyenne sur la vitesse relative des atomes au principe de bilan détaillé établi dans l'annexe 4.

On peut cependant obtenir des taux de transfert satisfaisant à ce principe en utilisant la méthode développée par exemple par JAMIESON et RIED (7) dans le cas des collisions électron-atome et qui semble donner dans ce cas de bons résultats. (Voir aussi les autres références citées dans (7)).

Le principe de la méthode que nous appliquerons au cas du transfert de la population entre deux sous-niveaux Zeeman m et p consiste à introduire dans le résultat semi-classique du calcul de la probabilité de transition de m vers p , pour une vitesse relative v fixée, un facteur tenant compte des vitesses v_m et v_p différentes des atomes avant et après la transition. Le choix le plus simple est de prendre pour facteur correctif (v_m/v_p) .

La procédure de symétrisation est donc la suivante : On détermine les valeurs de v_m et de v_p à adopter, en faisant l'hypothèse que v dans notre modèle est la moyenne de v_m et de v_p et en écrivant la conservation de l'énergie totale dans le processus. Soit :

$$2v = v_m + v_p$$

$$\frac{1}{2} M v_m^2 + m\hbar\omega = \frac{1}{2} M v_p^2 + p\hbar\omega$$

On définit une nouvelle probabilité de transfert entre les niveaux m et p notée $\nu_{\sigma}(pp)(mm)$ pour la valeur v_m de la vitesse par la relation

$$\tilde{\sigma}^{(pp)(mm)}(v_m) = \frac{v_p}{v_m} \sigma^{(pp)(mm)}(v) \quad (1)$$

où $\sigma^{(pp)(mm)}(v)$ est la section efficace de transfert c'est-à-dire $g^{(pp)(mm)}(v)/v$ dans les notations de l'article.

Pour le processus de transfert de p vers m, on aura de manière analogue

$$\tilde{\sigma}^{(mm)(pp)}(v_p) = \frac{v_m}{v_p} \sigma^{(mm)(pp)}(v) \quad (2)$$

En comparant (1) et (2) et en utilisant la relation de symétrie 4.2 du texte, on obtient donc

$$v_p^2 \cdot \tilde{\sigma}^{(mm)(pp)}(v_p) = v_m^2 \cdot \tilde{\sigma}^{(pp)(mm)}(v_m) \quad (3)$$

Il en résulte qu'après moyenne sur les vitesses, les taux de transfert par collision vérifient avec

$$\bar{g}^{(mm)(pp)} = \int f(v_m) v_m^2 \tilde{\sigma}^{(pp)(mm)}(v_m) dv_m \quad (4)$$

$$\bar{g}^{(mm)(pp)} = e^{-(m-p)\hbar\omega/kT} \bar{g}^{(pp)(mm)} \quad (5)$$

qui est l'expression du principe de bilan détaillé. Cette méthode permet donc d'obtenir à partir des valeurs des taux de transfert données dans l'article, et après moyenne sur les vitesses, des taux de transfert moyens \bar{g} satisfaisant aux conditions générales de symétrie du problème.

On peut essayer de prévoir quelle sera la modification des taux de transfert après moyenne sur la vitesse des atomes lorsque l'on applique la procédure de symétrisation précédente, à la limite $\hbar\omega \ll kT$. On notera $\langle g^{(mm)(pp)}(v) \rangle$ le résultat de la moyenne sur la vitesse des atomes effectuée sur les coefficients non symétrisés avec une distribution de Boltzmann. En effectuant dans la relation (4) un développement limité, on relie l'expression du coefficient \bar{g} symétrisé et moyenné sur la vitesse v_m au coefficient $\langle g \rangle$.

On obtient

$$\bar{g}^{(pp)(mm)} = e^{-\frac{\hbar\omega}{2kT} (p-m)} \langle g^{(pp)(mm)}(v) \rangle \quad (6)$$

La relation (6) permet donc de définir à partir des expressions du tableau 1

moyennées sur la vitesse v , des coefficients \bar{g} satisfaisant au principe de bilan détaillé, et ceci de manière simple.

Remarque : Dans le cas plus particulier des collisions résonnantes entre atomes identiques (cf. § I-B), on a une relation supplémentaire :

$$\langle g^{(pp)(mm)}(v) \rangle = \langle g^{(-p-p)(-m-m)}(v) \rangle$$

entre les coefficients. L'application de la procédure de symétrisation précédente conduit alors à la limite $\hbar\omega \ll kT$ aux relations :

$$g^{(11)(00)} = e^{-\hbar\omega/kT} \bar{g}^{(-1-1)(00)}$$

et

$$\bar{g}^{(11)(00)} = \bar{g}^{(00)(-1-1)} = e^{-\hbar\omega/2kT} \langle g^{(11)(00)}(v) \rangle$$

- C -

COLLISIONS NON RESONNANTES Hg^{*} (6³P₁)-GAZ RARES

ETUDE EXPERIMENTALE

Le but poursuivi dans cette partie sera essentiellement une comparaison qualitative de la théorie et des expériences. Les résultats expérimentaux que nous présentons peuvent être entachés d'erreurs systématiques diverses et doivent donc à ce titre être considérés comme préliminaires. Néanmoins ils permettent d'illustrer les prévisions du modèle théorique du § I-B et de mettre en évidence l'intérêt de la méthode expérimentale pour l'étude des collisions aux énergies thermiques.

- 1 - CONDITIONS DE L'ETUDE EXPERIMENTALE
- 2 - EXPERIENCES REALISEES ENTRE 0 et 80 KG SUR He, Kr, Xe.
 - 2-1-Description du montage - méthodes expérimentales
 - 2-2-Variations des taux de transfert en fonction du champ
 - 2-3-Influence de l'emprisonnement et de la pression de gaz rare sur les variations en fonction du champ.
- 3 - EXPERIENCES REALISEES AU SERVICE NATIONAL DES CHAMPS INTENSES ENTRE 0 ET 200 KG
 - 3-1-Description du montage
 - 3-2-Conditions de l'étude
 - 3-3-Tests et corrections diverses - effets parasites.
 - 3-4-Résultats obtenus à basse densité de Mercure
 - 3-5-Résultats obtenus à haute densité de Mercure
- 4 - COMPARAISON DES RESULTATS DES DEUX SERIES D'EXPERIENCES-QUELQUES ORDRES DE GRANDEUR THEORIQUES.
 - 4-1-Comparaison des résultats des deux séries d'expériences
 - 4-2-Valeur des paramètres théoriques
 - 4-3-Forme du potentiel et signe de la partie anisotrope.
 - 4-4-Découplage de \vec{L} et \vec{S} sous l'effet du champ.
- 5 - ANALYSE DES RESULTATS A BASSE TEMPERATURE
 - 5-1-Influence de la correction des termes de retour par collision
 - 5-2-Interprétation des variations de I_{σ} / I_{π} avec le champ
 - 5-3-Interprétation des variations de $I_{\sigma-} / I_{\sigma+}$ avec le champ
 - 5-4-Conclusions
- 6 - RESULTATS DES MESURES A LA TEMPERATURE AMBIANTE

1 - CONDITIONS DE L'ETUDE EXPERIMENTALE

Le principe des études expérimentales que nous avons réalisées est analogue à celui décrit dans le § I-C (GAY et SCHNEIDER - 1975). On excite à l'aide d'une lampe à décharge placée en champ nul le sous-niveau Zeeman $m = 0$ d'un isotope pair (198) du Mercure. La variation des taux de transfert par collision de $m = 0$ vers $m = \pm 1$ pour les divers gaz rares est étudiée en fonction de la valeur du champ. Toutefois les expériences réalisées avec les gaz rares semblent d'interprétation plus simple. Les divers phénomènes parasites mentionnés dans le § I-C dont il a fallu vérifier soigneusement l'ordre de grandeur ou l'éventuelle dépendance en fonction du champ ne peuvent produire dans le cas présent que des effets négligeables. Lors de l'étude des collisions Mercure-Gaz rares, on dispose d'un paramètre supplémentaire qui est la pression du gaz rare. Ce paramètre doit être choisi de préférence de telle façon que les taux de transfert par collisions soient petits devant Γ (probabilité de désexcitation radiative du niveau 6^3P_1). L'expression du rapport des intensités de fluorescence observées dans ces conditions dépend linéairement des taux de transfert par collision. Ce paramètre supplémentaire, la pression de gaz rare, permet en outre de travailler à basse pression de Mercure ce qui offre un certain nombre d'avantages. Lorsque la température du queusot de la cellule vaut de l'ordre de -34°C (densité de Mercure $N \approx 10^{11}$ at/cm³), la diffusion multiple est totalement négligeable (les transferts par collisions résonnantes le sont également). Le rapport des intensités I_σ/I_π est alors donné directement par l'expression (cf. Appendice 1) :

$$I_\sigma/I_\pi = g/\Gamma$$

(g représente la moyenne des taux de transfert de $m = 0$ vers $m = \pm 1$). Les autres avantages d'une étude dans ces conditions sont que les effets de l'inhomogénéité du champ sur l'emprisonnement ne sont pas à craindre et qu'en l'absence de diffusion multiple, le rayonnement ne peut être dépolarisé que par les collisions même lorsque la différence d'énergie entre les sous-niveaux Zeeman est inférieure à la largeur Doppler (OMONT-1961). L'étude des intensités en champ faible a donc un sens et les taux de transfert par collisions peuvent être obtenus par l'étude expérimentale quelle que soit la valeur du champ. On pourrait donc déduire de cette étude la valeur des taux de transfert par collisions en champ nul. Cependant ceux-ci sont bien connus depuis les travaux de PIKETTY et al (1964) , BARRAT et

al. (1966) et FAROUX et al. (1966-1967-1969). Les mesures effectuées par effet Hanle, ou double résonance, paraissent beaucoup plus précises dans la mesure où elle nécessitent moins de corrections susceptibles d'introduire des erreurs systématiques.

Pour l'essentiel, nous avons donc utilisé les sections efficaces expérimentales en champ nul données par ces auteurs pour contrôler le bon remplissage de nos cellules ou pour déterminer selon les cas la pression de gaz rare à admettre dans la cellule pour obtenir à basse température le taux de transfert par collisions désiré.

Nous avons travaillé avec des valeurs de g/Γ valant typiquement 0,1 à 0,3 ce qui correspond à des pressions de 0,1 à 0,6 torr selon la nature du gaz rare. L'effet des gaz résiduels contenus dans les cellules est donc totalement négligeable dans cette catégorie d'expériences.

Les inconvénients d'un travail à basse température sont liés essentiellement à un mauvais rapport signal sur bruit. L'autre difficulté provient des faibles variations avec le champ des taux de transfert. Le temps de collision (comparé à celui des collisions résonnantes Hg-Hg^{*}) est en général court puisque l'interaction entre les deux atomes n'est pas résonnante. Il en résulte que pour réaliser la condition $\omega.T_c \approx 1$, il faudra disposer de champs magnétiques beaucoup plus intenses que dans le cas des collisions résonnantes. La section efficace en champ nul croît avec la masse du gaz rare perturbateur (les atomes lourds sont plus polarisables) et la vitesse relative décroît. Le temps de collision étant proportionnel à $(\sigma/v)^{1/2}$ les conditions les plus favorables seront d'effectuer l'étude avec le Xénon et le Krypton pour lesquels les valeurs du champ critique seront les plus faibles (cf. § II-B). C'est ce que l'on a réalisé dans une première étape entre 0 et 80 kG. La seconde série d'expériences qui a été guidée par les prévisions théoriques exposées dans le § II-B a été beaucoup plus complète (étude des collisions du Mercure avec les 5 gaz rares) et a été réalisée au Service National des Champs Intenses de Grenoble entre 0 et 190 kG. Nous allons successivement décrire ces deux séries d'expériences et donner les résultats obtenus.

2-1-Description du montage-méthodes expérimentales

Dans cette série d'expériences, le champ est produit par la bobine supraconductrice.

Le montage est celui utilisé pour l'étude des collisions résonnantes et est décrit dans le § I-C-2-2.

Les cellules en silice fondue contiennent l'isotope 198 du Mercure (pureté 99,7 %) et l'un des gaz rares à la pression désirée. Les pressions sont mesurées avant scellement à l'aide d'une jauge PIRANI ce qui n'autorise pas une grande précision dans la détermination. Cependant, dans la mesure où l'on ne cherche pas à déterminer la valeur absolue des sections efficaces de transfert, ceci ne constitue pas un inconvénient important.

L'étude expérimentale a été réalisée pour l'Hélium, le Krypton et le Xénon. On excite le sous-niveau Zeeman $m = 0$ à l'aide d'une lampe à décharge placée en champ nul. On enregistre comme dans les expériences décrites au § I-C les intensités de fluorescence π (émise par le sous-niveau $m = 0$) et σ (émise par l'ensemble des sous-niveaux $m = \pm 1$) dans la direction perpendiculaire au champ, en fonction de la valeur du champ.

La température de la tête des cellules est de 25 °C. La température du queusot est en général fixée entre - 30 et - 34°C. La diffusion multiple est dans ces conditions extrêmement réduite et ses effets sur la durée de vie apparente dans la vapeur sont inférieurs à 5%.

Dans certaines expériences, on a fait varier la température du queusot de -34°C à 0°C. Ceci permet de vérifier qualitativement le comportement du rapport I_{σ}/I_{π} en fonction de la densité.

La correction de l'imperfection des polariseurs est effectuée selon les deux méthodes décrites dans le § I-C. Elle vaut 0,04. L'écart quadratique moyen sur les mesures est de l'ordre de 10^{-3} . L'erreur systématique pouvant résulter de cette correction est beaucoup moins gênante que dans les expériences du § I-C. Les taux de transfert sont en effet beaucoup plus grands.

Enfin les valeurs expérimentales de I_{σ} et de I_{π} sont comme dans le § I-C systématiquement corrigées de la lumière parasite provenant de la lampe.

La détermination directe des taux de transfert par collision aux faibles valeurs du champ est effectuée par absorption à l'aide de filtres contenant un isotope impair du Mercure selon les méthodes décrites au § I-C. On détermine ainsi séparément les valeurs des taux de transfert de $m = 0$ vers $m = \pm 1$.

2-2-Variations des taux de transfert en fonction du champ

2-2-1-Allure des variations

Les résultats obtenus sont donnés sur les figures 1 et 2 dans le cas d'une cellule à Xénon et d'une cellule à Hélium contenant respectivement 0,3 torr de Xénon et 0,1 torr d'Hélium. Nous y avons reporté en fonction du champ les valeurs du rapport $\rho = I_{\sigma} / I_{\pi}$ corrigées de l'imperfection des polariseurs et normalisées à la valeur en champ faible. En raison des fluctuations de ρ provenant essentiellement des fluctuations de la lampe à décharge et du mauvais rapport signal sur bruit à basse température, la dispersion des valeurs expérimentales est importante (chaque point représente la moyenne des résultats de 10 mesures). Les résultats ont été normalisés en utilisant la moyenne des valeurs mesurées pour des champs inférieurs à 10 kG.

L'expression théorique de la quantité $\eta(H)$ portée sur ces figures est en première approximation :

$$\eta(H) = \rho(H) / \rho(0) = \frac{g(H)}{g(0)} \frac{\Gamma + g(0)}{\Gamma + g(H)}$$

Pour que $\eta(H)$ représente réellement $g(H)/g(0)$, il faut donc effectuer une correction de manière à éliminer l'effet des termes de retour par collision. En fait, cette correction représente seulement 1% de la valeur de $\eta(H)$ obtenue dans le cas du Xénon à 60 kG en raison de la petitesse des taux de transfert dans les conditions des figures 1 et 2 ($g/\Gamma \ll 0,2$) et des faibles variations observées avec le champ. Nous avons donc négligé cette correction dans les conditions des figures 1 et 2.

Les résultats montrent que dans le cas du Xénon la moyenne $g(H)$ des taux de transfert de $m = 0$ vers $m = \pm 1$ varie tout au plus de 10% dans le domaine de 70 kG exploré. Dans le cas de l'Hélium, les variations observées dans le même intervalle sont de l'ordre de 2%. Ceci révèle, d'ores et déjà une différence importante dans le comportement des taux de transfert avec le champ selon que le gaz rare est lourd et polarisable (Xénon) ou léger (Hélium).

2-2-2-Comparaison des variations observées dans différentes conditions expérimentales.

Nous avons reporté sur la figure 3 les variations relatives $\Delta g/g(0)$

des taux de transfert entre 0 et 60 kG observées à des températures de l'ordre de -30°C ($N \approx 10^{11}$ at/cm³) pour les deux sens du champ magnétique avec des cellules contenant différentes pressions de gaz rares.

La valeur de $\Delta g/g(0)$ est déterminée pour chaque cellule de la façon suivante : on trace sur l'intervalle 0-60 kG une droite de moindres carrés pour tenir compte des variations de I_{σ}/I_{π} en fonction du champ. On en déduit la valeur Δg de la variation de g dans cette gamme de champ. Cette méthode d'exploitation des résultats est critiquable dans la mesure où les variations de ρ ou de g en fonction du champ ne sont pas linéaires. Elle surestime légèrement (1 à 2%) à 60 kG les variations réelles avec le champ des taux de transfert. Cependant, l'emploi de cette méthode d'exploitation est justifié dans la mesure où les résultats expérimentaux sont peu précis. Elle permet de plus une comparaison et des corrections plus simples (en particulier des termes de retour par collision), des variations observées pour les différents gaz rares.

Les points présentés sur la figure 3 correspondent pour chaque gaz rare à des cellules présentant des caractéristiques différentes (formes, pression du gaz rare). Les mesures sont effectuées systématiquement pour les deux sens du champ. Les valeurs portées sur la figure 3 sont corrigées approximativement de l'effet des termes de retour par collision qui ne sont pas négligeables en particulier lorsque la pression du gaz rare est élevée (cas par exemple de la cellule contenant de l'Hélium à la pression de 0,9 torr). La dispersion des points ainsi déterminés doit être attribuée en partie au mauvais rapport signal sur bruit, aux changements de cellules qui modifient les erreurs systématiques introduites par les diverses corrections et à la difficulté d'effectuer de manière précise la correction des termes de retour par collision en particulier lorsque les taux de transfert sont élevés.

On peut conclure, malgré la dispersion des résultats que les variations avec le champ des taux de transfert dépendent de la nature du gaz rare perturbateur (cf. § 2-2-1). Elles sont plus importantes pour les gaz rares lourds et polarisables (Xe-Kr) que pour l'Hélium, ce qui se conçoit bien puisque le temps de collision pour les gaz lourds est plus long que pour l'Hélium. Notons que le but de l'étude réalisée sur l'Hélium était dans les expériences du §2 essentiellement de tester la qualité du montage puisque la très forte valeur du champ critique (≈ 225 kG) conduisait à prévoir de faibles variations de I_{σ}/I_{π} avec le champ dans le domaine 0-80 kG exploré. Nous comparerons au § 5 les variations

obtenues aux prévisions théoriques.

2-3-Influence de l'emprisonnement et de la pression de gaz rare sur les variations en fonction du champ.

Le but de ces expériences est de mettre en évidence le rôle de l'emprisonnement et des termes de retour par collision dans l'observation en fonction du champ magnétique des variations de $\rho = I_{\sigma} / I_{\pi}$.

2-3-1-Principe de l'étude

L'expression théorique du rapport $\rho = I_{\sigma} / I_{\pi}$ est donnée en première approximation par (cf. Appendice 1) :

$$\rho = \lambda(N) g / (\Gamma^{\sigma} + g)$$

La variation relative de ρ entre 0 et 60 kG est donc :

$$\Delta\rho/\rho(0) = \frac{\Delta g}{g(0)} \frac{1}{1 + g(60)/\Gamma^{\sigma}}$$

Lorsque l'on augmente la densité de Mercure à partir de $N \approx 10^{11}$ at/cm³ où $\Gamma^{\sigma} \approx \Gamma$ la valeur de Γ^{σ} décroît. A pression de gaz rare fixée, le taux de transfert par collision est constant et ne dépend que de la valeur du champ. Le terme $\Delta g/g(0)$ est donc constant mais le facteur correctif représentant l'effet des termes de retour par collision décroît. La valeur de $\Delta\rho/\rho(0)$ obtenue expérimentalement va donc décroître lorsque l'on augmente la densité de Mercure. On parvient à des conclusions identiques lorsque l'on augmente la pression de gaz rare à densité de Mercure fixée.

La nécessité de vérifier expérimentalement les prévisions précédentes s'impose dans la mesure où les variations de ρ avec le champ observées à basse densité de Mercure sont faibles et imprécises et qu'il faut vérifier qu'elles peuvent être sans ambiguïté attribuées aux variations des taux de transfert avec le champ. Faire varier la densité de Mercure ou la pression de gaz rare dans une cellule déterminée constitue l'expérience la plus simple que l'on puisse réaliser pour vérifier qualitativement que les effets observés ont un comportement en accord avec ce que l'on peut prévoir intuitivement.

2-3-2-Etude expérimentale en fonction de la densité de Mercure (cellule à Krypton $p = 0,1$ torr).

On a fait varier la température du point froid de la cellule de -34 à 0°C . La densité de Mercure dans la tête de la cellule varie ainsi de 10^{11} at/cm³ à $6,3 \cdot 10^{12}$ at/cm³. A densité N fixée, on mesure les variations de ρ en fonction du champ. On en déduit, en ajustant une droite de moindres carrés selon la méthode décrite au § 2-2, la valeur $\Delta\rho/\rho(0)$ représentant la variation relative du rapport ρ dans une gamme de champ de 60 kG. (Cette méthode, rappelons-le, majore de 1 à 2% la valeur de $\Delta\rho/\rho(0)$).

Les résultats sont portés sur la figure 4. A basse pression de Mercure ($N \approx 10^{11}$ at/cm³), les variations relatives du rapport sont de l'ordre de 6,5 %. Les termes de retour par collision sont alors négligeables en raison de la faible pression de gaz rare utilisée. Ce n'est plus vrai pour $N \geq 10^{12}$ at/cm³ puisque le temps d'emprisonnement a augmenté de façon considérable (de l'ordre d'un facteur 10). $\Delta\rho/\rho(0)$ ne vaut plus dans ces conditions que 3%.

2-3-3-Etude expérimentale en fonction de la pression de gaz rare (densité de Mercure fixée).

Cette possibilité n'a pas été utilisée de manière systématique. Elle exige en effet l'utilisation d'un grand nombre de cellules différentes ce qui peut avoir pour conséquence la modification des erreurs systématiques (cf. par exemple la figure 3). L'étude à basse température ($T \approx -30^{\circ}\text{C}$) effectuée sur deux cellules contenant respectivement 4 torr et 0,3 torr de Xénon a produit les résultats suivants (dépouillés par la méthode de moindres carrés) :

$p = 4$ torr	$\Delta\rho/\rho(0)$	3%	pour $\Delta H = 60$ kG
$p = 0,3$ torr	$\Delta\rho/\rho(0)$	8,5%	

2-3-4-Conclusions

Bien que les expériences précédentes soient limitées et imprécises, elles permettent de conclure que pour l'essentiel les variations de ρ observées à faible densité de Mercure dépendent à la fois de la pression de gaz rare et de la densité de Mercure. Elles proviennent donc des variations avec le champ des taux de transfert par collision.

3 - EXPERIENCES REALISEES AU SERVICE NATIONAL DES CHAMPS INTENSES ENTRE 0 ET 200 KG

Les variations maximales des taux de transfert entre 0 et 80 kG étant faibles, l'étude précédente a été poursuivie dans des champs plus élevés de l'ordre de 200 kG. (GAY et OMONT - 1976).

L'étude théorique motivée par les résultats expérimentaux obtenus au § 2 (GAY 1975) a d'autre part révélé qu'en raison de l'anisotropie de la relaxation les taux de transfert par collisions entre les sous-niveaux Zeeman $m = 0$ et $m = \pm 1$ étaient différents (cf. § II-B). Lorsque la partie anisotrope du potentiel est telle que $E_{\Sigma} < E_{\Pi}$, le transfert s'effectue préférentiellement vers le niveau $m = -1$, tandis que le niveau $m = +1$ est favorisé lorsque $E_{\Sigma} > E_{\Pi}$. Cet effet n'existe pas dans le cas des collisions résonnantes en raison de l'invariance du potentiel dans l'échange des atomes (cf. § I-B) à la limite $\hbar\omega \ll kT$.

Il était important de vérifier expérimentalement ces prévisions dans la mesure où peu de méthodes expérimentales permettent un test direct du signe de l'anisotropie du potentiel. Nous avons donc effectué au Service National des Champs Intenses de Grenoble une étude plus complète des phénomènes, pour les cinq gaz rares, en enregistrant lors des expériences les valeurs de I_{σ}/I_{π} et celles de $I_{\sigma-}/I_{\sigma+}$ en fonction du champ magnétique. On obtient ainsi des informations sur les variations avec le champ de $(g^{(11)(00)} + g^{(-1-1)(00)})/\Gamma$ et de $g^{(-1-1)(00)}/g^{(11)(00)}$.

Les méthodes expérimentales utilisées dans cette série d'expériences sont en tous points semblables à celles décrites aux § II-C-2 et I-C.

3-1-Description du montage

Le montage est analogue dans son principe à celui utilisé à la Halle aux Vins décrit dans la partie I-C. Une direction de détection supplémentaire, dans l'axe du champ est cependant utilisée (cf. FIG 5).

La nécessité de transporter tout le matériel à Grenoble a exigé de le ramener à un volume et un poids raisonnables. Le montage expérimental a donc été simplifié pour tenir compte de ces critères. Le champ de fuite important des bobines de Bitter et les contraintes géométriques imposées par des accès extrêmement malaisés et l'utilisation de lampes à décharges de faible puissance ont conduit à utiliser de manière systématique des fibres souples et des barreaux rigides

en silice fondue pour réaliser l'excitation optique du Mercure et la détection des signaux. Ceci permet de placer le banc d'excitation contenant la lampe à environ 3 mètres de la bobine de Bitter et le banc de détection contenant le PM à environ 4 mètres tout en conservant suffisamment de lumière pour effectuer les expériences. Le montage expérimental offre en outre la possibilité d'une mise en place et d'un démontage rapide et permet une excellente isolation de la lumière de la pièce. Les performances sont en définitive très analogues à celles qu'aurait permis un montage classique avec lentilles et miroirs mais la souplesse d'emploi est beaucoup plus grande.

La partie essentielle du montage est un cylindre de 40 cm de long supportant la cellule, les polariseurs et la lame quart d'onde, de conception semblable à celui utilisé dans le § I-C. Le diamètre du conduit central des bobines de Bitter est de 50 mm. Il en résulte un grand nombre de contraintes puisqu'il faut placer dans les dimensions restreintes d'un même plan horizontal une cellule cubique de 2 cm d'arête, deux diaphragmes, deux miroirs et un polariseur (cf. FIG 6).

Les autres éléments du montage ont été décrits dans la partie I-C. Les fibres souples en silice fondue (SCHOTT) sont de longueur 1,80 m, de diamètre 5 mm, ou de longueur 1m, diamètre 1 cm. La transmission moyenne à 2537 Å est de 50% par mètre. Les barreaux en silice fondue (SCHOTT) sont de type QLT (angle d'ouverture environ 30°). Ils sont constitués d'un noyau de silice fondue de 1 mètre de long et 1 cm de diamètre. Ils sont protégés par un tube métallique. L'adaptation entre deux barreaux est réalisée par un embout de métal. On obtient ainsi un système optique parfaitement isolé du milieu extérieur.

Enfin, les contraintes d'encombrement et de poids nous ont conduit à remplacer le système SECASI de régulation en température par un système de réfrigération à sonde (HAAKE). La stabilité en température est d'environ 0,5°C mais ceci n'a pas entraîné de difficultés expérimentales particulières.

Caractéristiques des bobines de Bitter

Le schéma de principe des bobines est donné sur la figure 7. Nous avons utilisé deux bobines (axe vertical) produisant respectivement un champ au centre de 130 kG avec une homogénéité de $7 \cdot 10^{-3}$ dans 2 cm, et un champ de 190 kG avec une homogénéité de $3 \cdot 10^{-3}$ (Bobine 10 MW). Le champ est mesuré à l'aide d'un gaussmètre à extraction de flux. La montée au champ maximum peut s'effectuer

en 3 minutes. Les diverses caractéristiques du champ de fuite de la bobine 10 MW sont données dans le tableau 1. L'intensité maximum parcourant la bobine 10 MW lorsque le champ au centre vaut 190 kG est de 2×10^4 A.

3-2-Conditions de l'étude.

Les études ont été effectuées à des températures de l'ordre de -30 à -34°C . La diffusion multiple est négligeable dans ces conditions. La densité de Mercure est typiquement de 10^{11} at/cm³.

Le choix de la pression de gaz rare dans les cellules est effectué de telle façon que I_σ/I_π en champ nul soit de l'ordre de 0.2 à 0.3. Les termes de retour par collision sont assez petits pour qu'en première approximation ils ne compliquent pas l'interprétation des résultats et qu'on puisse les négliger. Les pressions de gaz rares contenus dans les cellules sont les suivantes : Xénon (0,3 torr), Krypton (0,5 torr), Argon (0,6 torr), Néon (0,7 torr), Hélium (0,6 torr). Les cellules à Néon, Argon et Krypton sont de fabrication Quartex (silice fondue - épaisseur de paroi 1 mm). Les deux cellules à Xénon et celle à Hélium sont de fabrication Heraeus (ultrasil). L'isotope du Mercure utilisé est Hg¹⁹⁸ (99,7%). La lame $5\lambda/4$ à 2537 Å est de fabrication FICHOUX adhérente sur silice fondue. La partie en silice fondue de 5 mm d'épaisseur est placée avant la lame proprement dite. Celle-ci est immédiatement suivie d'un polariseur W.58 (KASEMAN). L'ouverture total des faisceaux arrivant sur la lame est d'environ 20° . L'épaisseur importante de la lame de silice fondue supportant la lame $5\lambda/4$ est une nécessité dans le cas où l'on utilise la technique d'adhérence optique qui exige un support épais. L'alternative eût été d'utiliser des lames $37\lambda/4$ collées sur un support en silice fondue moins épais (2 mm). Nous avons cependant pensé que cette technique était mauvaise car en raison de l'ouverture des faisceaux, l'imperfection du système réalisé avec une lame $37\lambda/4$ sera plus importante et plus difficile à corriger.

3-3-Tests et corrections diverses. Effets parasites

La procédure expérimentale est analogue à celle décrite dans le § I-C et dans le § II-C-2. On détermine pour une température de -30 à -34°C les valeurs de I_σ et I_π , de I_{σ^-} et I_{σ^+} pour chaque valeur du champ. L'étude des intensités de fluorescence de polarisation σ^- et σ^+ est effectuée pour les deux

sens du champ, la direction de détection étant fixe. De cette façon les populations des sous-niveaux Zeeman $m = \pm 1$ sont tour à tour mesurées sur les voies ϵ^+ et ϵ^- (correspondant chacune à une orientation du polariseur de détection par rapport à la lame).

Nous n'avons pas pu effectuer de tests du montage aussi nombreux que ceux décrits au § I-C. En particulier, les résultats présentés dans le § 3-4 ne sont pas corrigés de la lumière parasite provenant de la lampe. Il est en effet très malaisé d'accéder à la partie inférieure de la bobine de Bitter. Faire des mesures de la lumière résiduelle en plongeant le queusot de la cellule dans l'azote liquide nécessite d'enlever le système de régulation en température peu adapté lui-même au montage. En outre, le temps de piégeage à l'azote est long en raison de la longueur (30 cm) du queusot et des pressions de gaz rares relativement importantes qui ralentissent fortement la diffusion du Mercure (BUTAUX-1972). Nous avons effectué ce test en de très rares circonstances. L'ordre de grandeur obtenu correspond à quelques % du signal direct σ à basse température.

Nous avons par contre systématiquement effectué sur les résultats les corrections de la lumière parasite provenant de la pièce qui sont avec le montage adopté de l'ordre de 1% des signaux σ à basse température.

3-3-1-Influence du champ de fuite sur le photomultiplicateur et la lampe à décharge.

La méthode de blindage du photomultiplicateur a été décrite dans la partie I-C. Le blindage est donc prévu pour pouvoir résister à des champs de 50 gauss. Nous avons ajouté pour le parfaire plusieurs épaisseurs de fer doux ARMCO au-dessus et au-dessous du banc de détection. La même technique est utilisée dans le cas de la lampe bien que l'existence d'un champ de fuite de quelques gauss à ce niveau ne puisse être gênante. Nous avons testé directement les effets du champ de fuite en envoyant une partie de la lumière de la lampe sur le photomultiplicateur et en faisant varier le champ produit par la bobine de Bitter. Aucune corrélation n'a été observée entre le signal du photomultiplicateur et la valeur du champ. On déduit ainsi que les effets du champ de fuite sont négligeables à la fois sur le PM et sur la lampe. Au champ maximum (190 kG), le champ de fuite au niveau du PM situé à 4 mètres du centre du solénoïde est d'environ 20 gauss (cf. Tableau 1).

3-3-2-Corrections de l'imperfection du polariseur

Cette correction doit être effectuée lorsque l'on mesure les valeurs I_{σ} et I_{π} des intensités de fluorescence réémises dans la direction perpendiculaire au champ magnétique (cf. § I-C). Dans la mesure où le taux de transfert par collisions est de l'ordre de 0,2, on peut admettre que l'imperfection du polariseur qui provient de l'ouverture angulaire des faisceaux mélange à la lumière σ réelle provenant du transfert par collisions, une petite fraction de lumière π . Ce mélange est dans les expériences réalisées à Grenoble de l'ordre de 3%. La détermination de α est effectuée selon la méthode exposée au § I-C en utilisant des techniques d'absorption par un filtre contenant un isotope impair. Cependant, la mesure n'a pu être répétée de nombreuses fois et établie aussi soigneusement que pour les mesures décrites au § I-C. En l'absence de corrections de la lumière parasite de la lampe il subsiste de plus une certaine indétermination sur les valeurs mesurées. La valeur de α déterminée précédemment ne l'est pas à mieux de 20 %.

3-3-3-Corrections de l'imperfection de l'analyseur circulaire

La lame $5\lambda/4$ suivie d'un polariseur que l'on peut orienter à 45° des axes de la lame constitue un analyseur circulaire imparfait en raison des défauts de la lame et de l'ouverture (20°) des faisceaux arrivant sur le système (les effets d'ouverture proviennent essentiellement du polariseur).

En raison de l'ouverture angulaire des faisceaux, la lumière émise par le sous-niveau Zeeman $m = 0$ des atomes peut traverser le système d'analyse de la lumière circulaire et constituer un signal parasite à une fréquence sensiblement non déplacée par effet Zeeman (cf. Appendice 2). On a cependant réduit, sinon éliminé cette possibilité en plaçant devant le photomultiplicateur, en champ nul, une cuve d'absorption contenant l'isotope 198 du Mercure. Le profil d'émission de la cellule étant à basse température très étroit et déplacé à très haut champ (190 kG) de 0,8 GHz seulement, les photons issus du sous-niveau Zeeman $m = 0$ sont absorbés quelle que soit la valeur du champ par le filtre dont le profil d'absorption à température ambiante a une largeur d'environ 2,4 GHz.

L'ensemble des autres imperfections de l'analyseur circulaire se traduit par l'existence d'un mélange des polarisations σ^+ et σ^- détectées. Pour un sens déterminé du champ (dans la direction de détection), la position ϵ^+ de l'analyseur circulaire parfait permettrait la mesure de l'intensité I_{σ^+} émise par les atomes dans le sous-niveau Zeeman $m = +1$. En raison des imperfections du montage, le signal I_+ détecté comporte un mélange des intensités I_{σ^+} émise à la fréquence $k_0 + \omega$, I_{σ^-} émise à la fréquence $k_0 - \omega$ et I_0 incluant l'ensemble des

contributions parasites comme la lumière résiduelle de polarisation π , la lumière parasite provenant de la lampe ou de la pièce. On peut donc écrire en première approximation pour le sens du champ parallèle à la direction fixe de détection :

$$I_{\varepsilon^+} = a I_{\sigma^+} + b I_{\sigma^-} + c I_0$$

$$I_{\varepsilon^-} = a I_{\sigma^-} + b I_{\sigma^+} + c I_0$$

Les termes correctifs b et c étant supposés petits, on obtient :

$$R = I_{\sigma^-}/I_{\sigma^+} \approx R_M \left\{ 1 + \frac{b}{a} \left(R_M - \frac{1}{R_M} \right) + \frac{c}{a} I_0 \left(\frac{1}{I_{\sigma^+}} - \frac{1}{I_{\sigma^-}} \right) \right\}$$

Les paramètres nécessaires à l'obtention de R à partir de la valeur

$R_M = I_{\varepsilon^-}/I_{\varepsilon^+}$ mesurée sont donc b/a , cI_0/a .

La détermination des termes correctifs précédents a été effectuée par balayage magnétique avec un filtre à Mercure 199 placé en champ nul devant le photomultiplicateur. Le principe de la méthode est analogue à celui que l'on a décrit dans le § I-C.

Pour une position ε^\pm déterminée de l'analyseur circulaire et un sens du champ dont on fait varier l'intensité de 0 à 10 kG, on observe deux formes d'absorption autour de 3,4 kG et 7,5 kG. Elles correspondent respectivement à l'absorption des photons émis par les atomes dans les sous-niveaux $m = +1$ et $m = -1$ par les composantes hyperfines $F = 3/2$ et $F = 1/2$ de l'isotope Hg^{199} contenu dans le filtre. Le rapport des profondeurs d'absorption donne alors directement la valeur de b/a , tandis que cI_0/a peut être estimé en remarquant qu'il correspond à la partie du signal non absorbé. On a en réalité utilisé le croisement en champ fort pour effectuer ces mesures. L'inversion du sens du champ permet alors de déterminer b/a et cI_0/a . Il est raisonnable de supposer en outre que $I_{\sigma^-} \cdot I_{\sigma^+}$ varie peu avec le champ. On peut alors mettre le rapport R sous la forme approximative suivante :

$$R = I_{\sigma^-}/I_{\sigma^+} = R_M \left\{ 1 + \frac{b}{a} \left(R_M - \frac{1}{R_M} \right) + \eta_1 \left(\sqrt{R_M} - \frac{1}{\sqrt{R_M}} \right) \right\}$$

Les valeurs de b/a et de η_1 pour les différentes expériences que nous avons réalisées sont données dans le tableau 2. La valeur b/a de l'imperfection de l'analyseur

circulaire est de l'ordre de 7%. En définitive, l'influence de ces corrections sur les variations de R en fonction du champ sont peu importantes.

3-3-4-Effets parasites

Les conditions dans lesquelles ont été réalisées les expériences ne nous ont pas permis d'effectuer toutes les vérifications désirables. En particulier, nous n'avons pu réaliser de tests directs permettant d'établir avec certitude l'absence d'effets parasites provenant de la magnéto-rotation ou de biréfringences magnétiques dans la silice fondue des cellules, des fibres, de la lame quart d'onde ou dans le film polariseur. Nous rappelons brièvement la nature des effets possibles et les effets parasites que nous avons observés.

- *Effet Faraday*

Il intervient dans la direction du champ. Son seul objet doit être de provoquer une rotation supplémentaire des composantes de polarisation σ^+ et σ^- . Il ne semble donc pas devoir modifier les caractéristiques de la lumière détectée. Cependant, les imperfections du système de détection, ou l'existence d'une composante parasite de polarisation rectiligne dans la lumière de fluorescence pourraient modifier ces conclusions. Notons également qu'il n'existe aucune étude expérimentale du comportement de la silice fondue dans des champs de 200 kG et que l'extrapolation des mesures de rotation Faraday effectuées en champ faible (≈ 20 kG) montre que la rotation du plan de polarisation provoquée par une lame de silice fondue de 1 mm d'épaisseur est à 200 kG de 36° (KHALILOV et al. - 1975)

- *Biréfringences magnétiques (effet Cotton)*

Ces effets doivent intervenir éventuellement dans la direction perpendiculaire au champ. Les études effectuées aux § I-C et II-C-2 dans des champs de 80 kG n'ont pas permis la mise en évidence de comportements révélant l'existence de ces effets dans la limite de la précision des résultats expérimentaux. Cependant, ceci ne prouve pas que ces effets soient encore négligeables dans des champs de 200 kG puisqu'ils sont quadratiques en champ.

- *Effets parasites observés lors de la mesure du rapport des intensités circulaires de fluorescence et tentative d'interprétation.*

Les mesures effectuées sur les intensités circulaires de fluorescence pour les deux sens du champ magnétique ont fait apparaître un effet systématique que l'on peut attribuer probablement à des effets de magnétorotation. Il existe en champ faible une différence de quelques pour cent entre les valeurs $R_M(\uparrow)$ et $R_M(\downarrow)$ des rapports des intensités de fluorescence mesurées pour les deux sens du champ magnétique. Lorsque la valeur du champ augmente, la différence entre les valeurs mesurées décroît de façon générale (cf. FIG 8). Cet effet existe à des degrés divers pour les différentes cellules utilisées. Il est extrêmement faible dans certains cas (Argon) et plus important dans d'autres (Néon).

L'existence d'une composante parasite de polarisation rectiligne dans la lumière de fluorescence circulaire détectée dans la direction du champ permettrait d'expliquer les valeurs différentes de $R_M(\uparrow)$ et $R_M(\downarrow)$ en champ nul. La montée en champ provoque alors la rotation de cette composante par effet Faraday dans la silice fondue des cellules ou le support de la lame $5\lambda/4$. Selon le sens du champ magnétique, la rotation de la composante linéaire parasite se fera en sens contraires. L'expression $(R_M(\uparrow) - R_M(\downarrow))$ variera donc avec la valeur du champ.

L'effet disparaît presque totalement lorsque l'on travaille à plus haute densité de Mercure ($N \approx 10^{13}$ at/cm³). Nous pensons donc qu'il est dû essentiellement à la lumière parasite de la lampe qui peut atteindre quelques pour cents des signaux σ^+ et σ^- de fluorescence à basse température et qui peut présenter une polarisation sensiblement rectiligne. Ceci permettrait d'expliquer que l'effet disparaisse à haute densité de Mercure où les signaux I_{σ^+} et I_{σ^-} sont beaucoup plus grands et le poids relatif de la lumière parasite négligeable.

Quelle que soit l'origine de l'effet parasite que nous venons de décrire, il faut noter en définitive que les variations de $I_{\sigma^-}/I_{\sigma^+}$ avec le champ restent qualitativement inchangées pour les deux sens du champ (cf. FIG 8 par exemple). L'existence de cet effet parasite ne saurait donc être d'une incidence cruciale pour l'interprétation des variations de $I_{\sigma^-}/I_{\sigma^+}$ avec le champ que l'on donnera au § 3-5.

Nous avons considéré qu'il suffisait de faire la moyenne arithmétique des rapports mesurés dans les deux sens du champ pour en éliminer l'effet parasite précédent ce qui se conçoit bien dans la mesure où il reste petit (l'utilisation de la moyenne géométrique conduit à des valeurs en excellent accord avec les précédentes). Les corrections des imperfections de l'analyseur circulaire décrites au § 3-3 ont été ensuite appliquées aux valeurs moyennées.

● *Echauffement des bobines de Bitter*

En fonctionnement au champ maximum, il n'est pas rare que la température de l'eau de refroidissement des bobines atteigne 50°C. Il en résulte une augmentation de la température du conduit interne. La tête de la cellule n'étant pas thermostatée pour des raisons évidentes d'encombrement il existe à ce niveau des variations de la température de l'ordre de 20°C dans les conditions les plus défavorables. Ceci est extrêmement gênant pour la mesure du rapport I_{σ} / I_{π} des intensités de fluorescence dans la direction perpendiculaire au champ car la modification de la température provoque une fluctuation importante des intensités et accroît la dispersion de leur rapport. Dans la mesure où une variation de la température de la tête de la cellule ne saurait entraîner de grandes modifications de la densité de Mercure nous pensons que ces fluctuations d'intensité pourraient provenir de la désorption d'atomes de Mercure piégés dans les parois de silice fondue.

En pratique, les effets précédents peuvent être à l'origine d'erreurs dans la détermination du rapport I_{σ} / I_{π} . Ils sont particulièrement sensibles avec la bobine 5 MW (130 kG) mais de moindre importance avec la bobine 10 MW de construction plus récente (système de refroidissement plus perfectionné). On a pu s'affranchir en grande partie de ces effets en travaillant rapidement pour chaque valeur du champ ce qui est possible en raison de la rapidité de la montée en champ et en utilisant la sortie perforatrice du système d'acquisition de données (75 caractères/seconde).

3-4-Résultats obtenus à basse densité de Mercure ($N \approx 10^{11}$ at/cm³)

Les résultats des expériences effectuées entre 0 et 200 kG à des températures comprises entre -30°C et -34°C correspondant à des densités de 10^{11} at/cm³ sont rapportés dans ce paragraphe. Les résultats sont corrigés des imperfections diverses mentionnées au § 3-3.

3-4-1-Variations avec le champ du rapport I_{σ} / I_{π} des intensités de fluorescence.

Les résultats obtenus avec la bobine 10 MW du S.N.C.I. sont présentés sur la FIG 9. Les valeurs du rapport $\rho = I_{\sigma} / I_{\pi}$ sont normalisées à la valeur moyenne expérimentale pour des champs inférieurs à 10 kG. Des séries analogues

ont été obtenues pour les différents gaz rares avec la bobine 5 MW (130 kG) mais les points présentent une dispersion plus importante en raison des fluctuations de température dont nous avons mentionné l'existence au § 3-3.

Les résultats obtenus dans le cas de l'Hélium ne sont pas présentés. Les points expérimentaux présentent en effet une dispersion importante. Les valeurs obtenues en fonction du champ sont comprises dans un intervalle $\pm 5\%$ autour de la valeur 1. Il est impossible de conclure s'il existe dans ce cas des variations significatives.

Dans le cas du Xénon, on a utilisé deux cellules contenant des pressions très voisines, de l'ordre de 0,3 torr.

La figure 9 permet de mettre en évidence le comportement extrêmement différent avec le champ magnétique des taux de transfert par collision selon la nature du gaz rare perturbateur. Ceci confirme les conclusions de l'étude entre 0 et 80 kG rapportée au §2. Dans le cas des gaz rares lourds (Xe, Kr) le rapport $I_{\sigma^-}/I_{\sigma^+}$ décroît en fonction du champ. Il reste stationnaire dans le cas de l'Argon et croît légèrement dans le cas du Néon.

3-4-2-Variations avec le champ de $I_{\sigma^-}/I_{\sigma^+}$

Les résultats corrigés selon la méthode indiquée au § 3-3 sont donnés sur la figure 10.

Le comportement en fonction du champ magnétique est extrêmement différent selon la nature du gaz rare perturbateur. Dans le cas des gaz rares lourds (Xe, Kr), le rapport atteint une valeur minimum inférieure à 1 pour des champs de l'ordre de 50 kG. Il croît ensuite de manière plus ou moins rapide selon qu'il s'agit des résultats relatifs au Krypton ou au Xénon. Au contraire, pour les gaz rares légers (He, Ne), le rapport $I_{\sigma^-}/I_{\sigma^+}$ est toujours plus grand que 1 et croît très rapidement en fonction du champ.

Le cas de l'Argon est intermédiaire entre les deux types de comportements précédents. Le rapport $I_{\sigma^-}/I_{\sigma^+}$ est stationnaire jusqu'à 60 kG. Il croît ensuite rapidement à la manière des gaz rares légers.

Des résultats en accord avec ceux de la figure 10 ont été obtenus avec la bobine 5 MW (130 kG) du S.N.C.I.

On peut d'ores et déjà remarquer que quelle que soit la nature du gaz rare, le rapport $I_{\sigma^-}/I_{\sigma^+}$ ne vaut ni 1, ni $e^{\hbar\omega/kT}$ ou $e^{2\hbar\omega/kT}$ (courbes en pointillé).

3-5-Résultats obtenus à haute densité de Mercure ($N \approx 3.10^{13}$ at/cm³).

Dans le cas où la température du queusot des cellules est de l'ordre de 15°C la densité d'atomes de Mercure est environ 3.10^{13} /cm³. L'étude a été effectuée dans le cas de la lumière de fluorescence de polarisation circulaire. Quelle que soit la nature du gaz rare considéré, les points obtenus s'alignent sensiblement sur la courbe $e^{2\hbar\omega/kT}$. (cf. FIG 11). On peut donc conclure que dans ces conditions, l'état excité des atomes est thermalisé (cf. § 6).

4 - COMPARAISON DES RESULTATS DES DEUX SERIES D'EXPERIENCES

QUELQUES ORDRES DE GRANDEUR THEORIQUES

Avant d'analyser les résultats expérimentaux obtenus, nous allons commenter brièvement la cohérence des deux séries d'expériences et effectuer quelques rappels théoriques qui seront utiles pour la compréhension du § 5.

4-1-Comparaison des résultats des deux séries d'expériences.

Les valeurs de $\eta = \rho(H)/\rho(0)$ obtenues à 60kG dans les expériences des § 2 et 3 ne sont pas totalement en accord. Il semble de manière générale que la décroissance observée pour le Xénon et le Krypton avec la bobine supraconductrice soit à 60 kG plus importante d'environ 0,02 (cf. FIG 1 dans le cas du Xénon). On doit cependant remarquer que les expériences réalisées avec les bobines de Bitter ont été faites dans des conditions relativement difficiles qui n'ont pas permis une détermination précise de tous les facteurs correctifs tels par exemple la lumière parasite provenant de la lampe et la valeur α de l'imperfection du polariseur. Il n'est donc pas exclu que ceci puisse expliquer le léger désaccord constaté encore que celui-ci reste de l'ordre de grandeur de la dispersion des points expérimentaux dans les deux séries d'expériences.

4-2-Valeurs des paramètres théoriques

Pour comparer qualitativement les résultats expérimentaux et les prévisions théoriques du § II-B obtenues dans le cas d'un potentiel variant en R^{-6} avec la distance, on doit déterminer la valeur de la force p de l'interaction

pour chacun des gaz rares. Le principe d'une méthode de détermination possible est décrit dans le § II-B-7. Elle consiste à admettre que les résultats expérimentaux obtenus en champ nul pour les différents gaz rares peuvent être interprétés à l'aide d'un potentiel de Van der Waals en R^{-6} . Cette hypothèse est assez bien vérifiée pour les gaz rares lourds, tandis que pour les gaz rares légers elle est probablement dénuée de signification puisque le potentiel ne varie pas en R^{-6} avec la distance.

La détermination de p ayant été effectuée à partir des résultats expérimentaux de BARRAT et al (1966) et FAROUX (1969), on peut déduire les valeurs de la fréquence caractéristique ω_c et du champ critique B_c pour chacun des gaz rares. Ces valeurs ainsi que les valeurs expérimentales des sections efficaces et des taux de relaxation de l'alignement et de l'orientation sont rappelées dans le tableau 3. On détermine ainsi pour chaque gaz rare la relation entre le champ magnétique et le paramètre τ défini dans la partie II-B.

4-3-Forme du potentiel et signe de la partie anisotrope

On peut faire quelques remarques concernant le signe de l'anisotropie du potentiel dans l'hypothèse où il provient de l'interaction dipôle-dipôle au second ordre, à longue distance (FAROUX-1969). Son expression, pour un terme spectral (LS) déterminé est, \vec{u} désignant la direction de l'axe internucléaire :

$$LL_V = \frac{1}{R^6} (a LL_{T_0}^0 + b LL_{T_u}^2)$$

Dans le cas de la configuration (6s,6p) du Mercure, les champs magnétiques utilisés ne provoquent pas de découplage notable de la structure fine (cf. Appendice 2). La projection de l'opérateur LL_V sur un niveau $^{2S+1}L_J$ produit donc en ce qui concerne la partie anisotrope un terme de la forme :

$$\langle L S J \parallel LL_T^2 \parallel L S J \rangle = (-)^{J+L+S} (2J+1) \begin{Bmatrix} L & 2 & L \\ J & S & J \end{Bmatrix} \langle L \parallel LL_T^2 \parallel L \rangle$$

Pour la même valeur de J , pour des valeurs de L et S différentes, le signe de l'anisotropie du potentiel effectif peut être différent. Dans le cas des niveaux 1P_1 et 3P_1 du Mercure, on a par exemple :

$$\begin{aligned}
 {}^1P_1 & \quad \langle 101 \parallel LL_T^2 \parallel 101 \rangle = \langle L \parallel LL_T^2 \parallel L \rangle = \sqrt{5} \\
 {}^3P_1 & \quad \langle 111 \parallel LL_T^2 \parallel 111 \rangle = -\frac{1}{2} \langle L \parallel LL_T^2 \parallel L \rangle = -\frac{\sqrt{5}}{2}
 \end{aligned}$$

L'expression à longue distance du potentiel pour le niveau 6^3P_1 se met sous la forme (cf. § II-B) :

$$V({}^3P_1) = \frac{A}{R^6} J^2 + \frac{p}{R^6} \left(J_u^2 - \frac{J^2}{3} \right)$$

où A et p sont négatifs. Les niveaux d'énergie de la quasi-molécule $Hg^*(6^3P_1)$ -gaz rare constituée au cours de la collision sont donc tels que l'énergie des états Π soit plus petite que l'énergie de l'état Σ à longue distance. Avec les conventions de la partie II-B cela correspond au cas (-).

Bien que la situation soit beaucoup moins claire dans le cas des forces d'échange et du potentiel répulsif à courte distance, on peut qualitativement faire un raisonnement analogue. Pour un état de moment orbital nul ($m_L = 0$) en projection sur l'axe internucléaire \vec{u} , la densité électronique est allongée sur l'axe. Le potentiel d'échange sera donc plus grand que pour les états $|m_L| = 1$. La projection sur un état 3P_1 ($L=1, S=1, J=1$) change de sens l'effet précédent. A courte distance, l'énergie de l'état Σ ($|m_J| = 0$) est donc plus petite que l'énergie des états Π (avec les conventions du § II-B, on est dans le cas +).

Par conséquent les positions relatives des états Σ et Π sont différentes selon que l'on se trouve dans la région à courte distance ou à longue distance du potentiel. Nous donnons sur la figure 12 la disposition probable des courbes de potentiel pour le niveau 6^3P_1 du Mercure selon FAROUX (1969).

4-4-Découplage de \vec{L} et \vec{S} sous l'effet du champ

Remarquons enfin que la structure fine du Mercure est grande et que pour des champs inférieurs à 200 kG, \vec{L} et \vec{S} restent couplés à une excellente approximation. L'écart à l'effet Zeeman linéaire reste très faible pour les niveaux $M = \pm 1$ (cf. Appendice 2) et totalement négligeable dans nos expériences. Les modifications de la durée de vie des sous-niveaux Zeeman $M = \pm 1$ résultant de la modification du mélange avec la fonction d'onde du niveau 1P_1 sous l'effet du champ sont en valeur relative de $6 \cdot 10^{-4}$ à 200 kG. Cet effet reste donc négligeable dans nos expériences et ne peut en compliquer l'interprétation.

5 - ANALYSE DES RESULTATS A BASSE TEMPERATURE

Aux températures de -30°C auxquelles les expériences ont été effectuées les effets de la diffusion multiple du rayonnement de résonance sont négligeables. Les temps d'emprisonnement des photons σ et π dans la vapeur sont donc très voisins de la durée de vie de l'atome isolé. La pression de gaz rare dans les cellules a été choisie en général de telle sorte que g/Γ soit petit devant 1 mais assez grand pour assurer un taux de transfert convenable. Les termes de retour par collision peuvent en première approximation être négligés. Les populations transférées par collisions dans les sous-niveaux Zeeman $m = \pm 1$ sont presque proportionnelles aux taux $g^{(11)(00)}$ et $g^{(-1-1)(00)}$ de transfert.

L'expression approchée du rapport des diverses quantités mesurées est donc :

$$I_{\sigma}/I_{\pi} = (g^{(-1-1)(00)} + g^{(11)(00)})/2\Gamma$$

$$I_{\sigma-}/I_{\sigma+} = g^{(-1-1)(00)}/g^{(11)(00)}$$

5-1-Influence de la correction des termes de retour par collision

Nous discuterons cet aspect très brièvement dans la mesure où il affecte peu les comparaisons essentiellement qualitatives que nous envisageons dans la suite.

Les expressions complètes des intensités de fluorescence I_{σ} , I_{π} , $I_{\sigma-}$, $I_{\sigma+}$ en fonction des différents paramètres physiques intervenant dans le problème sont données dans l'appendice 1. Dans la mesure où la plupart des paramètres intervenant dans ces expressions ne sont pas connus expérimentalement, il n'est pas possible d'effectuer des corrections rigoureuses. Nous nous bornerons donc à des estimations de l'effet des termes de retour par collision.

* Polarisation rectilignes I_{σ}/I_{π}

On admet pour discuter ce point que les taux de transfert vérifient approximativement la relation $g^{(mm)(pp)} \approx g^{(-m-m)(-p-p)}$. Cette hypothèse n'est cependant pas bien vérifiée pour tous les gaz rares (cf. § 6-3). L'expression du rapport des intensités de fluorescence vaut alors :

$$\rho(H) = I_{\sigma^-} / I_{\pi} = g / (\Gamma + g)$$

avec

$$g^{(11)(00)} \approx g^{(-1-1)(00)} = g$$

L'expression mesurée est alors $\eta(H)$ qui s'exprime par :

$$\eta(H) = \rho(H) / \rho(0) = \frac{g(H)}{g(0)} \frac{\Gamma + g(0)}{\Gamma + g(H)}$$

On cherche à déterminer la quantité $\eta_0(H)$ telle que :

$$\eta_0(H) = g(H) / g(0)$$

Dans les conditions où l'on a réalisé les expériences, $g(0)/\Gamma$ vaut typiquement 0,25. L'effet de la correction des termes de retour par collision vaut donc :

$$\frac{\eta_0(H) - \eta(H)}{\eta(H)} = \frac{g(0)}{\Gamma} (\eta(H) - 1)$$

L'absence de correction minore de 0,04 les variations observées dans le cas du Xénon et de 0,01 dans le cas du Néon pour la valeur 200 kG du champ magnétique. Les effets possibles sont donc petits. La méthode la plus simple pour effectuer la correction est d'assimiler les courbes expérimentales à des droites. On en déduit la valeur de $\eta_0(H)$ pour les différents gaz rares (cf. FIG 9). La correction étant en général petite et ne modifiant pas sensiblement l'accord avec les résultats théoriques, nous en négligerons l'effet dans la suite.

★ *Polarisations circulaires* $I_{\sigma^-} / I_{\sigma^+}$

L'expression du rapport $I_{\sigma^-} / I_{\sigma^+}$ peut se mettre sous la forme :

$$I_{\sigma^-} / I_{\sigma^+} = \frac{g^{(-1-1)(00)}}{g^{(11)(00)}} \left(1 + \frac{G}{\Gamma} \right)$$

avec lorsque les taux de transfert sont petits devant Γ :

$$G \approx \left(g^{01} - g^{0-1} + g^{-11} - g^{1-1} + \frac{g^{-11} g^{10}}{g^{-10}} - \frac{g^{1-1} g^{-10}}{g^{10}} \right)$$

Lorsque le champ est nul, la relaxation est isotrope et $G = 0$. Les différents paramètres intervenant dans l'expression de G ne sont pas connus en champ non nul.

L'interprétation fine des résultats exige donc la mesure de tous les coefficients de transfert en excitant séparément les trois sous-niveaux Zeeman de l'état excité ce qui n'est pas réalisable actuellement dans le cas du Mercure. Cependant, dans la mesure où l'expression de G fait intervenir la différence des taux de transfert, il est clair à priori que la correction à effectuer est petite. Une évaluation peut être faite en utilisant la méthode de symétrisation exposée au § II-B. Il en résulte que les corrections sont au maximum de 8% à 200 kG et de 2% à 50 kG, en valeur relative. Elles ne peuvent donc modifier de manière importante les comportements observés en fonction du champ magnétique.

5-2-Interprétation des variations de I_{σ}/I_{π} avec le champ.

• Prévisions théoriques

Les courbes théoriques obtenues dans le cadre de la théorie développée au § II-B, avec un potentiel variant en R^{-6} avec la distance et l'approximation de trajectoire rectiligne pour traiter la collision sont reportées pour l'Argon, le Krypton et le Xénon sur la figure 13. La mesure ^{de} I_{σ}/I_{π} permettant de détecter approximativement la moyenne des taux de transfert de $m = 0$ vers $m = \pm 1$, nous avons porté sur cette figure l'expression $(g^{(11)(00)}_{+g} g^{(-1-1)(00)})$ normalisée à la valeur en champ nul pour les différents gaz rares. La moyenne des résultats théoriques sur la vitesse des atomes n'est pas effectuée. On peut en estimer les effets en assimilant les variations théoriques en fonction de τ à une droite. Dans le cas du Xénon, à 200 kG, on trouve alors que la courbe théorique de la figure 13 surestime la décroissance de 0,07. De manière générale, l'effet de la moyenne sur les vitesses sera une décroissance plus rapide pour les petites valeurs du champ ($\tau < 1$) et une décroissance plus lente aux grandes valeurs du champ. L'ordre de grandeur précédent constitue une borne supérieure des effets possibles. Les courbes théoriques obtenues pour les différents gaz rares se déduisent l'une de l'autre dans ce modèle par une affinité selon l'axe des champs, de rapport le rapport des champs critiques respectifs (cf. Tableau 3). Les prévisions théoriques pour l'Hélium et le Néon n'ont pas été reportées sur la figure 13 dans la mesure où les variations de la moyenne des taux de transfert sont faibles (champs critiques élevés) et où le modèle théorique est peu vraisemblable.

Remarquons enfin que les prévisions théoriques précédentes sont valables quel que soit le signe de la partie anisotrope du potentiel en R^{-6} adopté.

• *Comparaison aux résultats expérimentaux*

Les courbes expérimentales assimilées à des droites sont reportées sur la figure 13. Les résultats ne sont pas corrigés de l'effet des termes de retour par collision qui minorent dans le cas extrême du Xénon les variations réelles de 0,04 à 200 kG.

Dans le cas du Xénon et du Krypton, la moyenne des taux de transfert par collision de $m = 0$ vers $m = \pm 1$, décroît avec la valeur du champ. Bien que les variations observées expérimentalement soient importantes, elles restent de toute façon très inférieures à celles que prévoit la théorie du § II-B (cf. également figure 1 dans le cas du Xénon). Les ordres de grandeur donnés précédemment permettent de plus d'affirmer que bien que les corrections diverses que nous n'avons pas effectuées (termes de retour, moyenne sur les vitesses) permettent d'améliorer l'accord elles n'expliquent pas la totalité de la différence entre les valeurs théoriques et expérimentales à 200 kG. Il semble donc que pour les gaz rares lourds (Xe, Kr), il faille admettre que les hypothèses de potentiel variant en R^{-6} avec la distance et de trajectoires rectilignes sont insuffisantes pour interpréter les variations des taux de transfert avec le champ. Les variations observées beaucoup plus lentes que celles prévues peuvent être l'indice soit d'une contribution non négligeable de la partie répulsive du potentiel, soit d'hypothèses incorrectes dans le modèle (trajectoires en particulier).

Dans le cas de l'Argon, il n'existe pas de variations notables en fonction du champ. Ceci est en désaccord total avec les prévisions que l'on peut faire avec le modèle précédent (cf. figure 13). En raison de la plus grande vitesse relative des atomes dans les collisions Hg^*-A , le transfert s'effectue dans des régions des courbes de potentiel où les atomes sont plus proches que dans les collisions Hg^*-Xe ou Hg^*-Kr . Dans la mesure où les prévisions du modèle théorique ne paraissent pas totalement en accord avec les résultats expérimentaux pour ces deux gaz, il n'est pas surprenant qu'elles soient encore plus en défaut dans le cas de l'Argon pour lequel le potentiel répulsif doit jouer un rôle important entraînant des déviations non négligeables dans la trajectoire. On peut donc conclure que pour l'Argon, l'hypothèse d'un potentiel en R^{-6} prépondérant est à exclure ainsi d'ailleurs que la plupart des hypothèses ou approximations employées dans notre modèle.

Dans le cas des gaz rares légers (He, Ne), il est bien connu (FAROUX 1969) que la région importante du potentiel est la région répulsive et que la

courbure de la trajectoire pendant la collision joue un rôle important. Les faibles variations constatées montrent que la valeur du champ critique est très élevée ce qui se conçoit bien car la vitesse relative est grande et le temps de collision court. Il faudra donc des champs très élevés pour faire varier les taux de transfert par collision. Cependant, les faibles variations en fonction du champ de $(g^{(11)(00)} + g^{(-1-1)(00)})$ masquent comme nous le verrons au § 5-3 d'importantes variations de chacun des coefficients séparément.

La croissance avec le champ, observée dans le cas du Néon sur les figures 9 et 13 paraît surprenante si on l'analyse en termes de potentiel à longue distance dans l'approximation d'impact à trajectoires rectilignes. Elle l'est beaucoup moins si l'on admet que les phénomènes réels ont lieu à courte distance et sont donc susceptibles de faire intervenir des distributions des courbes de potentiel beaucoup plus compliquées que celles dont on a l'habitude à longue distance. Il n'est pas non plus possible de négliger dans ce cas l'influence de la courbure de la trajectoire sur le comportement en fonction du champ.

• Conclusions

Pour les gaz rares les plus lourds (Xe, Kr) la moyenne des taux de transfert de $m = 0$ vers $m = \pm 1$ décroît avec le champ de 10 à 20% entre 0 et 200 kG. Bien que les résultats expérimentaux comportent une certaine incertitude, les variations observées sont plus faibles que celles prévues avec le modèle de la partie II-B. L'examen des résultats précédents nous conduit donc à admettre que la contribution du potentiel répulsif et les effets liés à la courbure de la trajectoire ne sont pas négligeables même dans le cas des gaz rares lourds.

L'absence de variations observées dans le cas de l'Argon confirme cette analyse. Le comportement est tout à fait analogue à celui des gaz légers (He - Ne) et en désaccord total avec les prévisions du modèle du § II-B.

Nous allons voir, cependant, que les variations peu importantes observées dans le cas des gaz légers pour $(g^{(11)(00)} + g^{(-1-1)(00)})$ masquent en réalité des variations importantes des taux de transfert séparément.

5-3-Interprétation des variations de $I_{\sigma-}/I_{\sigma+}$ avec le champ.

Le rapport $I_{\sigma-}/I_{\sigma+}$ des intensités de fluorescence de polarisations circulaires est proportionnel au rapport $g^{(-1-1)(00)}/g^{(11)(00)}$ des taux de transfert

par collision (à des termes correctifs négligeables près).

★ *Prévisions théoriques*

Les prévisions théoriques obtenues avec un potentiel en R^{-6} et l'approximation de trajectoires rectilignes pendant la collision sont différentes selon le signe de la partie anisotrope du potentiel (cf. § II-B). Lorsque l'anisotropie du potentiel est de type (+) ce qui correspond au cas où les niveaux Π ont une énergie supérieure à celle du niveau Σ , le rapport $g^{(-1-1)(00)}/g^{(11)(00)}$ passe par un maximum supérieur à 1 et décroît ensuite aux grandes valeurs de τ . Lorsqu'au contraire l'anisotropie du potentiel est de type (-) ($E_{\Sigma} > E_{\Pi}$) le rapport $g^{(-1-1)(00)}/g^{(11)(00)}$ passe par un minimum en champ faible et croît ensuite jusqu'à des valeurs supérieures à 1. Dans le cas où le potentiel varie en R^{-6} avec la distance et dans la limite de validité des autres approximations utilisées, les valeurs du maximum ou du minimum obtenus sont respectivement 1,39 et 0,72. Lorsque les taux de transfert sont moyennés sur la vitesse relative des atomes, les valeurs du maximum et du minimum sont d'environ 1,18 et 0,85 pour un potentiel en R^{-6} . Ceci se conçoit bien puisque la moyenne sur les vitesses va tendre à atténuer la différence entre les taux de transfert $g^{(11)(00)}$ et $g^{(-1-1)(00)}$. Nous nous bornerons cependant dans cette étude à une comparaison des résultats expérimentaux et des résultats théoriques sans moyenne sur la vitesse dans la mesure où celle-ci exigerait pour être faite de manière soignée la connaissance des valeurs des taux de transfert pour les valeurs de τ supérieures à 5.

Les prévisions précédentes vont permettre de vérifier qu'en présence d'un champ magnétique intense, la relaxation est anisotrope ce qui se traduit par des taux de transfert différents entre les sous-niveaux $m = 0$ et $m = \pm 1$, et de déterminer le signe de la partie anisotrope du potentiel dans les collisions $\text{Hg}(6^3P_1)$ -gaz rares.

★ *Comparaison aux résultats expérimentaux*

Les résultats expérimentaux et théoriques sont portés sur les figures 14 pour les différents gaz rares. Les résultats expérimentaux (cf. par exemple FIG 10) permettent à priori de constater que les comportements en fonction du champ pour les gaz rares légers et les gaz rares lourds sont extrêmement différents ce qui n'apparaît pas de manière frappante dans les variations avec le champ de

de I_{σ}/I_{π} (cf. FIG 9). Pour tous les gaz rares, il apparaît de plus que le rapport $g^{(-1-1)(00)}/g^{(11)(00)}$ est très différent des valeurs 1 ou $e^{\hbar\omega/kT}$ que l'on obtiendrait en supposant la relaxation isotrope ou par une symétrisation des résultats de la théorie semi-classique (cf. § II-B - Annexe 5). Ceci met donc en évidence l'anisotropie de la relaxation en champ magnétique intense.

Les courbes de la figure 14 permettent en outre la détermination expérimentale du signe de l'anisotropie du potentiel dans la région des courbes de potentiel qui intervient dans les collisions aux énergies thermiques du Mercure avec les différents gaz rares.

α) Cas des gaz rares lourds (Xénon, Krypton)

Les courbes théoriques portées dans la figure 14a sont obtenues dans l'hypothèse où la partie anisotrope du potentiel varie en R^{-6} avec la distance et a un signe tel que le niveau Σ ait une énergie supérieure à celle des niveaux Π . Ceci constitue dans le cas des collisions $Hg^*(6^3P_1)$ -gaz lourds l'hypothèse la plus logique (FAROUX-1969) dans la mesure où les collisions se produisent à longue distance (cf. § 4-3).

Les caractéristiques du minimum inférieur à 1 sont assez bien respectées en ce qui concerne la position. Il se produit pour une valeur du champ de l'ordre de 50 kG dans le cas du Xénon et de 60 kG dans le cas du Krypton. L'amplitude théorique du minimum n'est plus que de 0,15 lorsque l'on effectue la moyenne sur la vitesse relative des atomes. L'accord avec les courbes expérimentales de la figure 14a est donc quantitativement meilleur. Notons que l'emploi de la méthode de symétrisation décrite dans le § II-B Annexe 5 ne modifie l'amplitude du minimum théorique que de 1% environ.

Il semble donc que les hypothèses de potentiel variant en R^{-6} avec la distance avec une anisotropie telle que $E_{\Sigma} > E_{\Pi}$ et de force déterminée à partir des sections efficaces expérimentales en champ nul permettent au moins qualitativement l'interprétation du comportement de $g^{(-1-1)(00)}/g^{(11)(00)}$ en fonction du champ dans les collisions Hg^*-Xe et Hg^*-Kr . Cependant, l'amplitude du minimum théorique est plus importante que celle obtenue expérimentalement. De plus, l'hypothèse d'un potentiel en R^{-6} ne permet pas d'interpréter totalement les variations de I_{σ}/I_{π} en fonction du champ magnétique (cf. § 5-1). Il faut donc admettre que les effets de courbure de la trajectoire et plus probablement les

effets du potentiel répulsif à courte distance ne sont pas négligeables. Notons que le signe de l'anisotropie du potentiel à courte distance est opposé à celui de l'anisotropie du potentiel à longue distance. (cf. FIG 12). Il contribuera donc à la diminution de l'amplitude du minimum en créant une contribution de signe contraire à la précédente. Les amplitudes du minimum expérimental et les comportements en fonction du champ sont différents pour le Xénon et le Krypton. Il est possible que ceci puisse provenir de caractéristiques différentes des courbes de potentiel, mais il serait prématuré de conclure.

β) Cas de l'Argon

Dans le cas de l'Argon, on note la disparition du minimum traduisant pour les gaz rares plus lourds les effets du potentiel attractif en R^{-6} . Le comportement de $g^{(-1-1)(00)} / g^{(11)(00)}$ (cf. FIG 14b) est stationnaire pour les champs inférieurs à 60 kG. Il croît ensuite rapidement à la manière des gaz rares légers (cf. FIG 14c). Bien que toute conclusion définitive paraisse prématurée, il est tentant d'attribuer ce comportement au fait que l'anisotropie du potentiel dans la région des courbes de potentiel intervenant dans les collisions Hg^*-A aux énergies thermiques, n'a pas un signe bien déterminé. Cette région serait donc celle du croisement des courbes de potentiel des niveaux Σ et Π (cf. FIG 12), à relativement courte distance où l'approximation du potentiel en R^{-6} n'est pas valable. Ceci semble en accord avec les conclusions du § 5-1. En tout état de cause, les prévisions obtenues avec un potentiel en R^{-6} de type (+) ou de type (-) (cf. FIG 14b) ne sont pas en accord avec les résultats expérimentaux.

γ) Cas des gaz rares légers (Hélium, Néon)

On a reporté sur la figure 14c les courbes théoriques obtenues pour l'Hélium et le Néon dans le cas d'une anisotropie du potentiel de type (+) variant en R^{-6} avec la distance. Si de toute évidence les résultats expérimentaux ne peuvent être compatibles qu'avec une anisotropie du potentiel vérifiant $E_{\Sigma} < E_{\Pi}$, admettre qu'elle varie en R^{-6} avec la distance n'est pas réaliste. D'autres hypothèses du modèle du § II-B ne sont d'ailleurs probablement plus valables telle celle de trajectoires rectilignes. Dans la mesure où les collisions Hg^*-He ou Hg^*-Ne se produisent à courte distance, un modèle présentant quelque vraisemblance aurait exigé de traiter le problème avec par exemple un potentiel répulsif en R^{-12}

et la trajectoire classique. Il est cependant intéressant de comparer les variations prévues avec un potentiel répulsif en R^{-6} aux résultats expérimentaux dans la mesure où nous n'envisageons qu'une comparaison qualitative des différents comportements.

L'accord entre les comportements expérimentaux et théoriques est qualitativement bon. En particulier, le modèle permet de prévoir que la croissance de $g^{(-1-1)(00)} / g^{(11)(00)}$ dans le cas de l'Hélium est beaucoup moins rapide que celle observée dans le cas du Néon. Ceci se comprend bien puisque la vitesse relative moyenne des atomes dans le cas des collisions Hg^*-He est plus grande que dans les collisions Hg^*-Ne . La condition $\omega \cdot T_c \approx 1$ sera donc réalisée dans le cas de l'Hélium pour des valeurs du champ plus élevées que pour le Néon. Notons également que le modèle théorique prévoit que $g^{(-1-1)(00)} / g^{(11)(00)}$ pour le Néon et l'Hélium passe par un maximum pour des valeurs du champ supérieures à 200 kG. Il serait donc très intéressant de pouvoir disposer de champs continus très supérieurs à 200 kG de manière à confirmer expérimentalement ce point.

Il semble donc qu'un potentiel présentant une anisotropie de type (+) ($E_{\Sigma} < E_{\Pi}$) permette qualitativement de tenir compte des variations expérimentales violentes de $g^{(-1-1)(00)} / g^{(11)(00)}$ dans le cas de l'Hélium et du Néon. Cela implique que la région répulsive à courte distance des courbes de potentiel joue un rôle essentiel dans les collisions Hg^*-He et Hg^*-Ne . Bien que nous n'envisagions pas une comparaison quantitative avec les prévisions théoriques en raison en particulier des variations peu réalistes en R^{-6} du potentiel, signalons que les variations de $g^{(-1-1)(00)} / g^{(11)(00)}$ avec le champ dans la figure 14c) seront plus lentes lorsque l'on utilise les résultats théoriques moyennés sur la vitesse et que la méthode de symétrisation décrite dans le § II-B - Annexe 5 conduit à affecter les résultats d'un facteur multiplicatif $e^{\hbar\omega/kT}$ qui augmentera au contraire des variations.

5-4-Conclusions

Malgré les limitations de notre modèle théorique (trajectoires rectilignes, variations avec la distance R peu réalistes dans le cas des gaz légers, absence de moyenne sur les vitesses), il permet d'interpréter très qualitativement les variations avec le champ du rapport $I_{\sigma-} / I_{\sigma+}$ proportionnel au rapport des taux de transfert de $m = 0$ vers $m = \pm 1$ pour les collisions du

Mercure avec les différents gaz rares. Bien qu'une interprétation "fine" des phénomènes ne soit pas possible actuellement et exigera le développement de modèles théoriques plus élaborés tenant compte des effets de trajectoire, avec divers types de potentiels, l'étude expérimentale que nous avons effectuée apporte un grand nombre d'informations nouvelles sur les potentiels interatomiques $\text{Hg}^*(6^3\text{P}_1)$ -gaz rares :

- La contribution du potentiel de Van der Waals en R^{-6} attractif est la contribution dominante dans le cas des collisions $\text{Hg}^*(6^3\text{P}_1)$ -Xe et $\text{Hg}^*(6^3\text{P}_1)$ -Kr. La comparaison théorie-expérience révèle d'autre part que les résultats expérimentaux ne peuvent probablement pas s'interpréter sans admettre que le potentiel répulsif a une contribution qui n'est pas totalement négligeable.
- La situation dans le cas de l'Argon est intermédiaire. L'absence de minimum dans les variations de $g^{(-1-1)(00)}/g^{(11)(00)}$ avec le champ est l'indice que la région des courbes de potentiel contribuant au transfert aux énergies thermiques ne possède pas une anisotropie de signe déterminé. Il est donc probable (cf. FIG 12) que la région des courbes de potentiel qui joue le rôle prépondérant dans les collisions $\text{Hg}^*(6^3\text{P}_1)$ -Argon est voisine du croisement des courbes de potentiel Σ et Π de la pseudo-molécule.
- Dans le cas de l'Hélium et du Néon, aux énergies thermiques ($T = 300^\circ\text{K}$), il est bien connu que la région importante des courbes de potentiel est la région répulsive. Ceci est confirmé par l'étude expérimentale que nous avons effectuée. En tous cas, le comportement du rapport $I_{\sigma^-}/I_{\sigma^+}$ pour les gaz légers est profondément différent du comportement obtenu dans le cas des gaz rares lourds. Il est en accord avec les prévisions obtenues avec un potentiel d'anisotropie de type (+) ($E_{\Pi} > E_{\Sigma}$). Il est cependant clair dans ce cas que notre modèle comporte des hypothèses non justifiées et que la situation réelle est très complexe. Dans ce contexte la croissance de I_{σ^-}/I_{Π} observée dans le cas du Néon n'est pas particulièrement surprenante.

6 - RÉSULTATS DES MESURES A TEMPERATURE AMBIANTE

L'expression des signaux obtenus à la limite où $\Gamma^\sigma \ll g$, c'est-à-dire à la limite où les termes de retour par collision sont très importants est donnée dans l'appendice 1. On peut prévoir ces résultats en remarquant que lorsque $\Gamma^\sigma \ll g$, les conditions de thermalisation du niveau excité pendant la durée de vie apparente sont quasiment réalisées. Quel que soit le sous-niveau Zeeman excité initialement, la population stationnaire des trois sous-niveaux est donnée indépendamment de la nature de l'interaction conduisant à l'équilibre par la loi de Boltzmann. Ceci est une conséquence de l'existence de la relation de bilan détaillé entre les coefficients de transfert (cf. §II-B - Annexe 4). Les populations des trois sous-niveaux Zeeman, à l'équilibre sont données par :

$$\begin{aligned} \rho_{+1} &\sim e^{-\hbar\omega/kT} \\ \rho_0 &\sim 1 \\ \rho_{-1} &\sim e^{\hbar\omega/kT} \end{aligned}$$

L'expression des rapports des intensités de fluorescence réémises à haute densité de mercure est alors :

$$I_\sigma / I_\pi = \lambda(N) \operatorname{ch}(\hbar\omega/kT) \quad I_{\sigma-} / I_{\sigma+} = e^{2\hbar\omega/kT}$$

où $\lambda(N)$ est un facteur qui dépend de la réabsorption du rayonnement de résonance (cf. § IV) valant dans les conditions précédentes de l'ordre de 2.

Le rapport I_σ / I_π dépend donc du champ au 2ème ordre tandis que pour les valeurs du champ inférieures à 200 kG utilisées, la croissance de $I_{\sigma-} / I_{\sigma+}$ en fonction du champ est sensiblement linéaire. A la limite des très fortes pressions, les termes correctifs liés à la nature de l'interaction sont négligeables.

Les résultats expérimentaux obtenus à haute température avec une cellule contenant du Xénon à la pression de 4 torr montrent que le rapport I_σ / I_π vaut sensiblement 2. Les variations de ce rapport avec le champ sont entre 0 et 80 kG extrêmement petites ce qui se conçoit bien puisque $\hbar\omega/kT < 3 \cdot 10^{-2}$ et $\operatorname{ch}(\hbar\omega/kT) \approx 1$ à 10^{-4} près. La valeur proche de 2 du rapport peut être interprétée à l'aide d'un modèle sur l'emprisonnement (cf. § IV). Nous n'avons pas cherché à effectuer de détermination précise de I_σ / I_π à haute température lors des expériences réalisées à Grenoble en raison des possibilités d'effets parasites provenant de l'inhomogénéité du champ (cf. § IV). Dans la mesure où $\hbar\omega/kT$ vaut au maximum

$7,5 \cdot 10^{-2}$, la variation du facteur $\text{ch}(\hbar\omega/kT)$ en fonction du champ est de l'ordre de $3 \cdot 10^{-3}$, donc totalement négligeable. Par contre les effets de l'inhomogénéité du champ sur l'emprisonnement de la composante σ ne le seront probablement plus (cf. § IV).

La situation est beaucoup plus intéressante dans le cas du rapport $I_{\sigma^-} / I_{\sigma^+}$ des intensités circulaires de fluorescence puisque dans la gamme de champ inférieure à 200 kG, on a sensiblement :

$$I_{\sigma^-} / I_{\sigma^+} = e^{2\hbar\omega/kT} \approx 1 + (2\hbar\omega/kT)$$

Le rapport croît donc linéairement en fonction du champ ce que l'on observe sur la figure 11, quelle que soit la nature du gaz rare. (cf. § 3-5) . On passe donc continûment en augmentant la densité du Mercure dans les cellules et donc les temps d'emprisonnement du comportement de la figure 10 très différent selon la nature du gaz rare et reflétant les caractéristiques des potentiels d'interaction au comportement de la figure 11 qui est indépendant de la nature du gaz rare et traduit l'établissement de l'équilibre thermodynamique local dans la vapeur (la correction liée à la finitude des temps d'emprisonnement $g/\Gamma^\sigma \neq 0$ fait apparaître sur la figure 11 un accord presque parfait). A une température intermédiaire ($T = -12^\circ\text{C} - N \approx 1,7 \cdot 10^{12} \text{ at/cm}^3$) pour une cellule à Xénon, l'amplitude du minimum observé à 50 kG n'est plus que de 2% environ. Un début de thermalisation de l'état excité est donc réalisé dans ces conditions.

L'ensemble de ces comportements et l'obtention à haute température de la limite thermodynamique permet en outre d'écarter l'éventualité d'erreurs systématiques importantes.

★●★●★●★●★●

- D -

CONCLUSIONS - EXTENSIONS POSSIBLES

1 - CONCLUSIONS SUR LES COLLISIONS $\text{Hg}^*(6^3\text{P}_1)$ - GAZ RARES

L'ensemble des expériences effectuées bien qu'on doive les considérer comme une étude préliminaire révèle les deux aspects importants de l'action d'un champ magnétique intense sur la relaxation par collisions en phase vapeur :

- Les taux de transfert dépendent de l'intensité du champ.
- La relaxation est anisotrope et les manifestations de l'anisotropie permettent de préciser le signe de la partie anisotrope du potentiel.

Nous avons ainsi pu déterminer expérimentalement la région des courbes de potentiel intervenant dans les collisions $\text{Hg}^*(6^3\text{P}_1)$ - gaz rares. De plus nous avons montré dans le cas des collisions avec les gaz rares lourds que la partie répulsive du potentiel avait probablement un effet non négligeable. Ceci expliquerait en particulier que les variations de I_{σ}/I_{π} avec le champ soient moins importantes que celles prévues avec un potentiel variant en R^{-6} à longue distance.

2 - EXTENSIONS

• Une étude beaucoup plus approfondie des collisions $\text{Hg}^*(6^3\text{P}_1)$ -Gaz rares en champ intense en fonction de divers paramètres physiques (pression du gaz rare, nature du gaz rare, densité du Mercure) est nécessaire. On peut envisager dans une première étape des études analogues à celles que nous venons de présenter en se bornant aux taux de transfert du sous-niveau Zeeman $m = 0$ vers $m = \pm 1$. Cependant il serait très important de pouvoir mesurer la dépendance en fonction

du champ de l'ensemble des taux de transfert par collision. Ceci permettrait de tester les symétries de la matrice de relaxation en présence d'un champ intense, et d'éventuelles comparaisons avec un modèle théorique beaucoup plus élaboré. Ceci suppose que l'on puisse exciter, en champ intense les sous-niveaux Zeeman $m = \pm 1$ et donc une source accordable continue.

• Un autre aspect des développements expérimentaux possibles serait l'utilisation conjointe de la technique précédente et des méthodes de variation de la température utilisées avec succès par FAROUX (1969). L'augmentation de la température de la tête de la cellule entraîne en effet une augmentation de la vitesse relative moyenne des atomes pendant la collision. Il en résulte que le transfert de l'excitation se produit dans des régions des courbes de potentiel déplacées vers la région répulsive. L'utilisation de cette technique dans le cas des gaz rares lourds doit permettre lors d'études analogues à celles que l'on vient d'exposer à $T = 300^\circ\text{K}$ de faire disparaître les minima observés sur la figure 14a et peut-être d'obtenir des comportements analogues à ceux des gaz rares légers. En définitive une très large comparaison entre la théorie et les expériences serait possible dans ce cas.

L'extension des études au cas d'autres perturbateurs à symétrie sphérique (CH_4 ou diverses autres molécules) ou sans symétries particulières (collisions atome-atome, atome-métastables) serait du plus grand intérêt. Les collisions $\text{Hg}^*(6^3\text{P}_1) - \text{Cd}$ et $\text{Hg}^*(6^3\text{P}_1) - \text{N}_2$ nous paraissent à priori des situations intéressantes bien que l'on puisse difficilement admettre dans ces cas que l'état du perturbateur reste inchangé après la collision.

Corrélativement il sera nécessaire de raffiner le modèle théorique en introduisant une partie répulsive dans l'expression du potentiel et en utilisant la trajectoire classique de préférence à la trajectoire rectiligne. Néanmoins il faut remarquer que le modèle théorique du § II-B malgré son caractère très approximatif permet de prévoir qualitativement les variations avec le champ dans les diverses situations expérimentales envisagées ce qui constitue un premier succès.

Dans le cas assez particulier de l'Argon, il serait intéressant de tenter d'interpréter le comportement observé en généralisant le traitement théorique asymptotique décrit dans l'annexe I de la partie II-B, au cas d'un potentiel de type Lennard-Jones. L'absence de variations de $g^{(-1-1)(00)} / g^{(11)(00)}$ entre 0

et 60 kG implique en effet qu'en champ faible, pour $T = 300^\circ\text{K}$, les paramètres de ce potentiel sont tels que le terme de couplage orientation-alignement est nul. On peut ainsi déterminer le poids relatif des parties répulsive et attractive du potentiel dans les collisions Mercure-Argon.

• L'extension des études au cas d'autres niveaux du Mercure, ou d'autres éléments serait elle aussi du plus grand intérêt.

Une étude semblable à la précédentes, des collisions $\text{Hg}^*(6^1\text{P}_1)$ -gaz rares nécessite des champs de l'ordre de grandeur de ceux utilisés pour le niveau 6^3P_1 puisque les sections efficaces pour les niveaux 6^3P_1 et 6^1P_1 avec les gaz rares sont du même ordre de grandeur (cf. § II-B-7). Cependant le signe de l'anisotropie du potentiel est opposé pour les deux niveaux (cf. § II-B et II-C-4). Dans le cas du niveau 6^1P_1 , le comportement de $I_{\sigma^-}/I_{\sigma^+}$ sera donc inverse de celui observé pour le niveau 6^3P_1 . En particulier $I_{\sigma^-}/I_{\sigma^+}$ pour les gaz rares lourds atteindra un maximum supérieur à 1. Cependant les études expérimentales sur le niveau 6^1P_1 sont difficiles en raison de la longueur d'onde (1850 Å) de la transition de résonance.

Par contre, une étude analogue pourrait être réalisée sur les niveaux $^1\text{P}_1$ et $^3\text{P}_1$ du Cadmium pour lequel les courbes de potentiel dans les collisions avec les gaz rares doivent être assez analogues à celles de Mercure-gaz rares.

• De manière plus générale, la méthode précédente est applicable pour les collisions thermiques quelles que soient les espèces en présence. Selon la valeur du moment cinétique de l'état excité considéré, et plus généralement des paramètres caractérisant la configuration d'où est issu le niveau, et la vitesse relative des atomes en présence, la situation expérimentale sera plus ou moins complexe. Dans le cas par exemple des collisions Sodium (3^2P_J)-gaz rares, la vitesse relative est grande. Il sera donc nécessaire de disposer de champs très intenses pour observer des variations des taux de transfert. La situation est de plus compliquée par le découplage de \vec{L} et \vec{S} sous l'action du champ (cf. § III). Il en résulte que les effets décrits dans la partie II-C sont sans doute masqués dans ce cas. C'est cependant une situation très intéressante dans la mesure où de nombreux travaux théoriques récents (BAYLIS 1969 - PASCALE et VAN DE PLANQUE-1974) ont permis d'obtenir une estimation précise des courbes de potentiel.

Des études analogues dans le cas des alcalins lourds sont possibles et probablement beaucoup moins compliquées à interpréter que dans le cas du Sodium car la structure fine est plus grande et le champ critique plus petit. Le découplage de \vec{L} et \vec{S} ne doit donc pas perturber les expériences dans la région où la section efficace varie.

Signalons également pour mémoire que la très grande polarisabilité des atomes dans des états très excités doit permettre des études du type précédent avec des champs magnétiques peu élevés et dans des conditions où l'approximation à longue distance des potentiels est valable.

L'ensemble de ces études expérimentales non limitatives pourra nécessiter le développement de méthodes quantiques pour traiter la collision et permettre de tenir compte de la conservation de l'énergie et d'inclure différents modèles de potentiel ou de courbes de potentiel calculées ab-initio.

Les expériences et prévisions théoriques précédentes ont permis de montrer que l'on pouvait obtenir par une méthode dans le principe très simple, un grand nombre d'informations sur les potentiels de collision tout en travaillant en phase vapeur. On surmonte ainsi, en détruisant par un champ extérieur appliqué au système l'isotropie de la relaxation, les inconvénients traditionnels des études en phase vapeur.

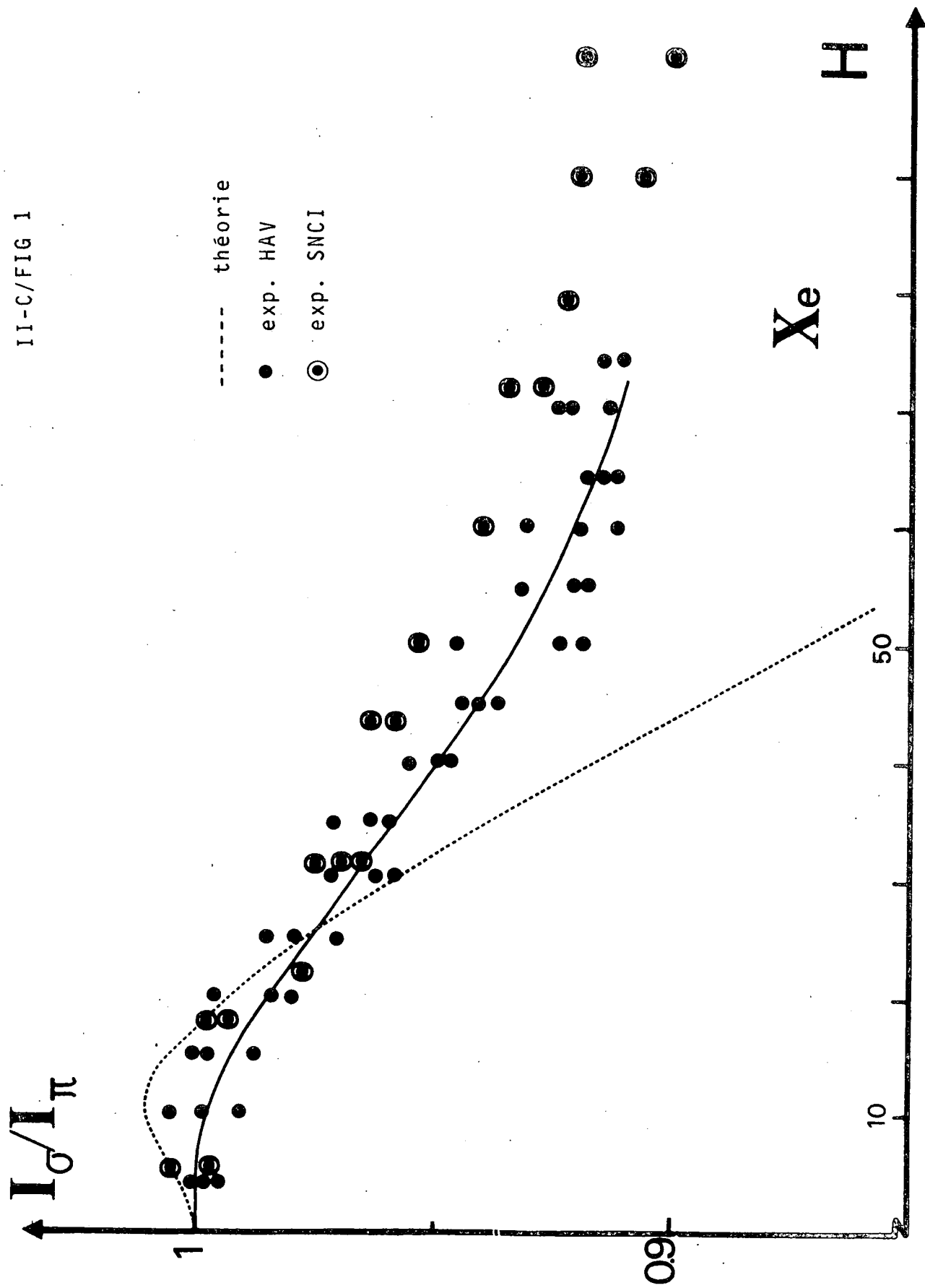
☆☆☆☆☆☆

LEGENDES DES FIGURES

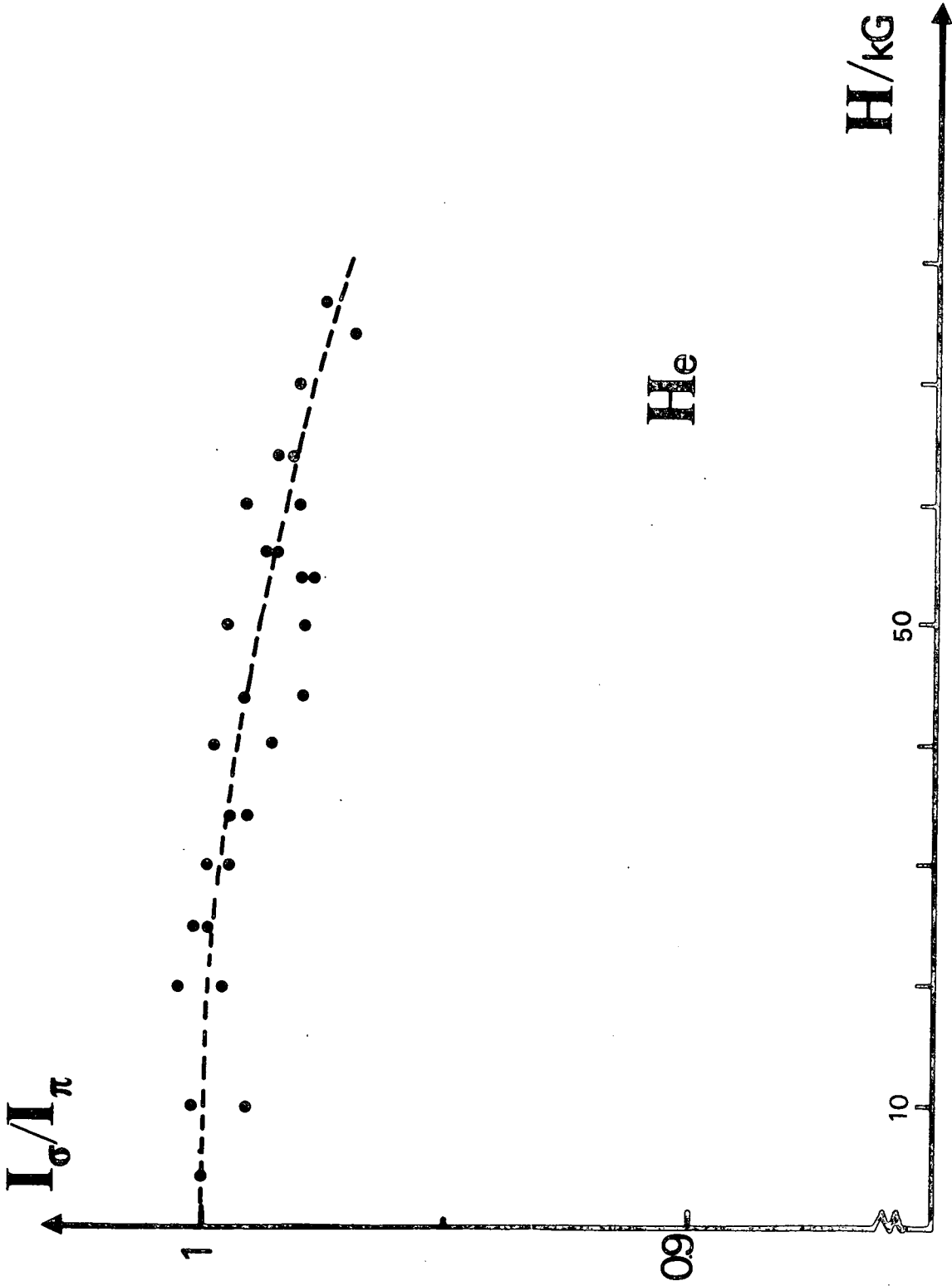
- II-C/FIG 1 - XENON - Résultats expérimentaux (normalisés à la valeur en champ nul) obtenus à $T = - 30^{\circ}\text{C}$, pour I_{σ}/I_{π} avec une cellule contenant une pression de Xénon de 0,3 Torr (●). On a reporté sur la figure les points obtenus lors des expériences réalisées à Grenoble avec des cellules contenant des pressions de Xénon comparables (⊙). La courbe en pointillé représente les résultats du modèle théorique du § II-B dans le cas du Xénon.
- II-C/FIG 2 - HELIUM - Résultats expérimentaux (normalisés à la valeur en champ nul), obtenus à $T = - 30^{\circ}\text{C}$ pour I_{σ}/I_{π} . $P_{\text{He}} \approx 0,1$ torr.
- II-C/FIG 3 - Variations relatives entre 0 et 60 kG du taux de transfert par collision pour l'Hélium, le Krypton et le Xénon. La température du queusot des cellules est de $- 30^{\circ}\text{C}$. Les valeurs de $\Delta g/g(0)$ ont été obtenues en fittant les points expérimentaux par une droite de moindres carrés. La méthode surestime de 1 à 2% les variations réelles.
- II-C/FIG 4 - Variation relative du rapport des intensités de fluorescence $\rho = i_{\sigma}/i_{\pi}$ entre 0 et 60 kG en fonction de la densité N de Mercure. La valeur de $\Delta\rho/\rho(0)$ est obtenue en admettant que les variations en fonction du champ de ρ pour chaque valeur de la densité peuvent être interprétées avec une droite de moindres carrés ce qui surestime $\Delta\rho/\rho(0)$ de 1 à 2%. Les résultats sont obtenus avec une cellule à KRYPTON ($p = 0,1$ torr).
- II-C/FIG 5 - Schéma de principe du montage
- II-C/FIG 6 - Schéma de principe de la disposition des éléments optiques et de la cellule.
- II-C/FIG 7 - Schéma de la bobine de Bitter 10 MW (200 kG) d'axe vertical (SNCI)
- II-C/FIG 8 - Variations de $I_{\sigma-}/I_{\sigma+}$ pour les deux sens du champ (KRYPTON $T = - 34^{\circ}\text{C}$).

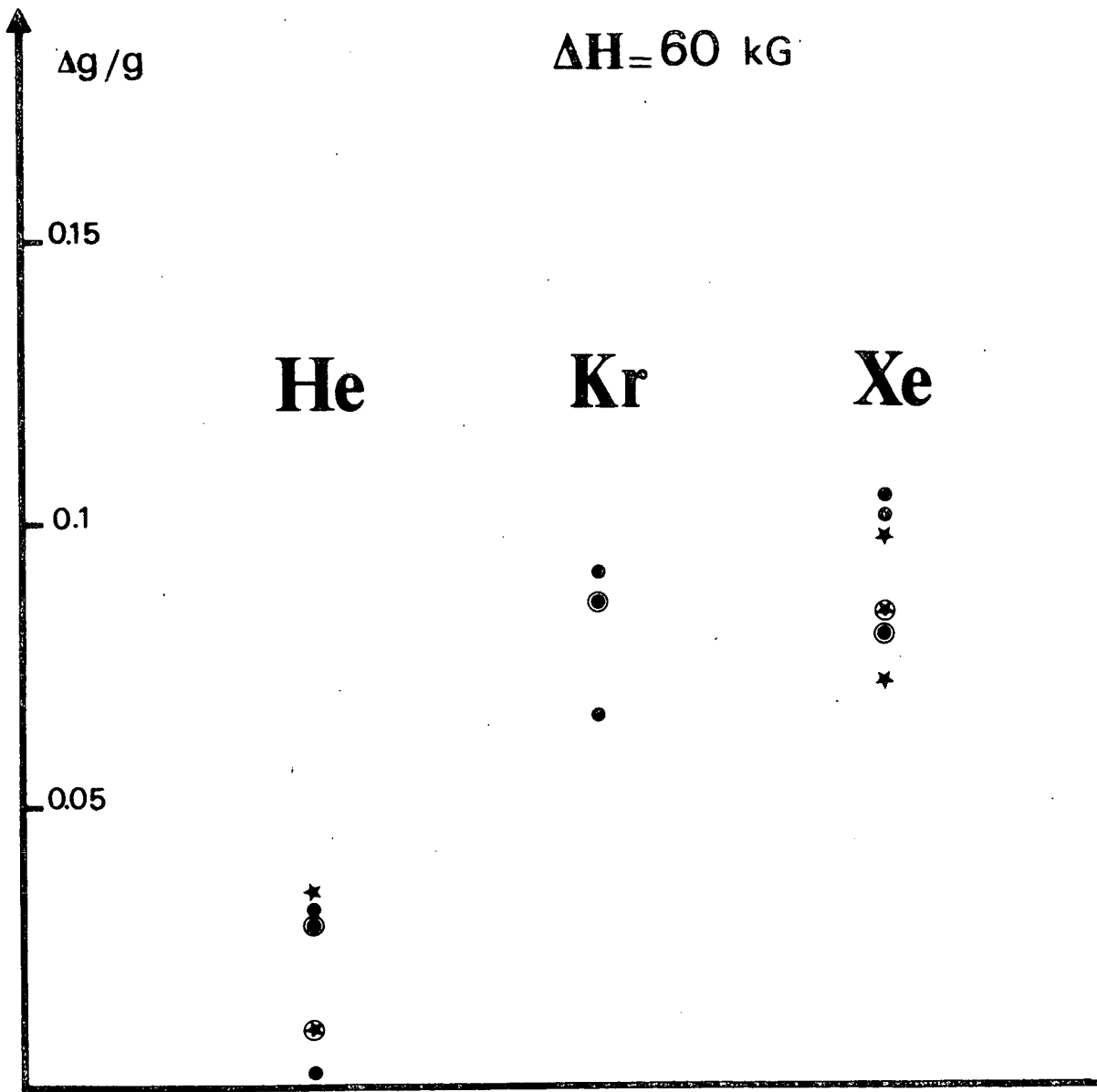
- II-C/FIG 9 - Variations avec le champ de $I_{\sigma^-}/I_{\sigma^+}$ (normalisé à la valeur en champ faible $H < 10$ kG) pour les différents gaz rares. La température du queusot des cellules est environ -34°C . Les droites en pointillé représentent les variations approximativement corrigées des termes de retour par collision.
- II-C/FIG 10 - Variations avec le champ du rapport $I_{\sigma^-}/I_{\sigma^+}$ pour les différents gaz rares à basse température ($T \approx -34^{\circ}\text{C}$). Les courbes en pointillé représentent respectivement 1 , $e^{\hbar\omega/kT}$ et $e^{2\hbar\omega/kT}$.
- II-C/FIG 11 - Variations du rapport des intensités circulaires de fluorescence avec le champ à haute densité de Mercure ($N \sim 3 \cdot 10^{13}/\text{cm}^3$) pour les différents gaz rares. Les points s'alignent sensiblement sur la courbe $e^{2\hbar\omega/kT}$ (en pointillé).
- II-C/FIG 12 - Disposition possible des courbes de potentiel Hg (6^3P_1)-gaz rares (d'après FAROUX).
- II-C/FIG 13 - Courbes théoriques représentant les variations de $[g^{(11)(00)} + g^{(-1-1)(00)}]/2F$ normalisés à la valeur en champ nul, en fonction du champ (sans moyenne sur les vitesses) pour les différents gaz rares. On a reporté les résultats expérimentaux (traits pleins) assimilés à des droites (sans corrections de retour).
- II-C/FIG 14a- XENON (●) - KRYPTON (●). Comparaison qualitative des résultats expérimentaux aux prévisions obtenues avec un potentiel attractif en R^{-6} (en pointillés). On a figuré par une ligne horizontale continue l'amplitude maximale du creux lorsque l'on effectue la moyenne sur la vitesse relative des atomes.
- II-C/FIG 14b- ARGON. Comparaison qualitative des résultats expérimentaux aux prévisions obtenues avec un potentiel en R^{-6} attractif (---) et répulsif (—.—).
- II-C/FIG 14c- Comparaison qualitative des variations théoriques et expérimentales de $I_{\sigma^-}/I_{\sigma^+}$ en fonction du champ pour l'Hélium et le Néon. Le modèle théorique (courbes en pointillés) suppose un potentiel répulsif variant en R^{-6} avec la distance.

II-C/FIG 1



II-C/FIG 2

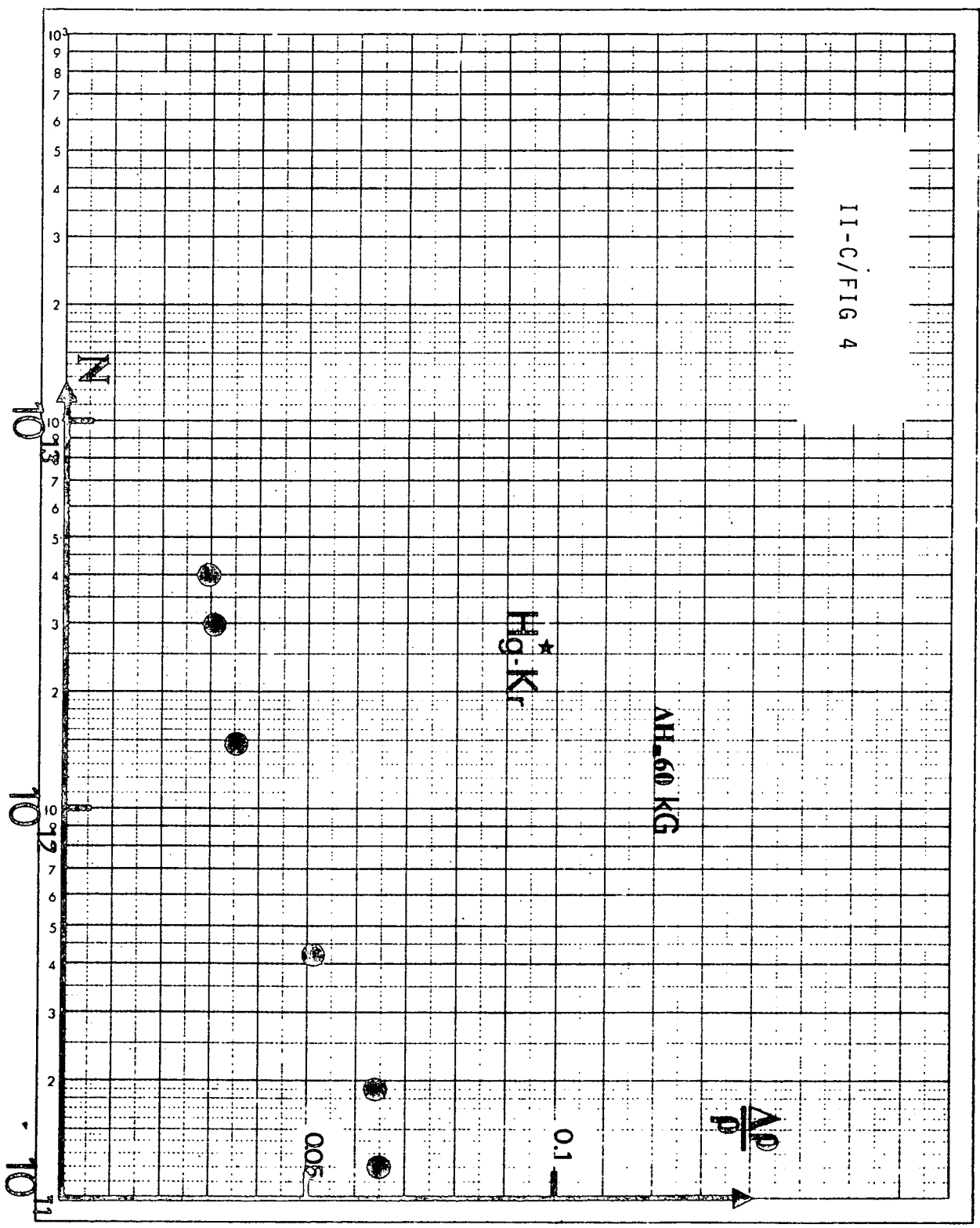


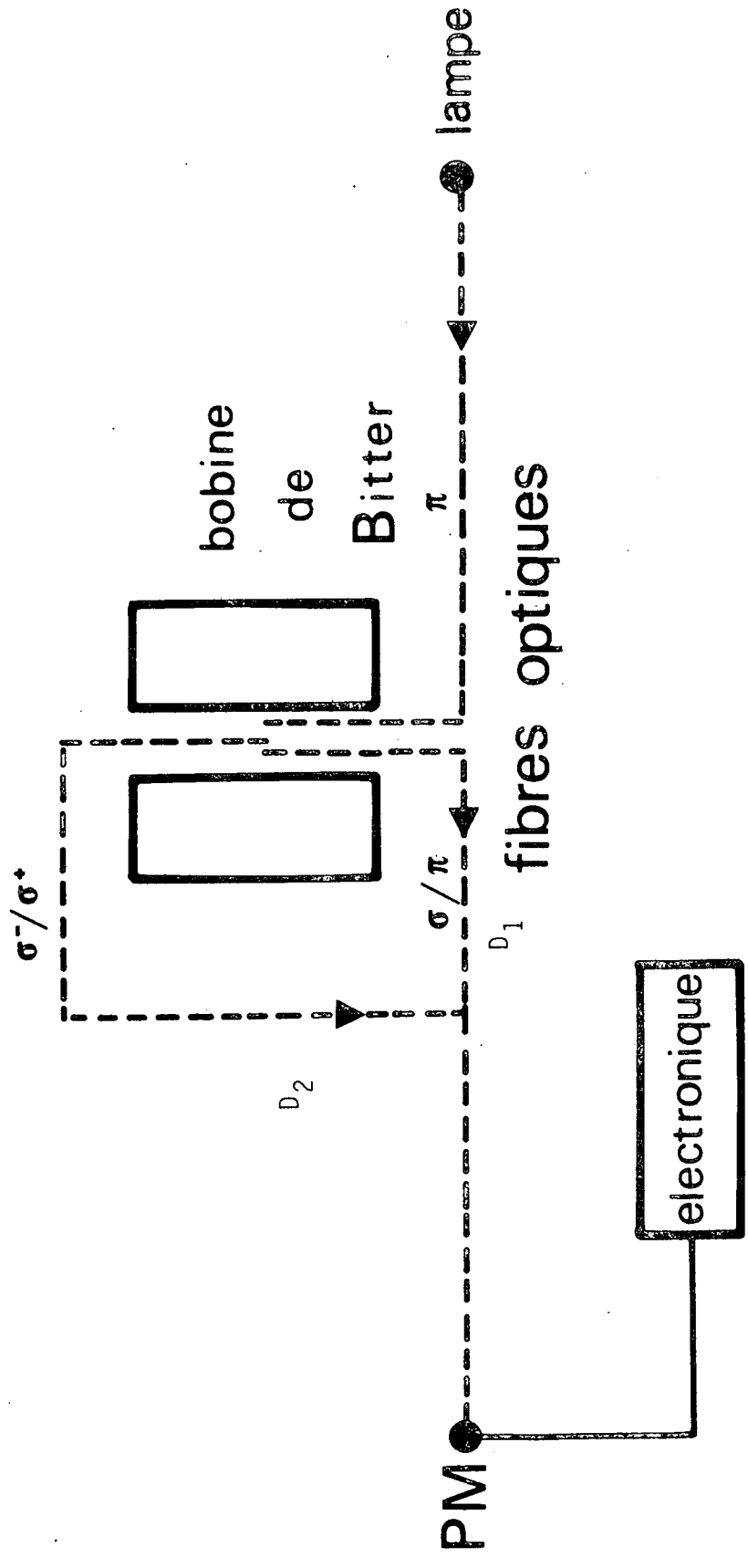


He. p=0.1t ● p=0.9t ★
 Xe p=0.3t ● p=0.3t ★
 Kr p=0.1t ● H ↓ ○

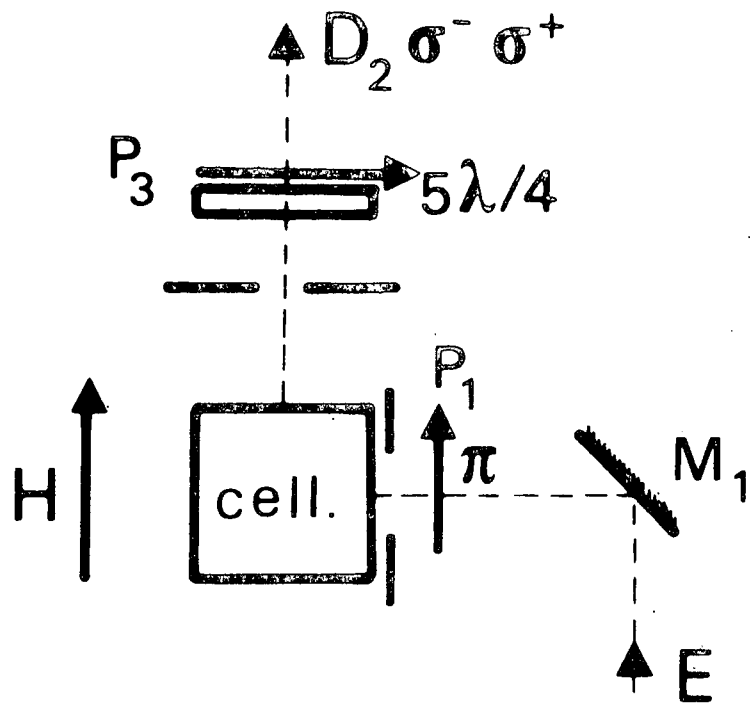
II-C/FIG 3

II-C/FIG 4

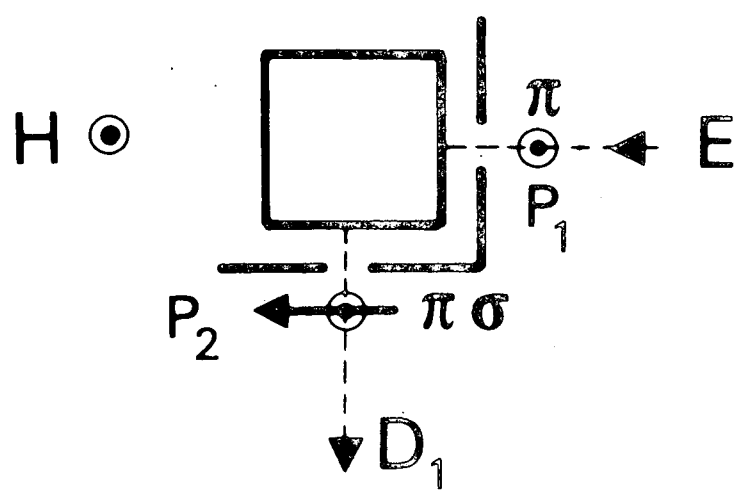




II-C/FIG5



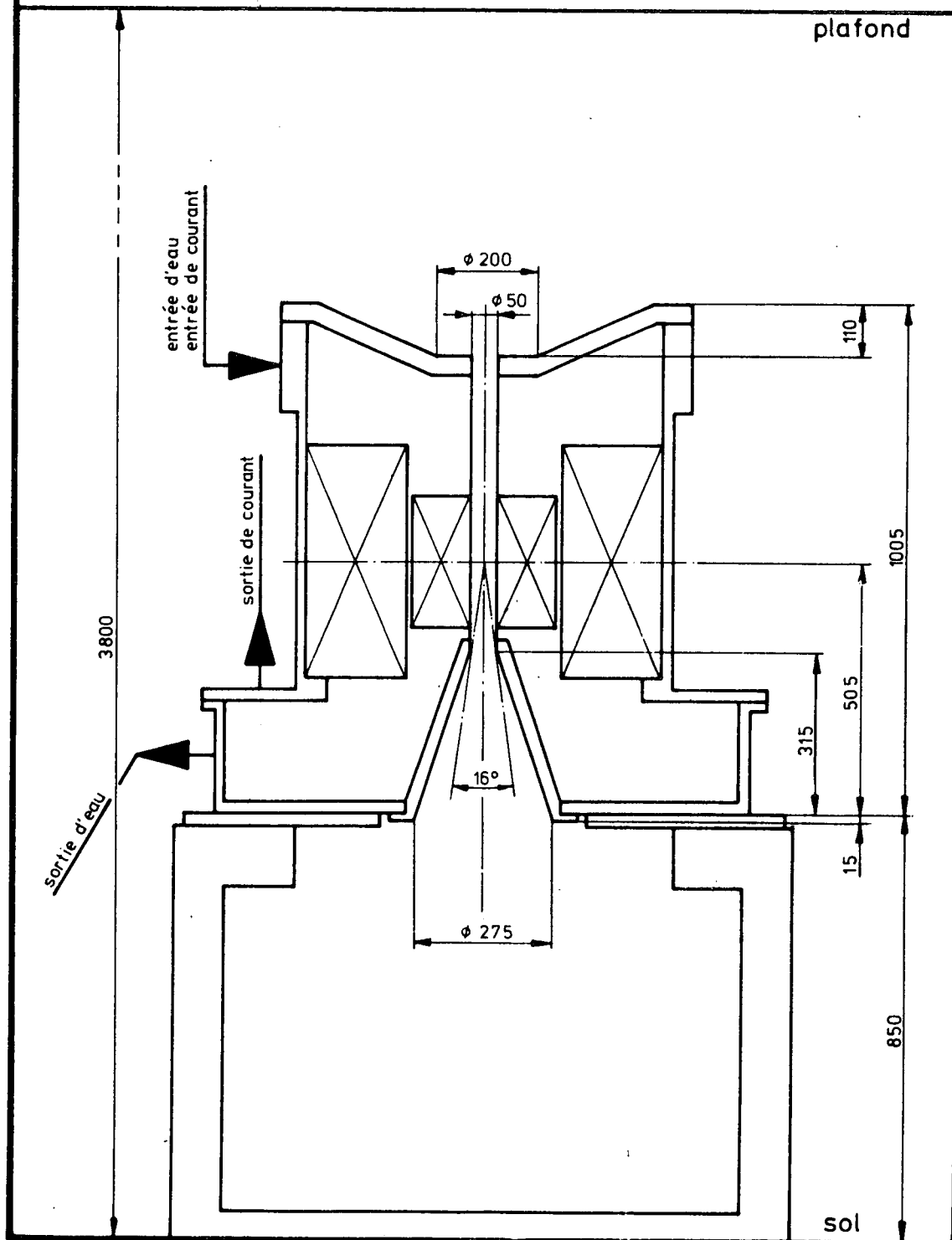
VUE LATÉRALE

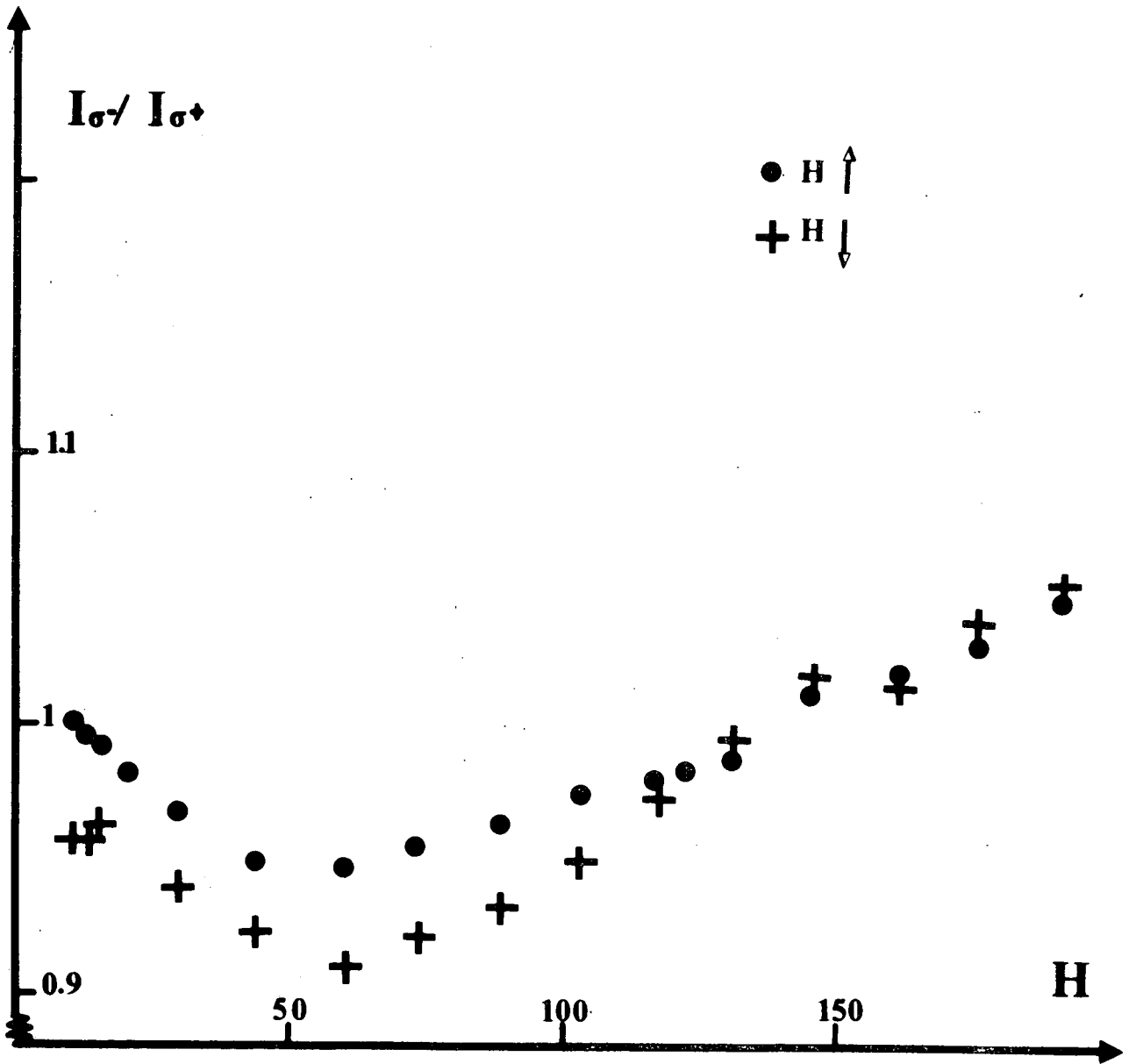


VUE DE DESSUS

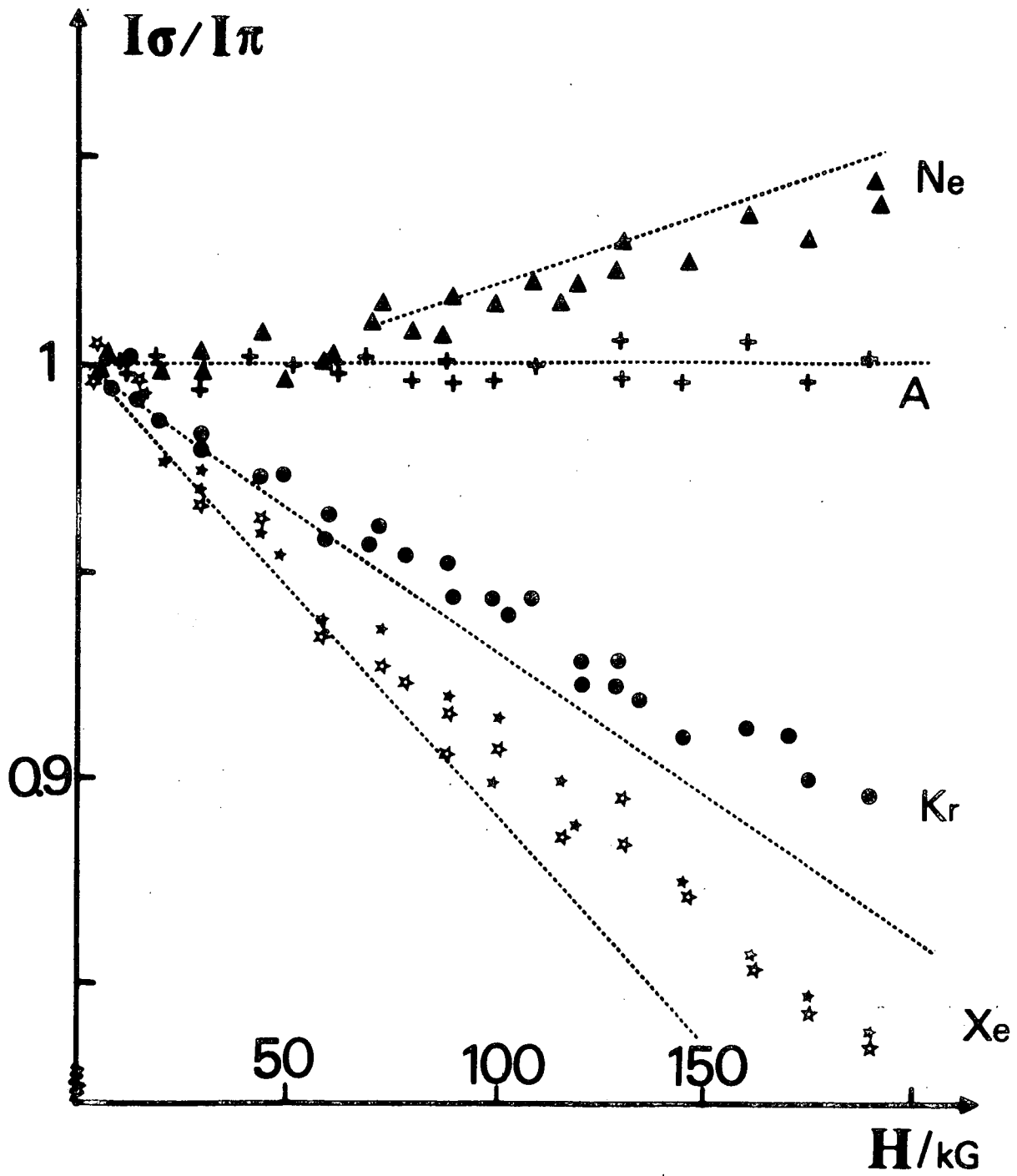
BOBINE NO. 5

20 Teslas; 10 MW
Axe vertical

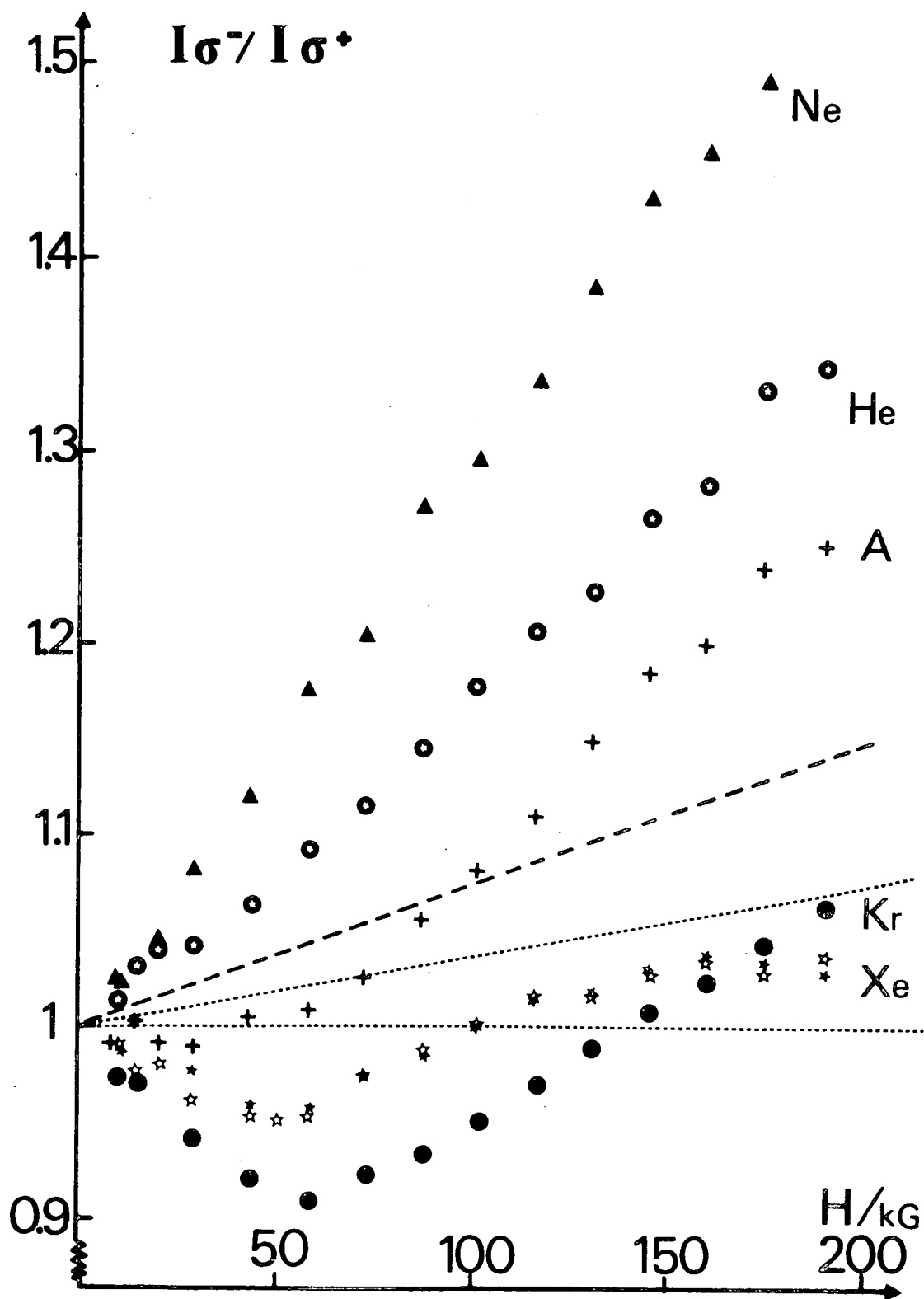




II-C/FIG 8

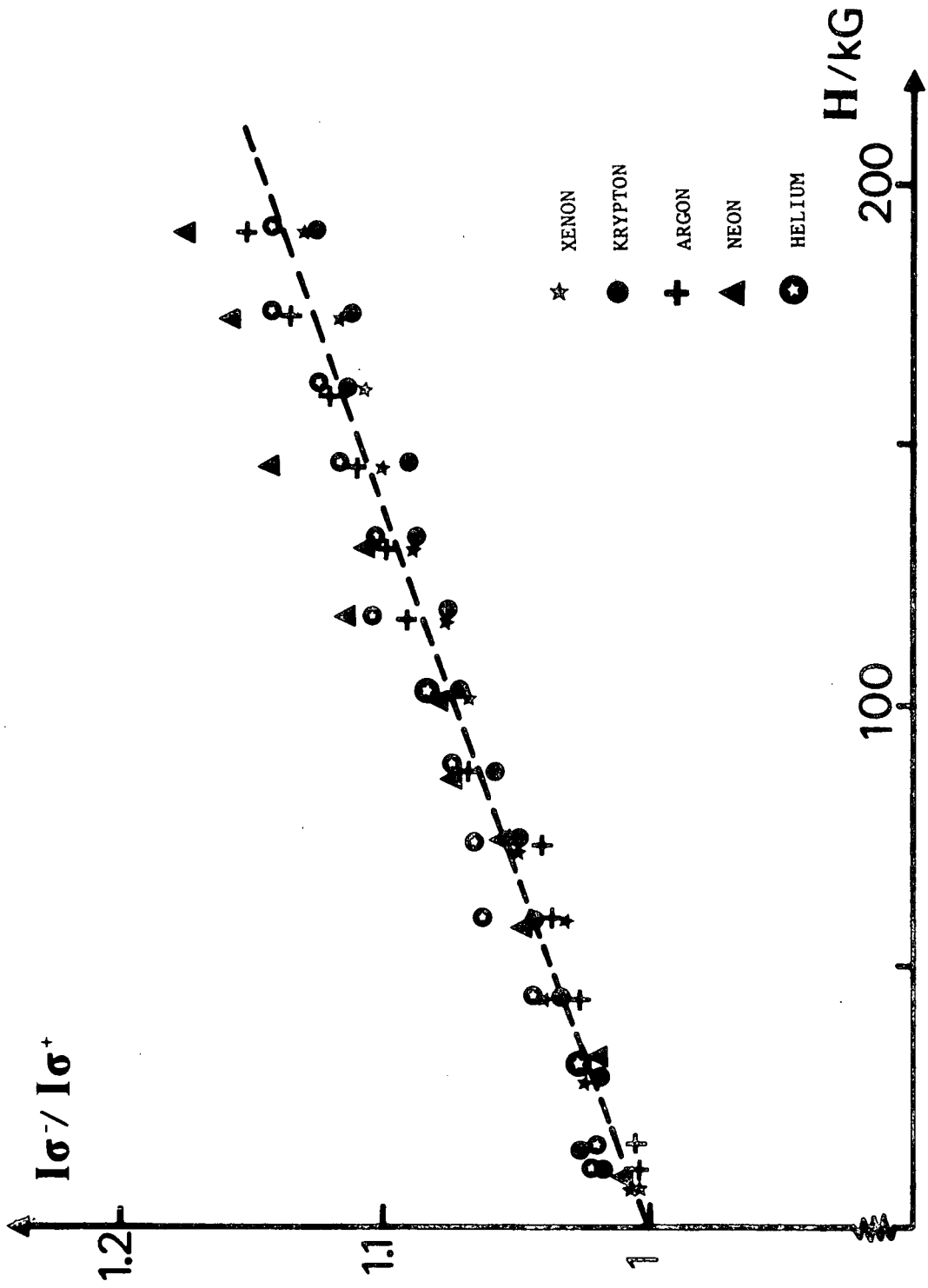


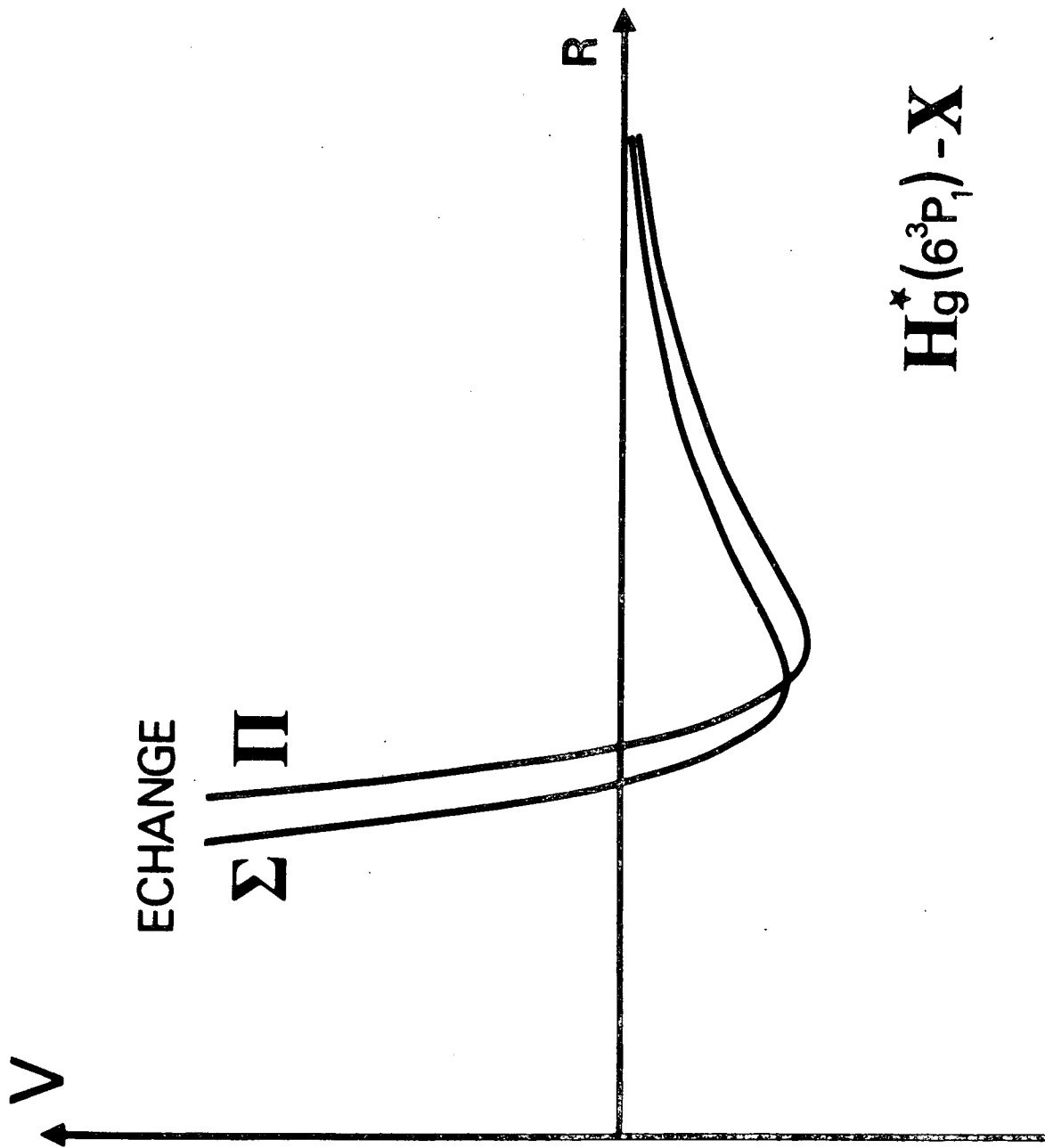
II-C/FIG 9



II-C/FIG 10

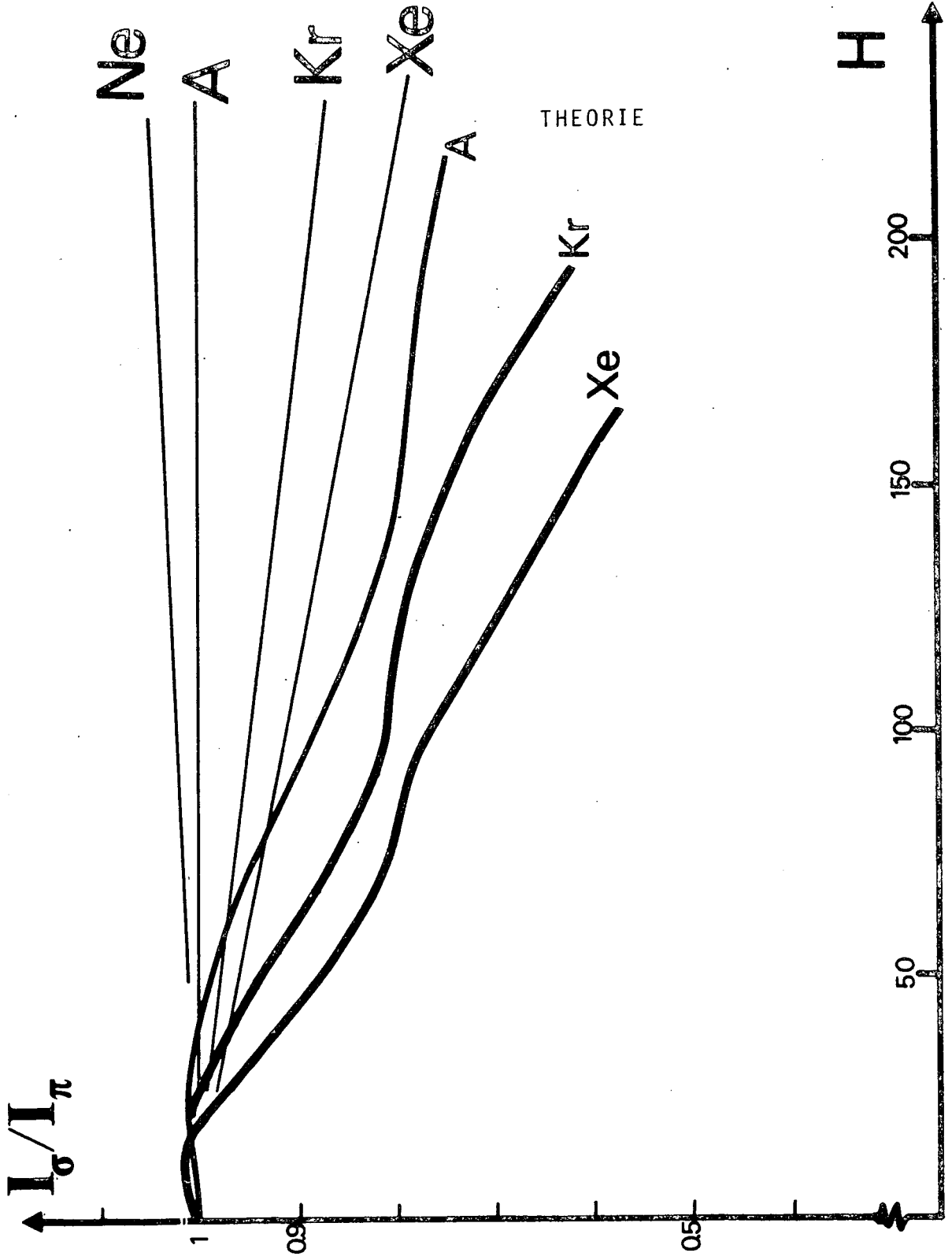
II-C/FIG 11

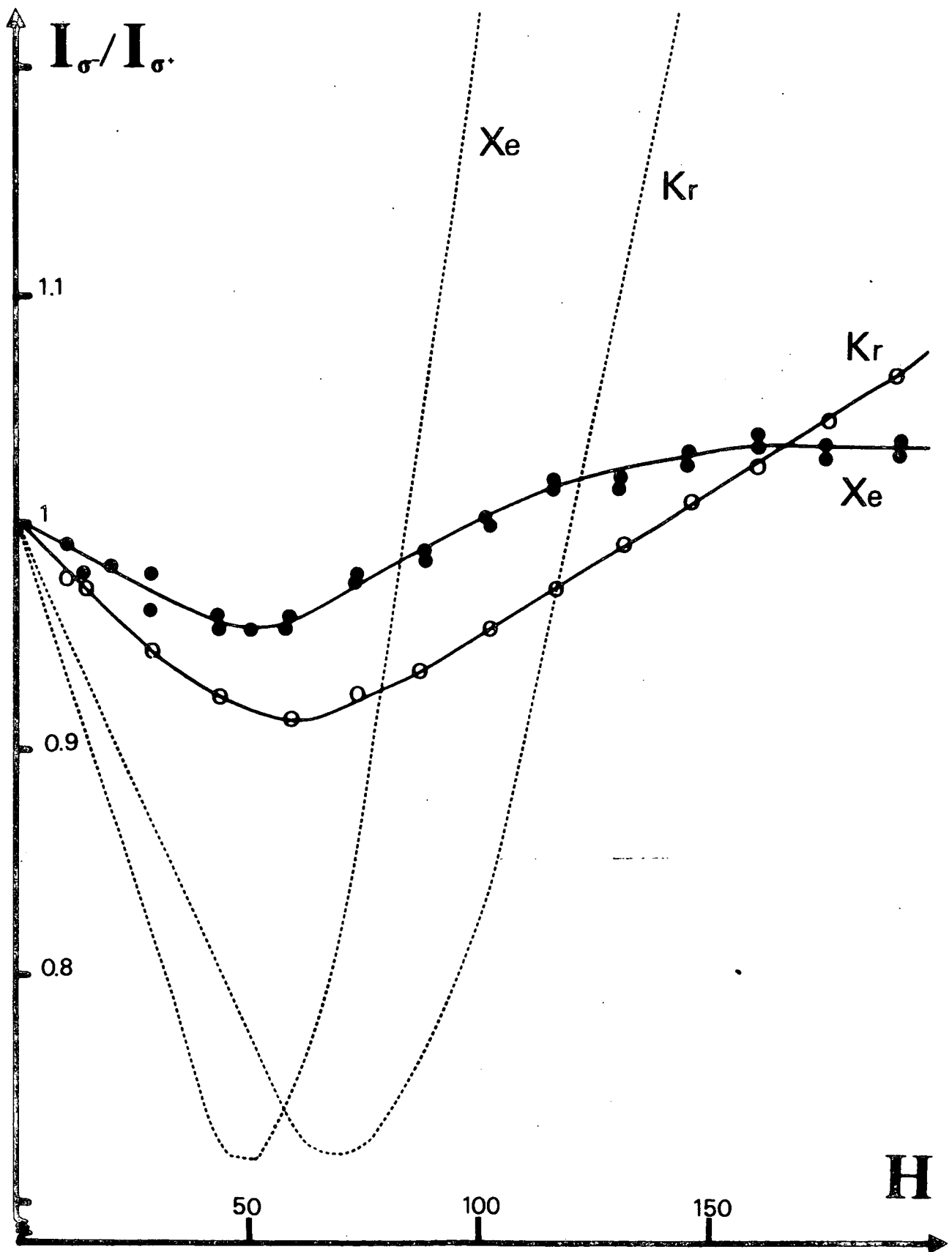




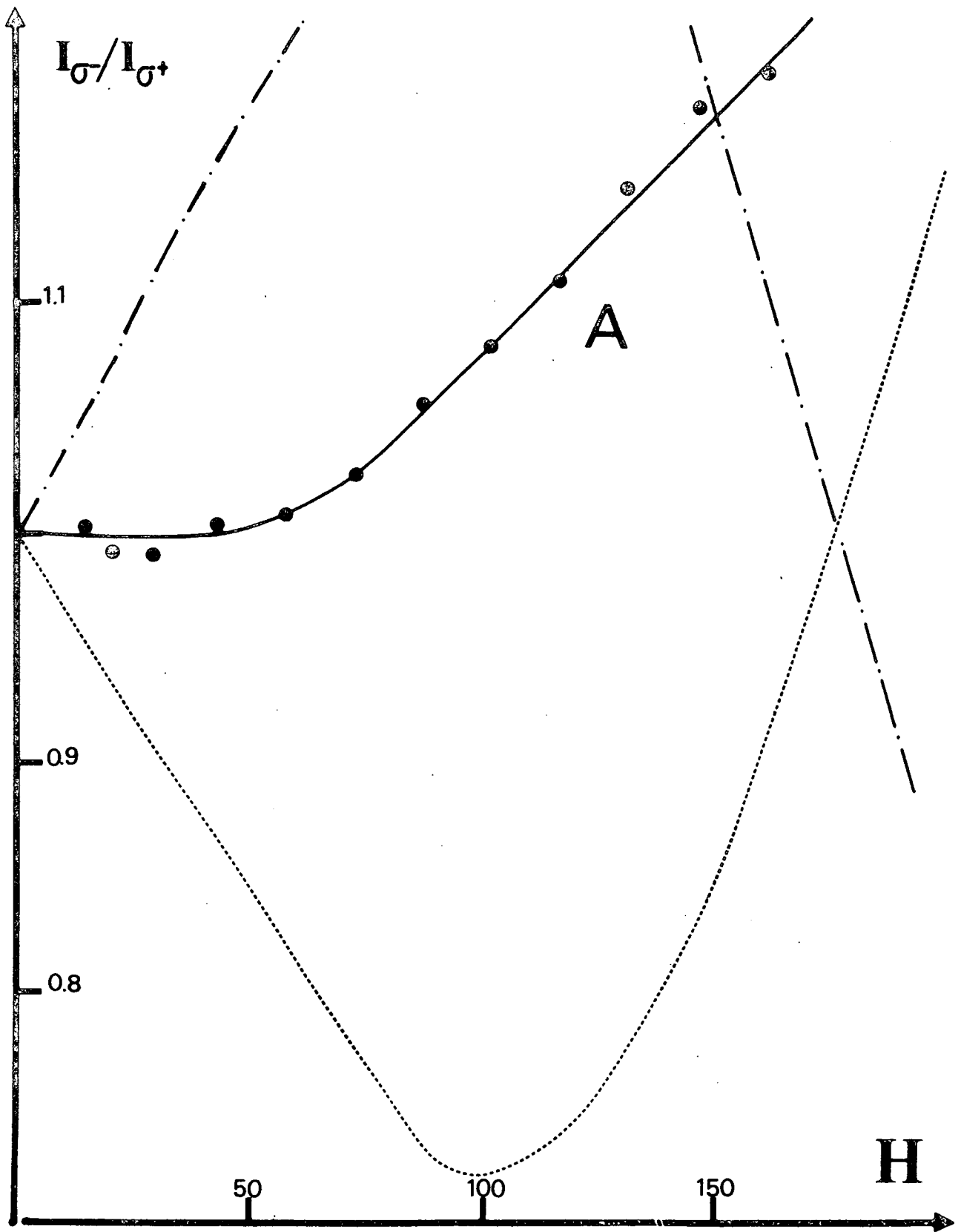
$\text{Hg}^*(6^3P_1) - X$

RESULTATS EXPERIMENTAUX

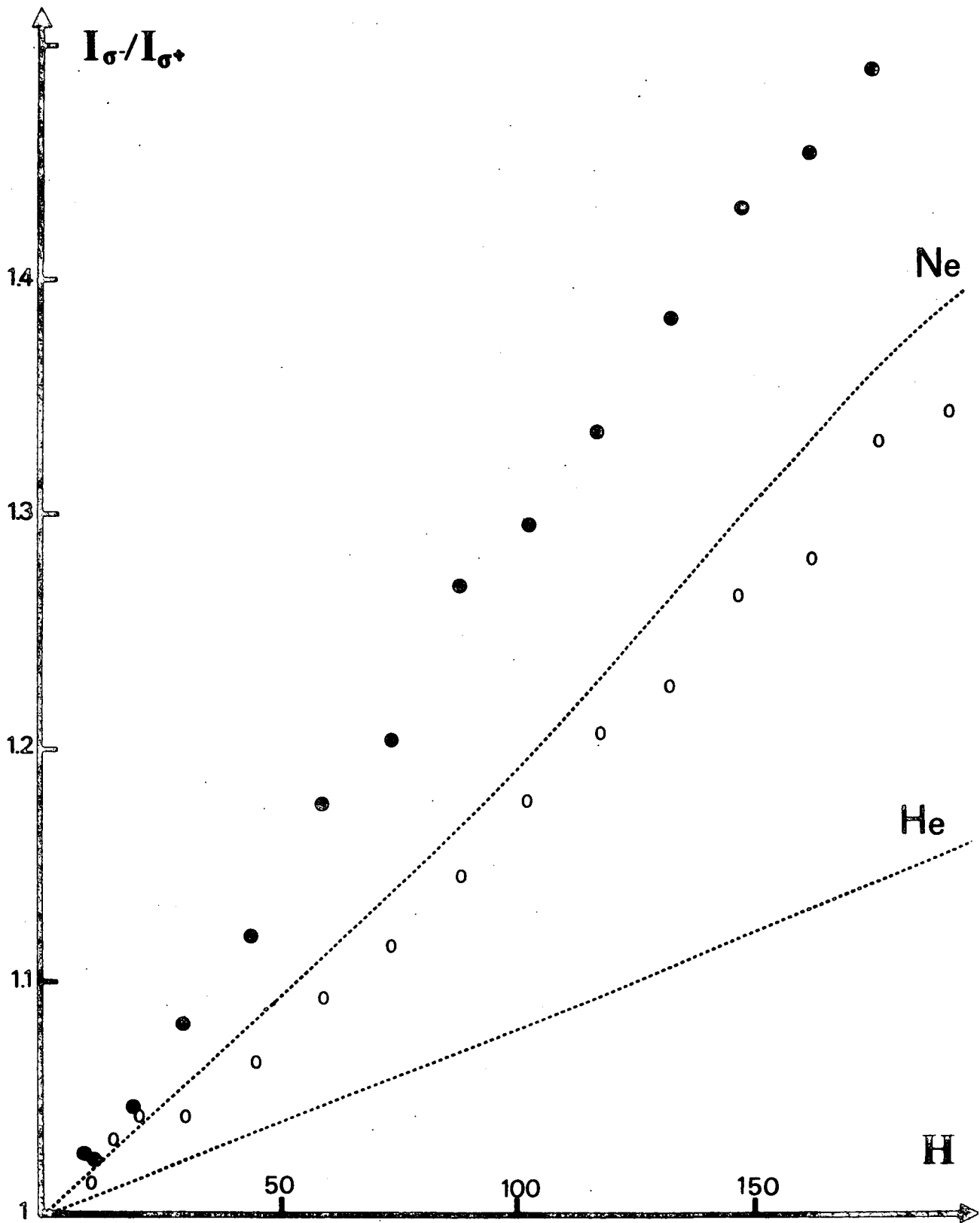




II-C/FIG 14a



II-C/FIG 14b

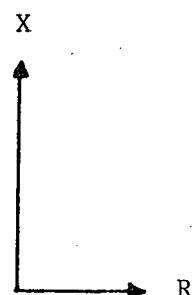


II-C/FIG 14c

T A B L E A U 1

*Distribution spatiale du champ
produit par la bobine de Bitter 10 MW du
S.N.C.I. (I = 10 000 A)*

X (CM)	R (CM)	HR	HX	H (kG)
0.000	0.000	0.	145863.	145863.
0.000	20.000	0.	19925.	19925.
0.000	40.000	0.	-5070.	5070.
0.000	60.000	0.	-1590.	1590.
0.000	80.000	0.	-670.	670.
0.000	100.000	0.	-342.	342.
0.000	120.000	0.	-197.	197.
0.000	140.000	0.	-124.	124.
0.000	160.000	0.	-83.	83.
0.000	180.000	0.	-58.	58.
0.000	200.000	0.	-42.	42.
0.000	220.000	0.	-32.	32.
0.000	240.000	0.	-25.	25.
0.000	260.000	0.	-19.	19.
0.000	280.000	0.	-15.	15.
0.000	300.000	0.	-13.	13.
0.000	320.000	0.	-10.	10.
0.000	340.000	0.	-9.	9.
0.000	360.000	0.	-7.	7.
0.000	380.000	0.	-6.	6.
0.000	400.000	0.	-5.	5.
20.000	0.000	0.	35003.	35003.
20.000	20.000	20062.	15130.	25128.
20.000	40.000	4844.	-1702.	5134.
20.000	60.000	1234.	-955.	1560.
20.000	80.000	434.	-502.	664.
20.000	100.000	187.	-264.	340.
20.000	120.000	92.	-174.	197.
20.000	140.000	51.	-113.	124.
20.000	160.000	30.	-77.	83.
20.000	180.000	19.	-55.	58.
20.000	200.000	12.	-41.	42.
20.000	220.000	9.	-31.	32.
20.000	240.000	6.	-24.	25.
20.000	260.000	4.	-19.	19.
20.000	280.000	3.	-15.	15.
20.000	300.000	2.	-12.	13.
20.000	320.000	2.	-10.	10.
20.000	340.000	2.	-8.	9.
20.000	360.000	1.	-7.	7.
20.000	380.000	1.	-6.	6.
20.000	400.000	1.	-5.	5.
40.000	0.000	0.	8634.	8634.
40.000	20.000	3843.	5222.	6464.
40.000	40.000	2814.	1053.	3004.
40.000	60.000	1271.	-53.	1272.
40.000	80.000	575.	-122.	575.



T A B L E A U 2

Valeur des paramètres utilisés pour la correction des résultats expérimentaux
concernant les intensités circulaires de fluorescence

$T \approx -30^{\circ}\text{C}$	He	Ne	A	Kr	Xe
a	16,2	6,9	12,9	8,8	10,9
b	1,1	0,55	0,8	0,75	0,8
$c = \frac{b}{a} (10^{-2})$	6,8	8,0	6,2	8,5	7,3
η_1	5,5	6,5	5,8	4,2	7,8

T A B L E A U 3

Valeurs des divers paramètres caractéristiques des collisions
 $\text{Hg}^*(6^3P_1)$ -gaz rares en champ intense. ($T = 300^\circ\text{K}$)

	^4He	Ne	A	Kr	Xe
$\gamma^{(1)}$ $10^7 \text{ s}^{-1}/\text{torr}$	1,82	1,08	1,44	1,40	1,66
$\gamma^{(2)}$ $10^7 \text{ s}^{-1}/\text{torr}$	1,58	0,90	1,17	1,25	1,52
$\bar{\sigma}^{(1)}$ 10^{-16} cm^2	44	56,2	100,2	134	179
$\bar{\sigma}^{(2)}$ 10^{-16} cm^2	38,2	46,8	82,2	119	164,5
$g^{(11)(00)}/\Gamma \text{ (Torr)}^{-1}$	0,62	0,35	0,46	0,49	0,59
$v = \left(\frac{2kT}{M^*}\right)^{1/2} \text{ m/s}$	1128	524	353	296	242
$B_c \text{ (kG)}$	225	96	49	34	24
$\omega_c \text{ (GHz)}$	473	201	103	71	50

REFERENCES DE LA DEUXIEME PARTIE

- BARRAT J.P. , CASALTA D., COJAN J.L. et HAMEL J. : J. Phys. 27, 608 (1966)
- BAYLIS W.E. : J. Chem. Phys. 51, 2665 (1969)
- BUTAUX J. : Thèse - Paris (1972)
- BUTAUX J., SCHULLER F. et LENNUIER R. : J. Phys. 33, 635 (1972)
- BUTAUX J., SCHULLER F. et LENNUIER R. : J. Phys. 35, 361 (1974)
- FAROUX J.P. : Thèse - Paris (1969)
- FAROUX J.P. : C.R.A.S., 262 , 1385 (1966)
264, 1573 (1967)
265, 393 (1967)
- FAROUX J.P. et BROSSEL J. : C.R.A.S. 262, 41 (1966)
263, 612 (1966)
264, 1452 (1967)
265, 1412 (1967)
- GAY J.C. et SCHNEIDER W.B. : J. Phys. 36, L-185 (1975)
- GAY J.C. : J. Phys. 36 L-239 (1975)
- GAY J.C. et OMONT A. : J. Phys. Lettres , avril 1976
- KHALILOV V.K., MALYSHKIN S.F., AMOSOV A.V., KONDRATEV Y.N. and GRIGOREVA L.S. : Opt. Speck-
trosk. 38, 1152 (1975)
- OMONT A. : J. Phys. 26, 26 (1965)
- OMONT A. : Thèse 3ème cycle - Paris (1961)

PASCALE J. et VANDEPLANQUE : J. Chem. Phys. 60, 2278 (1974)

PASCALE J. ET OLSON R.E. : J. Chem. Phys. , à paraître

PIKETTY C.A., BROSEL J. et GROSSETÊTE F. : C.R.A.S. 258, 1189 (1964)

TROISIEME PARTIE

COLLISIONS RESONNANTES ET NON RESONNANTES
SUR LE SODIUM EN CHAMP INTENSE

- A -

INTRODUCTION

La situation expérimentale offerte par le doublet 3^2P de structure fine du Sodium est beaucoup plus riche que celle du Mercure dans le niveau 6^3P_1 . Mais l'interprétation des expériences est aussi beaucoup plus compliquée.

L'utilisation d'un laser accordable est une nécessité de l'expérience puisqu'il n'existe pas de composante de la raie optique non déplacée par le champ. Ceci ne crée pas de difficulté particulière puisque les raies de résonance du Sodium (5890 et 5896 Å) tombent dans un domaine couvert par les lasers à colorant. Ceci offre la possibilité de mesurer l'ensemble des coefficients de transfert entre les différents sous-niveaux Zeeman. La situation, de ce point de vue est donc beaucoup plus intéressante que celle offerte par les isotopes pairs du Mercure d'autant plus qu'une grande variété de situations existe (cf. FIG 1).

Mais corrélativement, la situation théorique est très compliquée :

- par l'existence d'une structure hyperfine (1,8 GHz dans l'état fondamental) qui toutefois est découplée dans des champs de 4 à 5 kG.
- par l'existence des deux sous-niveaux Zeeman du fondamental qui compliquent la théorie dans le cas des collisions résonnantes.
- par la structure fine de l'état excité. Le découplage partiel de \vec{L} et \vec{S} étant réalisé dans les champs de 80 kG utilisés, les variations des taux de transfert en fonction du champ ne peuvent plus être attribuées sans ambiguïté à la modification de la différence d'énergie entre les sous-niveaux Zeeman.
- Enfin, le découplage de \vec{L} et \vec{S} avec \vec{H} entraîne l'existence d'une dépendance en fonction du champ de la probabilité de transition radiative vers l'état fondamental. Les rapports des intensités de fluorescence présentent donc

une dépendance parasite en fonction du champ qu'il n'est pas toujours possible de corriger (cf. § III-C) de manière simple.

Nous nous bornerons à illustrer quelques aspects des collisions Na-Na^* et Na^*-X en champ intense.

- Dans le cas des collisions résonnantes Na-Na^* on donne les résultats de l'étude des variations en fonction du champ du taux de transfert par collisions entre les sous-niveaux $m = -1/2$ et $m = 1/2$ issus du niveau $J = 1/2$ de structure fine. La décroissance très importante observée peut être attribuée à des effets analogues à ceux décrits dans le cas du Mercure. Nous mentionnons cependant l'existence de divers phénomènes parasites qui compliquent l'interprétation des expériences. Diverses caractéristiques théoriques du système sont dégagées, en particulier dans l'annexe, à l'aide d'un calcul de perturbation de la matrice de relaxation.

- Dans le cas des collisions non résonnantes Sodium-gaz rares, il ne semble pas que les variations des taux de transfert en fonction du champ soient très importantes. Cet aspect n'a pas fait l'objet d'une étude systématique mais sera exploité ultérieurement.

Le principal intérêt de l'étude des collisions sodium-gaz rares est la mesure directe des sections efficaces de transfert entre les sous-niveaux Zeeman en champ faible. Celles-ci n'avaient pu, jusqu'à présent être déterminées expérimentalement. En particulier, la mesure des sections efficaces de transfert entre les sous-niveaux $m = 3/2$ et $m = -3/2$ permet de mettre en évidence selon la nature du perturbateur, la plus ou moins grande importance des effets du couplage \vec{L} , \vec{S} pendant la durée de la collision. Le transfert $\frac{3}{2} \rightarrow -\frac{3}{2}$ exige le renversement du spin électronique. La section de transfert ne prendra donc de valeurs notables que dans les conditions où \vec{L} et \vec{S} ont le temps de se coupler pendant la collision. De l'Hélium au Xénon on observe ainsi une croissance de la section de transfert ($3/2, -3/2$) qui devient pour les gaz lourds comparable aux autres sections efficaces.

- Du point de vue théorique, il n'existe aucune prévision dans les diverses situations précédentes en ce qui concerne la dépendance en fonction du champ des sections ou des taux de transfert. Dans le cas des collisions résonnantes, le calcul numérique sera effectué avec un potentiel dipôle-dipôle en R^{-3} en tenant compte des Hamiltoniens magnétique et de structure fine selon les méthodes développées dans la première partie. En champ nul, il existe diverses études théoriques

des collisions résonnantes Na-Na^{*} (par exemple E.E. NIKITIN - 1965 , CARRINGTON et al - 1973).

Dans le cas des collisions non résonnantes, il existe un certain nombre de prévisions théoriques en champ nul, dans le cas de l'Hélium (DASHEVSKAYA et al. -1970 ; MASNOU et al. 1972-1974 ; WILSON et al. - 1975 ; REID - 1973) et pour l'ensemble des gaz rares (PASCALE et al. -1976).

Quelques définitions et notations

On notera dans la suite $|\tilde{J} M \rangle$ l'état propre du Hamiltonien total (structure fine et hamiltonien magnétique) qui tend vers l'état propre $|L S J M \rangle$ en champ nul (cf. annexe).

Dans le cas des collisions résonnantes Na-Na^{*} , l'expression "système à 2 atomes" désigne la situation où l'un des atomes est dans l'un des sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental et le second atome dans l'un des sous-niveaux Zeeman de l'état excité.

- B -

PRINCIPE DES EXPERIENCES ET DESCRIPTION DU MONTAGE

1 - PRINCIPE DES EXPERIENCES

Le principe des expériences est d'exciter un sous-niveau Zeeman des niveaux 3^2P_J du Sodium avec une source accordable. Par collision avec un atome de Sodium à l'état fondamental ou un atome de gaz rare, l'excitation est transférée dans un autre sous-niveau de l'état excité. On mesure la population des différents sous-niveaux Zeeman en détectant les intensités des différentes raies de fluorescence réémises.

Lorsque la différence de fréquence entre les raies issues des sous-niveaux Zeeman est plus grande que la largeur Doppler, l'emprisonnement de l'excitation dans la vapeur s'effectue indépendamment pour chaque sous-niveau de l'état excité. Pour des valeurs du champ supérieures à 3 kG ou 4 kG, le transfert de l'excitation entre les différents sous-niveaux résulte donc uniquement des phénomènes de collision.

Le spectre de fluorescence obtenu présente plusieurs raies. Le rapport des intensités des raies à l'intensité d'une des composantes directes de la fluorescence donne en première approximation la valeur du taux de transfert par collision g entre les sous-niveaux dont sont issues les raies. Il faut pour que cela soit vrai que les taux de transfert soient assez petits pour que l'on puisse légitimement négliger l'effet des collisions successives (termes de retour, transferts successifs dans les sous-niveaux Zeeman autres que le niveau initial).

Bien que plus riche du point de vue expérimental que celle du Mercure dans le niveau 6^3P_1 , la situation du Sodium dans les niveaux 3^2P_J présente un certain nombre d'inconvénients. L'existence d'un spin électronique $s = 1/2$ non nul dans l'état fondamental complique l'interprétation théorique. Les facteurs

de Landé des trois niveaux impliqués dans l'étude ($3^2S_{1/2}$, $3^2P_{1/2}$, $3^2P_{3/2}$) sont différents. Il en résulte qu'il n'existe pas de composante des raies de résonance qui ne soit déplacée par le champ magnétique. La technique expérimentale utilisée dans le cas du Mercure (cf. § I-C et II-C) n'est donc pas applicable. On utilise une source accordable constituée par un laser à colorant ce qui permet en définitive de pouvoir exciter l'ensemble des sous-niveaux Zeeman de l'état excité. Une comparaison plus large avec la théorie sera donc possible dans ce cas.

L'existence d'un grand nombre de raies de fluorescence complique la détection. En particulier la technique utilisée dans le cas du Mercure en sélectionnant les intensités par leurs polarisations n'est pas utilisable. L'analyse en fréquence de la lumière de fluorescence est effectuée à l'aide d'un analyseur Perot-Fabry. On obtient de cette façon beaucoup plus d'informations que dans le cas du Mercure puisque toutes les intensités de fluorescence sont mesurables séparément.

Enfin, le dernier point qui différencie les cas du Sodium et du Mercure résulte de la petite structure fine du Sodium dans la configuration (3p). La constante de structure fine vaut en effet 344 GHz. Un découplage partiel de \vec{L} et \vec{S} sera donc réalisé dans des champs de l'ordre de 80 kG (cf. FIG 1 et annexe). On devra en tenir compte pour interpréter correctement les résultats expérimentaux et lors de l'analyse théorique du problème.

Notons également qu'en raison du découplage de \vec{L} et \vec{S} sous l'effet du champ les probabilités de transition vers le niveau fondamental dépendent de la valeur du champ. Dans le cas des études des collisions avec les gaz rares qui sont effectuées à basse température, cette correction est facile à effectuer. Dans le cas des collisions résonnantes cela devient beaucoup plus difficile dans la mesure où les expériences sont effectuées à haute température lorsque la diffusion multiple du rayonnement est importante. La dépendance des probabilités de transition en fonction du champ entraîne alors une dépendance des temps d'emprisonnement en fonction du champ.

Signalons enfin que la structure hyperfine des raies provenant essentiellement de la structure hyperfine de l'état fondamental ne complique pas l'interprétation des expériences dans la mesure où \vec{I} et \vec{J} sont découplés dans les conditions expérimentales adoptées pour des champs de l'ordre ou supérieur à 4 kG.

2 - DESCRIPTION DU MONTAGE EXPERIMENTAL

Le schéma de principe du montage est donné dans la figure 2. Le faisceau laser modulé par une roue dentée est envoyé au moyen d'un jeu de miroirs dans la cellule contenant le Sodium qui se trouve dans un four situé dans le conduit central de la Bobine supraconductrice (cf. FIG 2). L'excitation est donc effectuée dans l'axe du champ magnétique. La détection de la lumière de fluorescence s'effectue dans la direction perpendiculaire au champ. La lumière de fluorescence est ensuite envoyée au moyen d'un conducteur de lumière flexible (SCHOTT) sur un banc d'optique contenant un analyseur PEROT FABRY. Le signal est enfin détecté par un photomultiplicateur contenu dans une enceinte refroidie (Products for Scientific Research), suivi d'une détection synchrone ou d'un système de comptage de photons. Les signaux peuvent être enregistrés sur un analyseur de spectres DIDAC 800 canaux ou sur un enregistreur XY.

La description du système supraconducteur a été faite dans le § I-C.

• Description et caractéristiques de la source. Le laser à colorant (Rhodamine 6G) utilisé est de type classique (Coherent radiation 490) pompé par un laser à Argon ionisé. La puissance obtenue avec 4 W de pompe est de 250 mW à 5890 Å. On utilise pour effectuer les expériences une puissance de 20 à 30 mW à la sortie du laser. On a vérifié à l'aide d'un atténuateur variable que la puissance de la raie laser est suffisamment faible pour ne pas avoir d'incidence sur la valeur des sections efficaces que nous avons mesurées ou sur les variations avec le champ que nous avons observées.

La sélection en longueur d'onde est effectuée avec un filtre de LYOT auquel on a adjoint une lame de 1 mm d'épaisseur que l'on peut incliner sur le faisceau laser. Aux faibles valeurs du champ (4 kG) ce système permet l'excitation sélective d'un seul sous-niveau Zeeman. La raie excitatrice a alors une largeur d'environ 4 GHz et ne comporte plus que deux ou trois modes. La largeur Doppler des raies du Sodium à 450 °K est de l'ordre de 2,9 GHz (et de l'ordre de la structure hyperfine de l'état fondamental). La largeur d'un mode de la raie laser est d'environ 0,1 GHz. Malgré l'étroitesse d'un mode à l'échelle de la largeur Doppler, il semble que les fluctuations de sa position au cours de la mesure suffisent à prévenir d'effets parasites comme par exemple l'excitation de classes de vitesses

bien déterminées dans la vapeur.

- Description du four

Un cylindre à double enceinte parcouru par une circulation d'eau permet d'isoler thermiquement le conduit central de la bobine du four dont la température est de l'ordre de 400 à 500 °K. Le four est constitué d'un bloc de cuivre parcouru par une circulation d'huile à silicone. Il est en contact thermique avec le queusot de la cellule qui contient une goutte de sodium. Le système de régulation en température est constitué par un système à circulation d'huile HAAKE commandé et régulé en température par une sonde à résistance de platine plongeant dans le bain d'huile. L'électronique de commande est constituée par un coffret "THERMISTOR". La stabilité en température est de l'ordre de 0,01 °C. L'application du principe de la paroi froide impose que la température des régions de la cellule autres que le queusot soit supérieure à la température du queusot. Ceci est obtenu à l'aide d'enroulements de thermocoax alimentés par deux alimentations stabilisées.

- Les cellules

Les cellules ont la forme de cylindres de 10 cm de long et de 2 cm de diamètre (cf. FIG 2). L'existence de gaz résiduels à des pressions de quelques 10^{-3} torr dans les cellules en pyrex nous a conduit à utiliser des cellules à getter au Barium, puis des cellules en silice fondue et enfin à monter les cellules sur banc de pompage. L'origine des gaz pourrait être l'existence de Potassium dans le pyrex de fabrication française utilisé lors de la distillation du Sodium. L'échange du Potassium de la paroi et du Sodium conduirait ainsi à un enrichissement en Potassium du Sodium distillé. Cette interprétation n'a pu être confirmée directement. Il n'est pas non plus possible d'écarter le rôle éventuel des gaz de scellement qui peuvent expliquer des pressions de quelques 10^{-3} torr de gaz résiduels (cf. § I-C). Le Sodium peut alors jouer le rôle de getter au scellement puis quand on augmente la température, désorber à nouveau les gaz.

- Système de détection

La détection de la lumière de fluorescence est effectuée à environ 2 cm de la face d'entrée de la cellule dans la direction perpendiculaire au champ

magnétique. La lumière de fluorescence est ensuite réfléchi à 90° par un miroir et est analysée en polarisation avec un prisme de GLAN. L'imperfection (taux de lumière π sur la voie σ par exemple) est de l'ordre de 1% et provient de l'ouverture angulaire de l'ordre de 10° de la voie de détection. L'analyse en polarisation n'est donc pas parfaite mais ceci a peu d'importance dans la mesure où une analyse en fréquence est ensuite effectuée pour séparer les différentes raies de fluorescence. La lumière de fluorescence est ensuite conduite à l'aide d'une fibre optique souple dans le banc de détection.

Le système de détection est constitué par un étalon Perot-Fabry BURLEIGH à intervalle spectral libre variable et à balayage piézoélectrique. La distance est réglable entre 0 et 5 cm par des cales. La finesse de l'appareil est de 40 à 50 selon la qualité du réglage. L'appareil est contenu dans un double banc d'optique thermostaté. L'étalon est suivi d'un téléobjectif 135 mm ASAHI-PENTAX et d'un trou de 1 mm qui constituent le dispositif de collimation et du photomultiplicateur contenu dans une enceinte refroidie et blindée. La largeur instrumentale du système de détection est de 2,9 GHz, c'est-à-dire de l'ordre de la largeur Doppler des raies. Le Perot-Fabry introduit une largeur de 2 GHz et le dispositif de collimation une largeur de 0,9 GHz.

Le problème essentiel d'utilisation du Perot-Fabry tient au fait que l'on ne peut pas faire varier l'épaisseur facilement en cours d'expérience. Cela nécessite en effet le changement des cales. Il en résulte une modification des contraintes existant au niveau des lames ou de l'armature. En définitive, il faut deux ou trois jours pour que le système retrouve son équilibre et puisse être utilisé sans qu'il existe de dérives importantes. En pratique, cela signifie qu'il faudra au cours d'une série d'expériences utiliser le Perot-Fabry avec une distance fixe. Le problème est donc de choisir cette distance de telle sorte que l'on puisse avoir pour la gamme de champs de 80 kG disponible le maximum de situations où les raies issues des sous-niveaux Zeeman ne se chevauchent pas. Nous avons choisi de travailler avec un intervalle spectral libre de $2,65 \text{ cm}^{-1}$.

Selon les taux de transfert et les sous-niveaux Zeeman étudiés, on pourra avoir intérêt à adopter d'autres valeurs plus appropriées de l'intervalle spectral libre conduisant à des dispositions plus favorables. Les courbes obtenues en fonction du champ se présenteront sous la forme d'une succession de points expérimentaux séparés par des régions vides où la mesure avec la distance adoptée

est difficile ou impossible. Le changement de la distance impliquant des modifications des conditions expérimentales, nous n'avons pas cherché à le faire en particulier lors de l'étude toujours délicate des collisions résonnantes. Une solution à ce problème pourrait être l'utilisation de deux P.F. identiques calés à des distances différentes.

- C -

ETUDE EXPERIMENTALE DES COLLISIONS RESONNANTES

Na-Na^{*} EN CHAMP FORT1 - CONDITIONS DE L'ETUDE

La première étude a été faite sur une cellule scellée qui contenait quelques 10^{-3} torr de gaz résiduels. Cette valeur a été estimée par la méthode suivante. La température du queusot étant fixée à une valeur comprise entre 110 et 120°C, la diffusion multiple est quasiment négligeable. D'autre part à ces valeurs de la densité de l'ordre de 10^9 - 10^{10} at/cm³, le transfert entre niveaux de structure fine dû aux collisions résonnantes est totalement négligeable. Le taux de transfert réduit à la probabilité de désexcitation radiative des niveaux vaut en effet pour $N \approx 10^{10}$ at/cm³ de l'ordre de quelques 10^{-7} (PITRE et al. -1968). On observe de fait avec les cellules scellées utilisées à ces températures des taux de transfert entre les niveaux de structure fine valant de 10^{-2} à 10^{-3} Γ (Γ durée de vie radiative) qui correspondent à des pressions de gaz résiduels de l'ordre de 10^{-2} à 10^{-3} torr (PITRE et al. - 1967 ; SCHNEIDER - 1971). Pour pouvoir observer les effets des collisions résonnantes, il faudra donc choisir des températures telles que la densité de Sodium soit au moins de l'ordre de 10^{12} at/cm³. En première approximation le transfert entre les sous-niveaux Zeeman proviendra alors des collisions résonnantes Na^{*}-Na. Il subsistera néanmoins une petite contribution provenant des collisions Na^{*}-gaz résiduel dont les variations en fonction du champ seront beaucoup plus lentes.

Une seconde étude a été effectuée sur une cellule connectée à un banc de pompage. On a vérifié alors que pour des températures de l'ordre de 110 à 120°C, le taux de transfert entre niveaux de structure fine en champ nul est inférieur à 10^{-5} . On est donc sûr que la contribution des gaz résiduels est pratiquement éliminée mais il est difficile de déterminer correctement la pression de vapeur lors

des expériences. Cependant ce dernier point n'est pas essentiel dans la mesure où comme dans la partie I-C nous ne pouvons espérer déterminer la valeur absolue des sections efficaces en raison de l'importance de la diffusion multiple et des temps d'emprisonnement qui diffèrent notablement pour $N = 10^{12} \text{at/cm}^3$ de la durée de vie radiative des niveaux. La seule condition importante est que la densité reste constante lorsque l'on fait varier le champ de 0 à 80 kG.

Méthode d'étude

On excite continûment l'un des sous-niveaux Zeeman de l'état excité (cf. FIG 1 et partie III-B). On détecte les intensités de fluorescence réémises par ce niveau et par les sous-niveaux dans lesquels une partie de l'excitation a été transférée par collisions. On se heurte sensiblement aux mêmes problèmes que ceux évoqués lors de l'étude effectuée sur le Mercure. On ne peut pas normaliser les taux de transfert à leurs valeurs en champ nul dans la mesure où la diffusion multiple n'y a pas les mêmes caractéristiques qu'en champ fort. L'existence de la structure hyperfine impose par ailleurs de travailler dans des conditions où \vec{I} et \vec{J} sont découplés, dans des champs de l'ordre de 4 à 5 kG (ELBEL et SCHNEIDER 1973 ; FRANZ et al. - 1973). Ceci permet également d'éviter un certain nombre de difficultés comme par exemple l'existence d'effets de dispersion anormale (cf. § IV).

La méthode d'étude utilisée est la même que celle décrite dans le cas du Mercure (cf. § I-C). Pour une densité N fixée, on enregistre les variations en fonction du champ du rapport des intensités I_m/I_{m_0} où I_{m_0} est l'intensité de la fluorescence directe. On normalise ensuite à la valeur du rapport à 4 kG. En l'absence d'effets liés à l'inhomogénéité du champ sur l'emprisonnement et d'effets liés au transfert par les gaz résiduels ou provenant des termes de retour par collision négligeables dans nos conditions d'étude, les variations en fonction du champ ainsi obtenues doivent représenter les variations des taux de transfert et être indépendantes de la densité aux erreurs expérimentales près. Nous verrons cependant au § 3 qu'il faut nuancer ces affirmations en raison des effets provenant du découplage de \vec{L} et \vec{S} .

2 - RESULTATS

Les résultats obtenus à diverses densités avec une cellule scellée contenant quelques 10^{-3} torr de gaz résiduels sont présentés après normalisation sur la figure 3. On peut constater qu'il n'existe pas d'effets très nets prouvant l'existence de ces gaz dans la cellule. La situation expérimentale correspond à l'excitation du sous-niveau de structure fine $\tilde{J} = 1/2$ $M = -1/2$ ($\tilde{J} M$ désigne l'état propre du hamiltonien atomique qui tend vers $J M$ en champ nul). Le transfert s'effectue vers $\tilde{J} = 1/2$ $M = 1/2$ (le taux de transfert vers les niveaux $\tilde{J} = 3/2$ reste négligeable). L'expression du rapport des intensités de fluorescence de polarisations σ observées est alors donnée par la solution stationnaire de l'équation d'évolution des populations du niveau $\tilde{J} = 1/2$ $M = 1/2$. On obtient :

$$\rho = \frac{I_{\sigma}(\tilde{J}=1/2, M=1/2)}{I_{\sigma}(\tilde{J}=1/2, M=-1/2)} = \frac{\lambda(N) \cdot g^{(1/2 \ -1/2)}}{\Gamma^{(1/2)} + g^{(-1/2 \ 1/2)}} \quad (1)$$

où $\lambda(N)$ dépend de l'emprisonnement et de l'auto-absorption et $\Gamma^{(1/2)}$ est l'inverse du temps d'emprisonnement de l'excitation dans le sous-niveau $M = +1/2$.

Dans les conditions où l'on a travaillé, on a :

$$\Gamma^{(1/2)} \gg g^{(-1/2 \ 1/2)}$$

L'expression (1) suppose que l'on a défini un taux moyen de transfert par collision entre les deux sous-niveaux Zeeman de l'état excité car l'atome de Sodium perturbateur à l'état fondamental peut être dans deux sous-niveaux différents. Nous reviendrons sur ce point au § 3 et dans l'annexe théorique à cette partie.

Les résultats expérimentaux obtenus dans la FIG 3 montrent que les variations de ρ en fonction du champ sont d'environ un facteur 3 entre 4 kG et 80 kG. On donne dans la figure 4 les courbes $\rho(N, H)$ obtenues avec une cellule montée sur banc de pompage lors d'une étude préliminaire. Il semble que les variations avec le champ soient dans ce cas un peu plus importantes. (Variations d'un facteur 2,7 entre 10 et 70 kG et seulement d'un facteur 2,3 dans la figure 3).

A ces densités de Sodium de l'ordre de 4.10^{12} at/cm³, les collisions de transfert entre niveaux de structure fine sont négligeables, du moins tant que le champ magnétique ne dépasse pas des valeurs de l'ordre de 100 kG. Il n'est cependant pas possible d'admettre que le niveau $j = 1/2$ est isolé du niveau $j = 3/2$ pendant la collision puisqu'il peut exister différents effets, par exemple ceux résultant du découplage de \vec{L} et \vec{S} par le champ qui introduiront un mélange des fonctions d'ondes des deux niveaux.

D'autres résultats ont été obtenus en cellule scellée par excitation des sous-niveaux Zeeman du niveau $j = 3/2$. Qualitativement, on peut dire qu'ils confirment la décroissance observée dans le cas particulier précédent. Cependant une interprétation théorique détaillée des phénomènes exigera la résolution du problème de collisions selon les méthodes développées au § I-B, et d'autre part des estimations des effets de l'emprisonnement qui peut dans les conditions précédentes dépendre du champ magnétique comme nous le verrons au § 3.

Nous allons nous borner à interpréter qualitativement les résultats obtenus précédemment et à mettre en évidence un certain nombre de caractéristiques qui compliquent l'interprétation des expériences.

3 - ELEMENTS D'INTERPRETATION

L'étude théorique des collisions résonnantes en champ fort, dans le cas du Sodium, développée selon les méthodes de la partie I-B (potentiel dipôle-dipôle en R^{-3}) est en cours. Mais elle nécessite un assez lourd travail de programmation lorsque l'on tient compte des possibilités de transfert entre niveaux de structure fine ce qui présente un intérêt puisque l'on dispose en laboratoire de champs assez intenses pour pouvoir observer le croisement de certains sous-niveaux Zeeman issus des deux niveaux de structure fine (à 164 kG en particulier). Les seuls résultats théoriques dont on dispose actuellement sont ceux obtenus par un calcul asymptotique de la matrice de collision que nous reproduisons dans l'annexe à cette partie et qui nous servira à caractériser les différents phénomènes en présence.

L'ordre de grandeur du champ critique pour les collisions résonnantes Na-Na* peut être calculé à partir de la formule (15) de la partie I-B, en négligeant

les effets provenant de l'existence de la structure fine. Pour une température de 500 °K, l'énergie caractéristique ΔE_a (cf. partie I-B) vaut 11,7 GHz. Le champ critique pour le niveau $P_{1/2}$ a donc une valeur comprise entre 2 et 11 kG selon la transition du système à deux atomes considérée (cf. § 3-2). La situation est donc assez analogue à celle que l'on rencontre dans les collisions $\text{Hg}^*(6^3P_1)\text{-Hg}$.

3-1-Effets de découplage de \vec{L} et \vec{S} .

Le découplage de \vec{L} et \vec{S} sous l'action du champ affecte les intensités réémises par les différents sous-niveaux de structure fine. La probabilité de transition radiative de l'état excité ($\tilde{J} M$) vers l'état fondamental ($j m$) qui vaut $|\langle j m | P | \tilde{J} M \rangle|^2$ dépend en effet de la valeur du champ. Le rapport des intensités de fluorescence mesurées dépend donc de cet effet sans intérêt, qu'il est en général facile de corriger. Par exemple, dans le cas du transfert entre les niveaux ($\tilde{J} = 1/2 \quad M = -1/2$) et ($\tilde{J} = 1/2 \quad M = 1/2$) le rapport des probabilités de transition vaut :

$$\frac{|\langle j=1/2 \quad m=-1/2 | P | \tilde{J}=1/2 \quad M=1/2 \rangle|^2}{|\langle j=1/2 \quad m=1/2 | P | \tilde{J}=1/2 \quad M=-1/2 \rangle|^2} = \left(1 + \frac{8}{9} \frac{\omega}{A}\right) \quad (\omega \ll A) \quad (2)$$

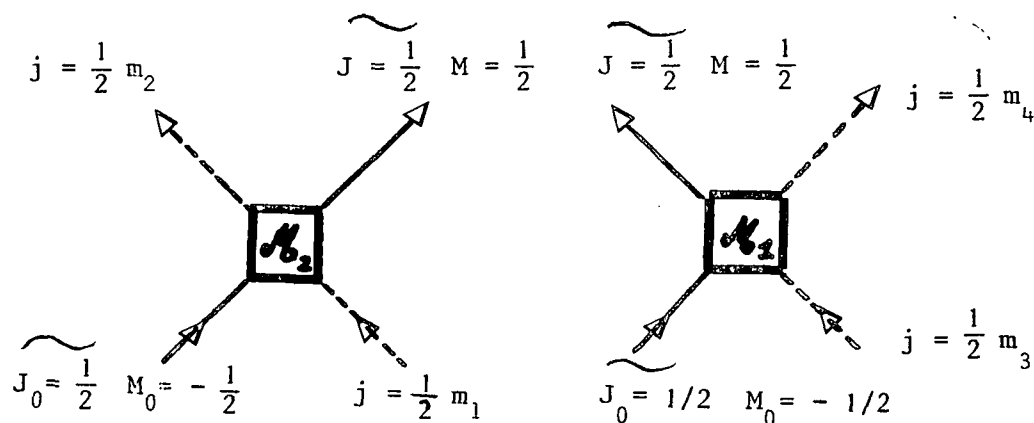
comme on peut le calculer en utilisant l'expression des états propres donnée dans l'annexe. Ceci introduit une croissance du rapport de ces intensités de l'ordre de 30% à 80 kG. Les courbes des figures 3 et 4 ne sont pas corrigées de cet effet. Il semble donc que les variations des taux de transfert en fonction du champ soient encore plus importantes que celles obtenues dans les figures 3 ou 4.

Cependant la méthode de correction utilisant la formule (2) n'est valable qu'à très basse température pour les expériences que nous avons effectuées avec les gaz rares (cf. § III-D). Elle n'est pas applicable aux expériences effectuées sur les collisions résonnantes. Pour s'en convaincre, il suffit de remarquer que l'emprisonnement dans la vapeur dépend de l'épaisseur optique du milieu. La variation avec le champ de la probabilité de transition vers le niveau fondamental entraînera donc une variation de l'épaisseur optique du milieu et une variation des temps d'emprisonnement. En l'absence d'effets de l'inhomogénéité du champ, les paramètres de la diffusion multiple dépendent donc de la valeur du champ par l'intermédiaire de ces effets de découplage. Il n'est évidemment pas possible

actuellement d'effectuer de façon précise la correction de ces effets. On doit cependant remarquer que les effets de la variation des probabilités de transition avec le champ doivent partiellement se compenser en ce qui concerne l'emprisonnement : si la probabilité de réabsorption des photons σ issus d'un sous-niveau diminue, celle des photons π issus du même sous-niveau augmente et réciproquement. Il est donc probable que les variations observées en fonction du champ dans les figures 3 et 4 peuvent être attribuées pour l'essentiel aux variations du taux de transfert $g^{(1/2 - 1/2)}$ avec le champ. Il est une situation particulièrement intéressante qui nous permet d'emblée d'exclure la possibilité de trop grands effets parasites. C'est celle du transfert entre les sous-niveaux $m = \pm 3/2$ et $m = \mp 3/2$. L'emprisonnement de l'excitation s'effectue alors indépendamment de la valeur du champ. On a observé expérimentalement (expériences dans une cellule scellée) dans ce cas une décroissance très importante du taux de transfert $g^{(3/2 - 3/2)}$ avec le champ entre 0 et 80 kG. La décroissance est beaucoup plus rapide que celle de $g^{(1/2 - 1/2)}$ aux petites valeurs du champ ce qui se comprend bien puisque l'écart d'énergie entre les niveaux varie 3 à 4 fois plus vite avec le champ.

3-2-Dépendance en fonction du champ des diverses contributions asymptotiques au transfert

La situation théorique dans le cas du Sodium n'est pas aussi simple que celle du Mercure dans le niveau 6^3P_1 . En raison du moment cinétique $j = 1/2$ de l'état fondamental, l'atome perturbateur peut posséder deux états de polarisation. Nous noterons $|j m_1\rangle$ l'état du perturbateur et $|J_0 M_0\rangle$ l'état initial (perturbé par le champ) de l'atome excité (atome 1). Il existe plusieurs processus conduisant au transfert de l'excitation du sous-niveau M_1 au sous-niveau M de l'atome excité selon les états initial et final de l'atome à l'état fondamental. (cf. par exemple CARRINGTON et al. -1973). C'est ainsi que l'on peut schématiser les différentes contributions possibles dans le cas du transfert de la population du niveau $(\tilde{J}_0 = 1/2 \ M_0 = -1/2)$ vers le niveau $(\tilde{J} = 1/2 \ M = 1/2)$ par les diagrammes suivants :



où les carrés désignent les matrices de relaxation pour les atomes 1 et 2 (cf. § I-B) et m_1, m_2, m_3, m_4 prennent les valeurs $\pm 1/2$. Il existe donc dans les deux groupes de contribution (où l'on néglige les corrélations entre les atomes avant et après la collision) plusieurs termes conduisant au transfert de la population entre les sous-niveaux $M_0 = -1/2$ et $M = +1/2$. A ces différents termes vont correspondre des probabilités de transfert différentes puisque les éléments de matrice et les différences d'énergie entre les niveaux du système à deux atomes (cf. FIG 5) impliqués dans le processus sont différents en présence du champ magnétique.

Pour illustrer ce point nous donnons ci-dessous les éléments de la matrice de relaxation dans le cas du transfert $(\tilde{J}_0 = 1/2, M_0 = -1/2) \rightarrow (\tilde{J} = 1/2, M = 1/2)$ calculés par la méthode asymptotique de l'annexe ; nous négligerons ici les effets du découplage de \vec{L} et \vec{S} . Pour une valeur du paramètre d'impact et du champ, au second ordre de perturbation en q ($q \propto \frac{1}{b^2 v}$, cf. § I-B), la matrice \mathcal{M}_1 ne contient pas de termes contribuant au transfert de l'excitation entre les sous-niveaux Zeeman de l'atome 1. Les éléments de la matrice \mathcal{M}_2 sont donnés par les expressions :

$$\Pi(M=-1/2, m=1/2 \rightarrow M=1/2, m=1/2) = -\frac{2}{45} q^2 f_1(g_e \eta) \quad (3-1)$$

$$\Pi(M=-1/2, m=1/2 \rightarrow M=1/2, m=-1/2) = -\frac{4}{3 \cdot 45} q^2 f_1[(g_f - g_e)\eta] \quad (3-2)$$

$$\Pi(M=-1/2, m=-1/2 \rightarrow M=1/2, m=-1/2) = -\frac{2q^2}{45} f_1(g_e \eta) \quad (3-3)$$

$$\Pi(M=-1/2, m=-1/2 \rightarrow M=1/2, m=1/2) = -\frac{8q^2}{45} f_1[(g_f + g_e)\eta] \quad (3-4)$$

$f_1(\omega)$ est la fonction introduite (cf. § I-B - Appendice 2) par TSAO et CURNUTTE (1962). η est proportionnel* au champ magnétique ; g_e et g_f sont les facteurs de Landé respectivement de l'état excité (2/3) et de l'état fondamental (2). Les relations (3) permettent de mettre en évidence qu'en champ nul les divers processus ont des poids relatifs différents et que leur dépendance en fonction du champ magnétique n'est pas la même. Il est probable par exemple que le processus 3-4 disparaîtra dès les petites valeurs du champ tandis que 3-1 et 3-3 évolueront beaucoup plus lentement en fonction du champ. Remarquons que les relations (3) permettent de constater que la notion de champ critique perd toute signification lorsque la situation physique se complique un peu. On obtiendrait selon le pro-

* $\eta = \frac{\omega b}{v} = \frac{\mu_B \cdot B \cdot b}{v}$

cessus choisi dans (3) des valeurs comprises entre 2 et 11 kG. Il faut également noter qu'une dépendance en champ supplémentaire provient des effets de découplage. Ceci est traité dans le cas général dans l'annexe.

En pratique l'exemple simple précédent permet de mettre en évidence les caractéristiques de la relaxation par collisions résonnantes dans le cas du Sodium. Le taux de transfert moyen entre deux sous-niveaux Zeeman de l'état excité dépend dans le cas général de la population des sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental. L'analyse des résultats expérimentaux est donc beaucoup moins simple que dans le cas du Mercure. Mais en pratique, dans la mesure où la thermalisation de l'état fondamental doit être réalisée dans les conditions expérimentales adoptées, les populations des sous-niveaux Zeeman doivent obéir à la loi de Boltzmann ; pour des champs de 80 kG, $e^{-W/kT}$ vaut au minimum 0,98 et l'on peut admettre que les populations des deux sous-niveaux du fondamental sont égales. Le taux de transfert moyen entre deux sous-niveaux Zeeman de l'état excité est alors donné simplement par la moyenne des taux associés aux divers processus conduisant au transfert. Il serait cependant intéressant d'effectuer des études dans le cas où les atomes "perturbateurs" sont polarisés.

En l'absence d'un calcul numérique complet, il est difficile de poursuivre plus avant cette discussion qui nous a permis de dégager quelques unes des idées directrices qui doivent guider l'analyse théorique et expérimentale du problème.

- D -

ETUDE DES COLLISIONS SODIUM-GAZ RARES

1 - PRINCIPE ET CONDITIONS EXPERIMENTALES

L'étude expérimentale est effectuée à des températures de l'ordre de 110°C correspondant à des densités de Sodium de 10^{10} at/cm³. La diffusion multiple est dans ces conditions négligeable.

L'étude présente deux aspects. Le premier concerne la mesure des sections efficaces de transfert entre les différents sous-niveaux Zeeman en champ faible. Ceci permet de déterminer expérimentalement pour la première fois la totalité des coefficients de relaxation de l'état excité. Les mesures antérieures effectuées par effet Hanle ne permettent pas d'atteindre tous les coefficients, en particulier le coefficient de relaxation $\gamma^{(3)}$ de l'octupôle du niveau $J = 3/2$. Cette constante peut par contre être déterminée par l'étude des taux de transfert entre les différents sous-niveaux Zeeman. Dans ce type d'expériences où les sous-niveaux Zeeman doivent être bien séparés en énergie et où il faut découpler \vec{I} et \vec{J} pour simplifier l'interprétation des résultats, la bobine supraconductrice joue un rôle secondaire en fournissant le champ nécessaire à la création de situations où les raies issues des différents sous-niveaux Zeeman sont bien séparées.

Le second aspect de l'étude qui n'a pas encore été systématiquement développé est la recherche d'éventuelles variations des sections efficaces de transfert en fonction du champ. De ce point de vue, la situation n'est pas à priori très favorable dans la mesure où la vitesse moyenne des atomes de Sodium est plus grande que celle du Mercure pour des sections efficaces de transfert ayant sensiblement le même ordre de grandeur. En utilisant la définition du § II-B et les sections efficaces de relaxation de l'orientation du niveau 3/2 mesurées par ELBEL et al. (1972), on obtient des valeurs des champs critiques valant de l'Hélium au Xénon

180, 110, 67, 58 et 51 kG. A cette situation à priori peu favorable compte tenu du champ maximum de 80 kG dont nous disposons s'adjoint la complication qu'introduit la variation avec le champ des probabilités de désexcitation radiative vers le niveau fondamental en raison du découplage de \vec{L} et \vec{S} .

Les études ont été effectuées à différentes pressions de gaz rares. Les pressions sont suffisamment faibles pour que la correction des termes de retour par collision, ou de collisions multiples soient négligeables. Dans ces conditions, le rapport des intensités mesurées dépend linéairement de la pression de gaz rare. On en déduit la valeur de la section efficace de transfert entre les sous-niveaux considérés. Les mesures sont répétées à différentes valeurs du champ (6, 16, 24 et 50 kG) de façon à mettre en évidence une éventuelle dépendance.

L'ensemble des résultats expérimentaux obtenus est rapporté dans un article soumis à Z.F. Physik (J.C. GAY et W.B. SCHNEIDER - 1976). Nous nous bornons ici à discuter un aspect particulièrement intéressant de l'étude qui concerne le transfert de l'excitation entre les sous-niveaux Zeeman $m = 3/2$ et $m = -3/2$.

2 - SECTION EFFICACE DE TRANSFERT ($J = 3/2 \pm 3/2 \rightarrow J = 3/2 \mp 3/2$) EN CHAMPS FAIBLES.

L'intérêt de l'étude du transfert d'excitation entre les sous-niveaux $m = \pm 3/2$ résulte du fait que le transfert exige simultanément au cours de la collision un renversement du moment angulaire et du spin électronique. Dans l'hypothèse grossière où l'interaction est de nature purement orbitale et où la durée de la collision est suffisamment courte pour que le spin électronique et le moment orbital n'aient pas le temps de se coupler, la section efficace de transfert entre les niveaux $m = -3/2$ et $m = 3/2$ est nulle. Ceci est assez bien vérifié dans le cas des collisions Sodium-Hélium (cf. Tableau 1), en raison de la très grande vitesse relative des deux atomes. Par contre, la situation est extrêmement différente dans le cas des collisions avec les gaz rares lourds pour lesquels les valeurs mesurées pour la section efficace de transfert $m = \pm 3/2 \rightarrow m = \mp 3/2$ atteignent des valeurs très importantes comparables à celles des autres sections efficaces de transfert. On peut attribuer ce comportement à l'augmentation de la durée T_c de la collision provenant d'une part de la vitesse relative plus petite des atomes lourds et d'autre part de leur plus grande polarisabilité.

Ainsi, dans les collisions Na^*-Xe , \vec{L} et \vec{S} ont le temps de se coupler pendant la longue durée de la collision, ce que l'on peut traduire par la condition

$$A \cdot T_c \gtrsim 1$$

où A est la constante de structure fine du Sodium.

Dans les collisions du Sodium avec les atomes lourds, le spin électronique est donc affecté par l'intermédiaire du couplage (\vec{L}, \vec{S}) et de la perturbation du moment angulaire orbital. A la limite où la durée de la collision est très longue, la condition

$$A \cdot T_c \gg 1$$

est réalisée. Il reste pendant la durée de celle-ci un bon nombre quantique de sorte que le transfert entre $m = \pm 3/2$ est très probable.

L'étude expérimentale permet d'illustrer de façon spectaculaire l'importance de la durée T_c de la collision dans les collisions thermiques du Sodium avec les différents gaz rares (cf. Tableau 1). Pour les gaz rares légers la condition

$$A \cdot T_c \ll 1$$

est vérifiée et le transfert entre les sous-niveaux $3/2$ et $-3/2$ est très peu probable comparé aux autres possibilités de transfert. \vec{L} et \vec{S} n'ont pas le temps de se coupler pendant la durée de la collision. Au contraire, pour les gaz rares lourds, $A \cdot T_c$ est de l'ordre de quelques unités et le taux de transfert entre les sous-niveaux $3/2$ et $-3/2$ est de l'ordre de grandeur des autres taux de transfert. \vec{L} et \vec{S} sont couplés pendant la collision. Cette analyse reste cependant très schématique et suppose que les phénomènes ont lieu à longue distance en l'absence de croisements ou d'anticroisements des courbes de potentiel.

Les expériences précédentes illustrent en définitive un autre aspect de l'idée directrice de ce travail. Au lieu de faire varier l'écart d'énergie entre les sous-niveaux Zeeman, on fait varier la durée de la collision en changeant la nature du gaz rare perturbateur. Notons cependant que le changement de la nature du gaz rare perturbateur ne se traduit pas seulement par un changement de la vitesse relative des atomes en collision mais aussi par un changement des caractéristiques du potentiel d'interaction avec le Sodium. (Par exemple J.PASCALE et al. - 1974).

La comparaison des résultats théoriques et expérimentaux ne peut être faite que dans le cas de l'Hélium. L'imprécision des mesures ne permet pas de distinguer entre les valeurs des trois approches théoriques de MASNOU et al. (1972), WILSON et al. (1975) et REID (1973).

3 - DEPENDANCE EN FONCTION DU CHAMP DE LA SECTION EFFICACE DE TRANSFERT ENTRE LES SOUS-NIVEAUX $\pm 3/2$

La situation expérimentale pour la mesure du transfert $M = \pm 3/2 \rightarrow M = \mp 3/2$ est simple, puisqu'il n'existe pas d'effets de découplage nécessitant la correction des valeurs des intensités mesurées.

La dépendance en fonction du champ (cf. Tableau 1) de $\sigma(J = 3/2 \pm 3/2 \rightarrow J = 3/2 \mp 3/2)$ est faible excepté peut-être pour les gaz rares les plus lourds. Mais les variations observées sont de l'ordre de grandeur des incertitudes expérimentales et il faudra de nouvelles études plus systématiques pour décider de l'origine des variations.

- E -

EXTENSIONS

Les résultats des différentes expériences préliminaires concernant la dépendance en fonction du champ des taux de transferts dans les collisions résonnantes et non résonnantes sont donc soit peu précis, soit d'interprétation difficile. Il est donc clair que ces expériences devront être reprises. Parallèlement l'étude théorique devra être développée, sur le plan des collisions mais aussi sur le plan de l'emprisonnement à l'aide des méthodes décrites au § IV. La richesse de la situation qu'offre le Sodium permettra une ample comparaison théorie-expériences mais elle exigera de surmonter un certain nombre de difficultés que nous avons signalées.

L'extension des études à de plus hautes valeurs du champ dans les régions de croisements des sous-niveaux Zeeman du système à un ou deux atomes (cf. FIG 1 - FIG 5) doit permettre, en particulier dans le cas des collisions résonnantes, un test important des modèles théoriques adoptés pour le potentiel. Les croisements possibles (à 86, 103, 125, 164, 245 ... kG) font intervenir des sous-niveaux Zeeman issus des deux niveaux de structure fine. En champ nul, le transfert de structure fine est difficile à étudier expérimentalement dans le cas des collisions Na-Na^* (PITRE et al. - 1968). Par contre, en champ fort ce sera plus aisé puisque le transfert est résonnant au voisinage des croisements.

L'extension des études précédentes au cas des Alcalins lourds est possible et devrait apporter nombre de résultats expérimentaux qui font actuellement défaut. La situation théorique sera dans ce cas un peu plus simple car la structure fine est plus grande que celle du Sodium et la relaxation du niveau $j = 3/2$ se fera indépendamment de celle du niveau $1/2$. Les effets du découplage de L et S seront également beaucoup moins importants.

★ ANNEXE ★

• Etats propres et valeurs propres du Hamiltonien

En champ magnétique nul, les états propres du hamiltonien atomique sont du type $|L S J M \rangle$. Le champ magnétique provoque un découplage de \vec{L} et \vec{S} . L'état propre qui tend en champ nul vers $|L S J M \rangle$ sera noté $|\tilde{J} M \rangle$

Le Hamiltonien de l'état excité s'écrit :

$$\mathcal{H}_e = A \vec{L} \cdot \vec{S} + \mu_B (\vec{L} + 2\vec{S}) \cdot \vec{H}$$

Il commute avec la projection de \vec{J} sur la direction de \vec{H} . Posant

$$\omega = \mu_B \cdot H$$

$$\text{tg } \theta_{\frac{1}{2}} = - \frac{2\sqrt{2}}{3} \frac{\omega}{\frac{3A}{2} \pm \frac{\omega}{3}}$$

On obtient après un calcul simple l'expression des états propres du Hamiltonien pour des états 2p.

$$|\tilde{\frac{3}{2}} \pm \frac{3}{2} \rangle = |\frac{3}{2} \pm \frac{3}{2} \rangle$$

$$|\tilde{\frac{3}{2}} \pm \frac{1}{2} \rangle = \cos(\theta_{\frac{1}{2}}/2) |\frac{3}{2} \pm \frac{1}{2} \rangle + \sin(\theta_{\frac{1}{2}}/2) |\frac{1}{2} \pm \frac{1}{2} \rangle$$

$$|\tilde{\frac{1}{2}} \pm \frac{1}{2} \rangle = -\sin(\theta_{\frac{1}{2}}/2) |\frac{3}{2} \pm \frac{1}{2} \rangle + \cos(\theta_{\frac{1}{2}}/2) |\frac{1}{2} \pm \frac{1}{2} \rangle$$

Les énergies associées sont :

$$E(\tilde{\frac{3}{2}} \pm \frac{3}{2}) = \frac{A}{2} \pm 2\omega$$

$$E(\tilde{\frac{3}{2}} \pm \frac{1}{2}) = \frac{1}{2} [(\pm\omega - \frac{A}{2}) + (\omega^2 \pm A\omega + \frac{9}{4} A^2)^{1/2}]$$

$$E\left(\frac{1}{2} \pm \frac{1}{2}\right) = \frac{1}{2} \left[(\pm\omega - \frac{A}{2}) - (\omega^2 \pm A\omega + \frac{9}{4} A^2)^{1/2} \right]$$

• Expressions asymptotiques des taux de transfert par collisions résonnantes.

Le problème du calcul des taux de transfert dans les collisions résonnantes Na-Na^{*} est un peu plus compliqué que dans le cas des collisions Hg-Hg^{*} en raison de l'existence du spin électronique. Cependant le principe du calcul reste identique à celui exposé dans l'appendice 2 de la partie I-B.

On notera \mathcal{H}_e le Hamiltonien correspondant aux niveaux de structure fine des atomes et \mathcal{H}_f , le Hamiltonien Zeeman dans l'état fondamental.

$$\mathcal{H}_e = A \vec{L} \cdot \vec{S} + \mu_B (\vec{L} + 2\vec{S}) \cdot \vec{H}$$

$$\mathcal{H}_f = g_f \cdot \omega \cdot m_j = 2\mu_B \vec{S} \cdot \vec{H}$$

L'expression des matrices de collision au second ordre de l'interaction est, l'indice 1 désignant l'atome excité et l'indice 2 l'atome à l'état fondamental, et $P(x)$ le potentiel dipôle-dipôle en R^{-3} :

$$S_2 = -i \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i\frac{b}{v}x(\mathcal{H}_{f_1} + \mathcal{H}_{e_2})} P(x) e^{-i\frac{b}{v}x(\mathcal{H}_{e_1} + \mathcal{H}_{f_2})} dx$$

$$S_1 = 1 - \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^x e^{i\frac{b}{v}x(\mathcal{H}_{e_1} + \mathcal{H}_{f_2})} P(x) e^{-i\frac{b}{v}x(\mathcal{H}_{f_1} + \mathcal{H}_{e_2})} \\ e^{i(\mathcal{H}_{f_1} + \mathcal{H}_{e_2})\frac{bx'}{v}} P(x') e^{-i\frac{b}{v}x'(\mathcal{H}_{e_1} + \mathcal{H}_{f_2})} dx dx'$$

Les taux de transfert par collisions sont calculés au second ordre de l'interaction dans la base des états propres des Hamiltoniens \mathcal{H}_e et \mathcal{H}_f . La situation présente est plus compliquée que celle du Mercure dans la mesure où il peut exister dans l'état initial ou dans l'état final, deux états différents de l'atome au fondamental. On définira donc les taux de relaxation par collision de la façon suivante, où les indices jm désignent l'état de l'atome au fondamental et \widetilde{JM} l'état de l'atome excité :

$$\Pi \left(\widetilde{J}'_1 M'_1, j_2 m'_2; \widetilde{J}''_1 M''_1, j_2 m''_2 \right) \left(\widetilde{J}_1 M_1, j_2 m_2; \widetilde{J}'''_1 M'''_1, j_2 m'''_2 \right) (i) = \delta_{i_1} \delta_{m_2 m'_2} \delta_{M_1 M'_1} \delta_{M_1 M''_1} \delta_{m_2 m'''_2} -$$

$$\text{Tr} \left\{ \left[\left| \widetilde{J}'_1 M'_1, j_2 m'_2 \right\rangle \langle \widetilde{J}''_1 M''_1, j_2 m''_2 \right| \right]^\dagger S_i \left| \widetilde{J}_1 M_1, j_2 m_2 \right\rangle \langle \widetilde{J}'''_1 M'''_1, j_2 m'''_2 \right| S_i^\dagger \right\} \text{ANG}$$

On ne s'intéressera qu'aux taux de transfert de la population entre les différents sous-niveaux Zeeman.

Il est facile alors de montrer qu'à l'ordre 2 en interaction les probabilités de transfert $\Pi(1)$ entre sous-niveaux Zeeman différents sont nulles. Les coefficients $\Pi(2)$ sont par contre différents de 0. On obtient en simplifiant les notations :

$$\Pi(\widetilde{J}_1 M_1, j_2 m_2 \rightarrow j_1 m_1, \widetilde{J}_2 M_2) = - \left\{ \left| \langle j_1 m_1, \widetilde{J}_2 M_2 | S_2 | \widetilde{J}_1 M_1, j_2 m_2 \rangle \right|^2 \right\} \text{ANG}$$

La base propre du hamiltonien \mathcal{H}_e n'est pas irréductible par rapport au groupe des rotations. Ceci complique les moyennes angulaires. Il est commode de décomposer les états propres $|\widetilde{J} M\rangle$ sur une base $|J M\rangle$ irréductible par rapport au groupe des rotations :

$$|L_1 S_1 \widetilde{J}_1 M_1\rangle = \sum_{J'_1} a(J_1 J'_1 M_1) |L_1 S_1 J'_1 M_1\rangle$$

On se ramène ensuite aux expressions utilisées dans l'appendice 2 de la partie I-B ou dans l'appendice 2 de § II-B. La moyenne angulaire permet d'introduire la fonction $f_1(\eta)$ définie par TSAO et CURNUTTE (1962).

On obtient en définitive :

$$\Pi(\widetilde{J}_1 M_1, j_2 m_2 \rightarrow j_1 m_1, \widetilde{J}_2 M_2) = \frac{4}{45} \left\{ \frac{|\langle 0 \| P \| 1 \rangle|^2}{b^2 v} \right\}^2 \sum_{\substack{J'_1 J''_1 \\ J'_2 J''_2}} (-)^{2J'_1 + 2J''_1 + J'_2 + J''_2} (2J'_1 + 1)^{1/2} (2J''_1 + 1)^{1/2}$$

$$a(J_1 J'_1 M_1) a^*(J_2 J'_2 M_2) a^*(J_1 J''_1 M_1) a(J_2 J''_2 M_2) \langle 2q | 11 q_1 q_2 \rangle^2 \langle j_1 m_1 | J'_1 M_1 q_1 \rangle$$

$$\langle J'_2 M_2 | j_2 m_2 q_2 \rangle \langle j_1 m_1 | J''_1 M_1 q_1 \rangle \langle J''_2 M_2 | j_2 m_2 q_2 \rangle f_1(\eta_0)$$

avec
$$\eta_0 = \frac{b}{v} \left[g_f(m_2 - m_1)\omega + E(\widetilde{J}_1 M_1) - E(\widetilde{J}_2 M_2) \right]$$

L'expression des coefficients a est obtenue à partir du développement des vecteurs propres sur la base $|L S J M \rangle$:

$$a\left(\frac{3}{2} \frac{3}{2} \frac{1}{1}\right) = \cos(\theta_1/2) \qquad a\left(\frac{3}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2}\right) = \sin(\theta_1/2)$$

$$a\left(\frac{3}{2} \frac{3}{2} -\frac{1}{2}\right) = \cos(\theta_2/2) \qquad a\left(\frac{3}{2} \frac{1}{2} -\frac{1}{2}\right) = \sin(\theta_2/2)$$

$$a\left(\frac{1}{2} \frac{3}{2} \frac{1}{2}\right) = -\sin(\theta_1/2) \qquad a\left(\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2}\right) = \cos(\theta_1/2)$$

$$a\left(\frac{1}{2} \frac{3}{2} -\frac{1}{2}\right) = -\sin(\theta_2/2) \qquad a\left(\frac{1}{2} \frac{1}{2} -\frac{1}{2}\right) = \cos(\theta_2/2)$$

P est le dipôle électrique de la transition.

Les expressions précédentes font apparaître deux points importants : la dépendance en énergie du taux de transfert est contenue dans la fonction $f_1(\eta_0)$ dont l'argument η_0 dépend de la différence d'énergie entre l'état initial et l'état final du système à deux atomes (cf. FIG 5). Ceci permet de mettre en évidence que l'état initial et l'état final de l'atome au fondamental jouent un rôle important dans le transfert par collision dans la mesure où leurs énergies interviennent directement dans la fonction $f_1(\eta_0)$. Le second terme est un terme angulaire qui dépend du découplage de \vec{L} et \vec{S} sous l'action du champ par l'intermédiaire des coefficients a .

On peut démontrer que les 132 coefficients de transfert obéissent à des relations de symétrie, en particulier à celle résultant de l'invariance de rotation dans la direction \vec{H} . L'extension des relations démontrées au § I-B est possible dans le cas où l'on suppose que la structure fine n'est pas découplée. Si tel n'est pas le cas, on peut s'assurer par exemple sur la forme asymptotique des coefficients que le changement des signes de M et m ne conduit pas à une relation simple entre les coefficients puisque la valeur du paramètre η_0 est changée de façon non symétrique dans cette transformation.

• Comportement asymptotique des taux de transfert en fonction de la différence d'énergie entre les niveaux

Lorsque l'on néglige le découplage de \vec{L} et \vec{S} , la dépendance en fonction du champ des taux de transfert est contenue toute entière dans le terme en $f_1(\eta_0)$. On a tracé sur la figure 5 les niveaux d'énergie du système à deux atomes supposés sans interaction (avant ou après la collision) correspondant aux états propres $|\tilde{J} M, j m\rangle$ du Hamiltonien total. Le diagramme des niveaux d'énergie présente deux croisements pour un même état de l'atome au fondamental, correspondant au croisement des sous-niveaux $M = -\frac{3}{2}$ avec $\tilde{J} = \frac{1}{2}$ $M = \pm \frac{1}{2}$. Les valeurs du champ aux points de croisements sont de 164 et 245 kG. Il existe d'autres possibilités de croisements entre niveaux d'énergie du système à deux atomes pour un état différent de l'atome au fondamental avant et après la collision. Ces croisements se produisent à 86 et 103 kG, 128 kG et 172 kG. Ceci peut conduire à des situations intéressantes dans la mesure où pour ces valeurs des champs une partie du processus de transfert devient résonnant.

LEGENDES DES FIGURES

FIG 1 - Niveaux d'énergie du sodium (3p) en champ fort en fonction de $x = \mu_B \cdot B/A$

FIG 2 - Schéma de principe du montage expérimental

FIG 3 - Variations avec le champ du rapport $\rho(H)$ des intensités de fluorescence normalisé à la valeur à 4 kG, pour différentes valeurs de la densité, dans le cas du transfert $\tilde{J} = \frac{1}{2} \quad m = -\frac{1}{2} \rightarrow \tilde{J} = \frac{1}{2} \quad m = \frac{1}{2}$

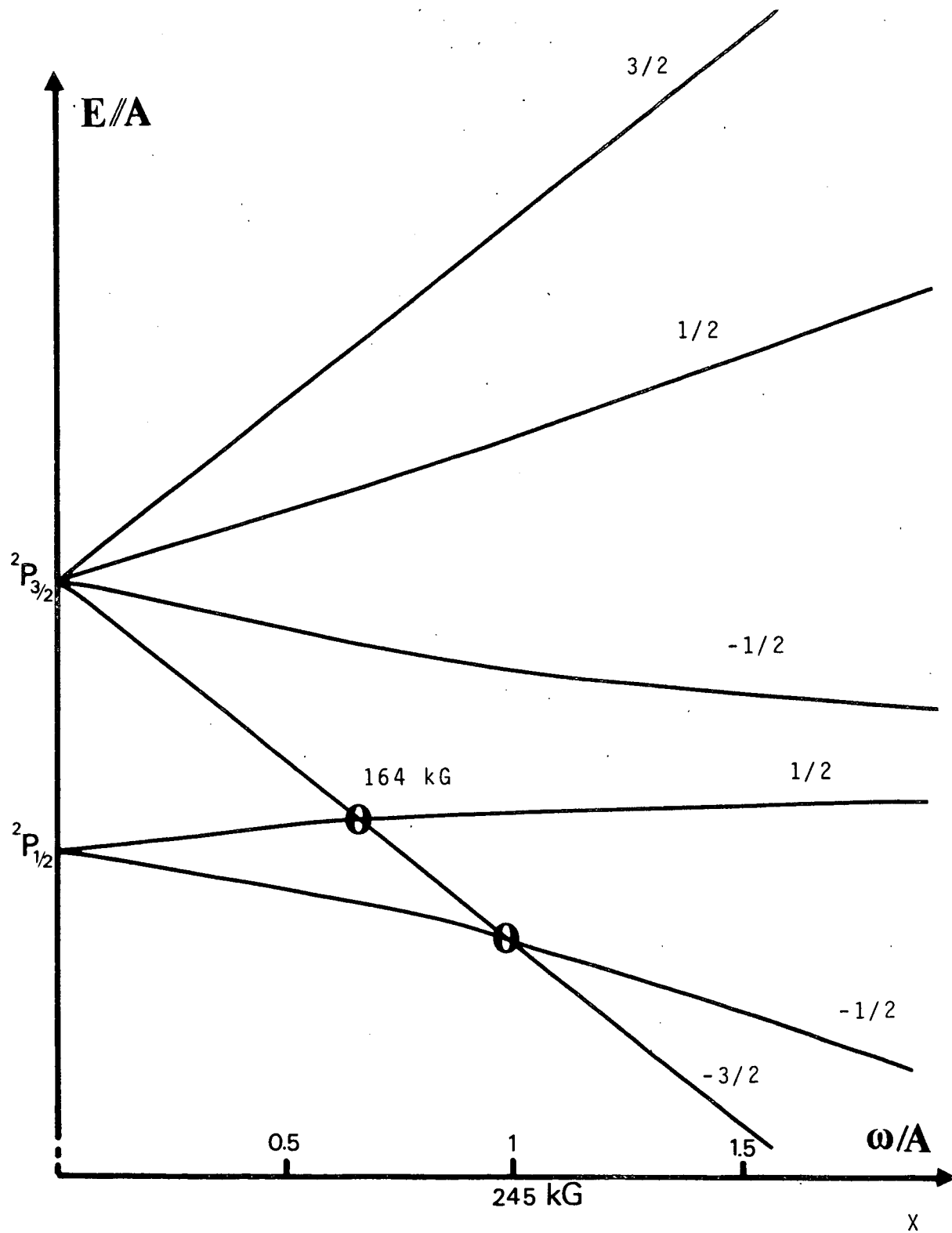
FIG 4 - Collisions résonnantes Na-Na^{*}. Variations en fonction du champ du rapport des intensités de polarisations σ issues des sous-niveaux Zeeman $\tilde{J} = \frac{1}{2}$ $m = \frac{1}{2}$ et $\tilde{J} = \frac{1}{2}$ $m = -\frac{1}{2}$ pour deux valeurs de la densité de Sodium (cellule montée sur banc de pompage).

FIG 5 - Niveaux d'énergie du système à deux atomes en fonction de $x = \mu_B \cdot B/A$

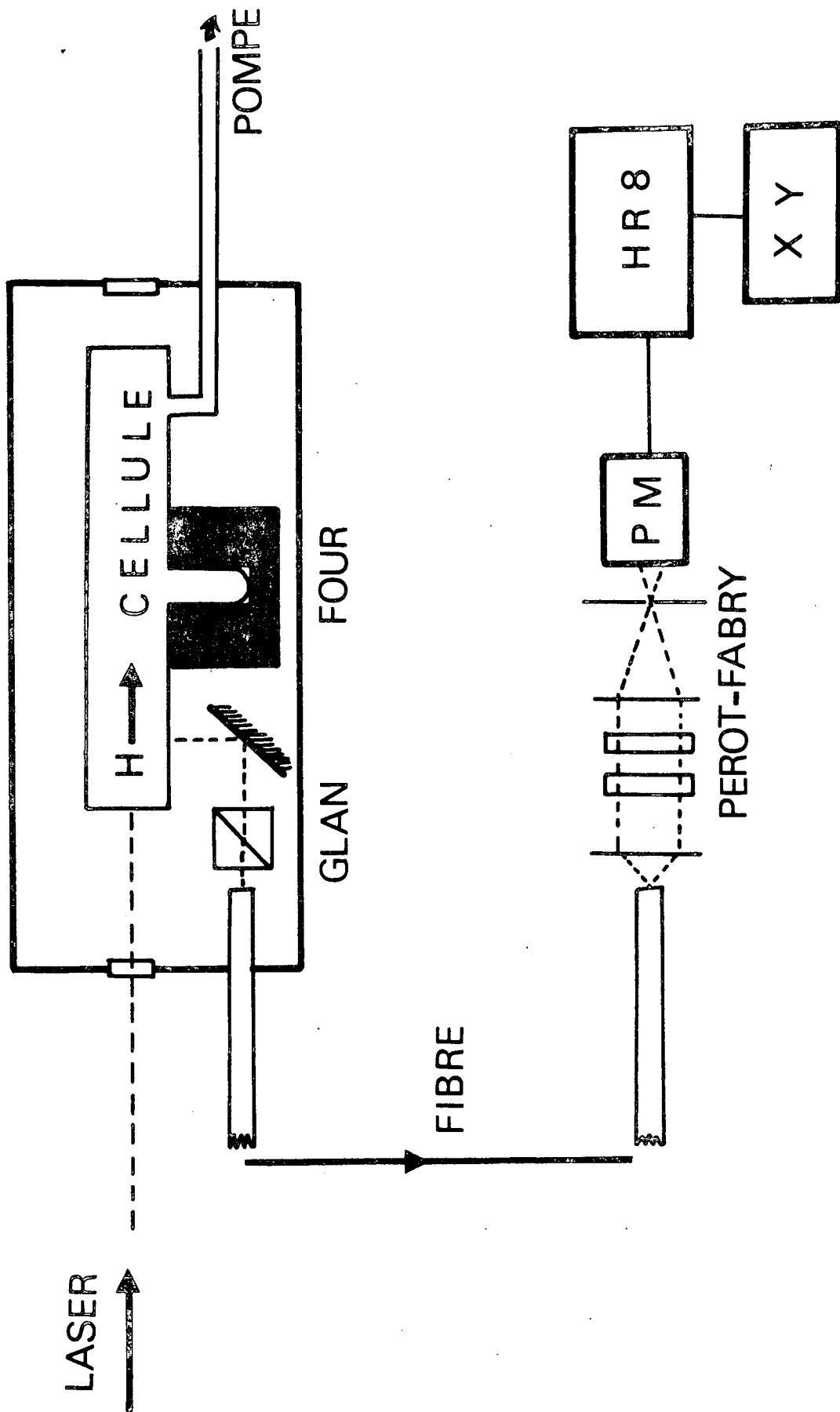
--- état fondamental $m = \frac{1}{2}$

___ état fondamental $m = -\frac{1}{2}$

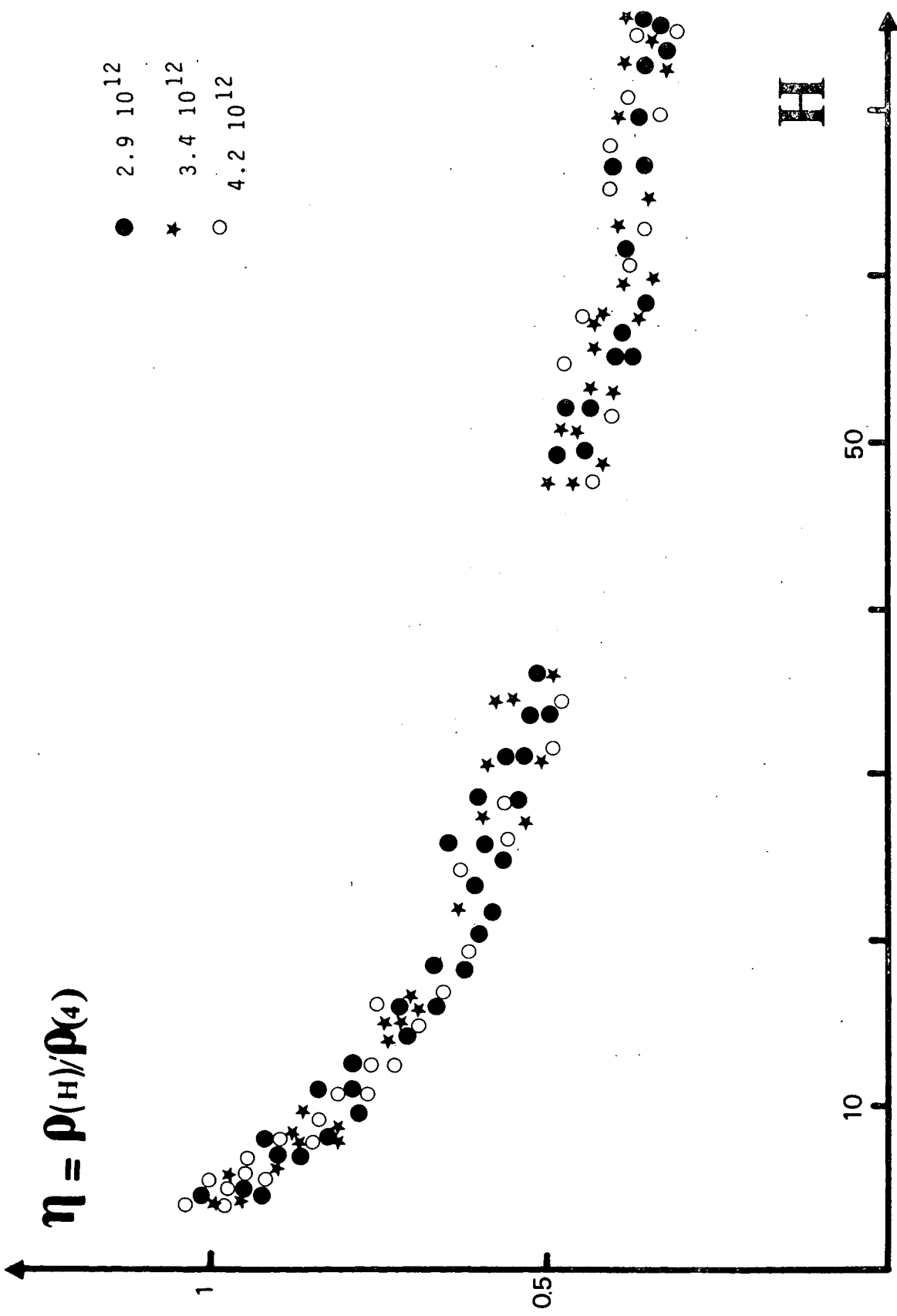
M désigne le sous-niveau excité et m le sous-niveau de l'état fondamental.



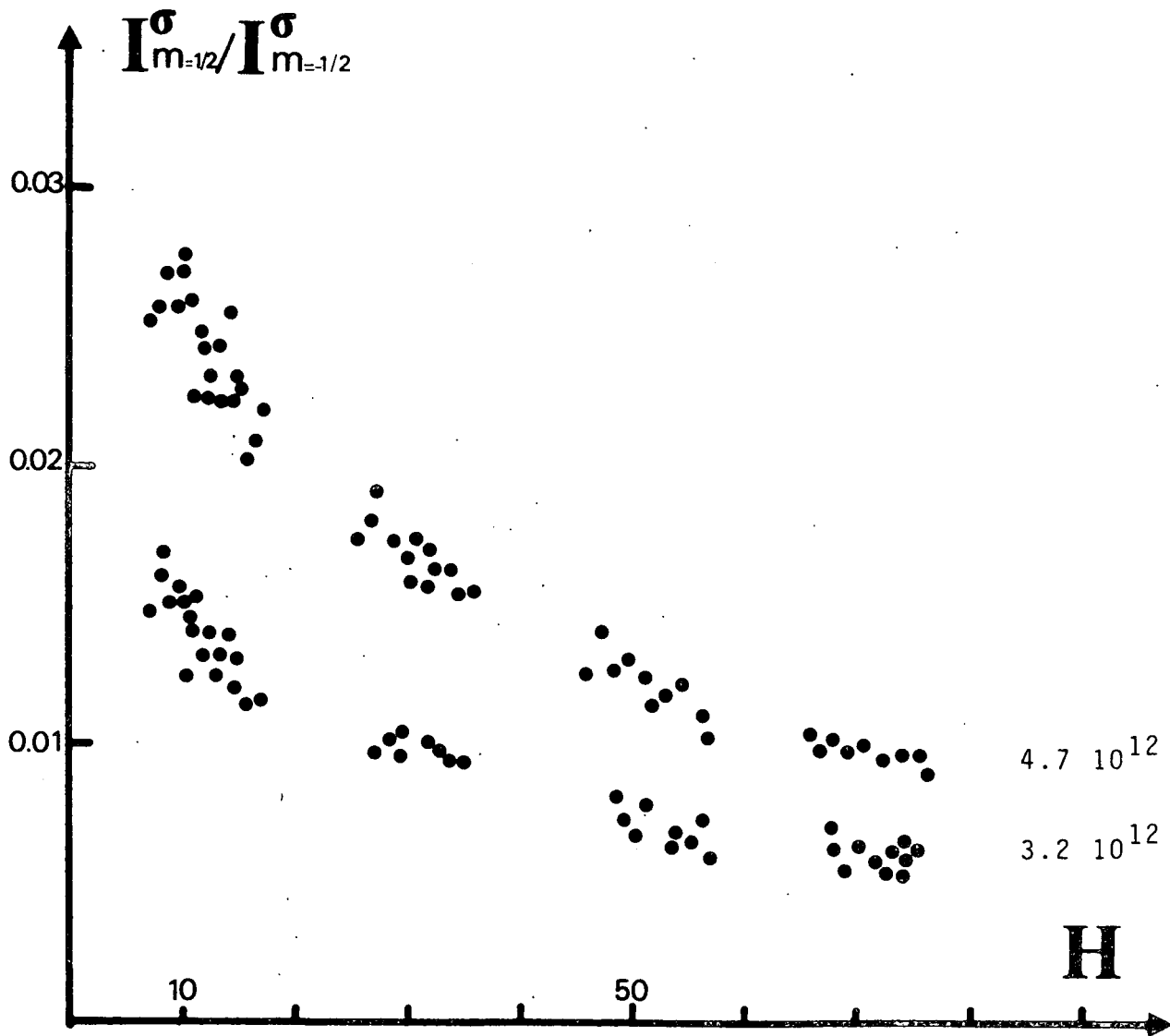
III-/FIG 1



III-FIG 2

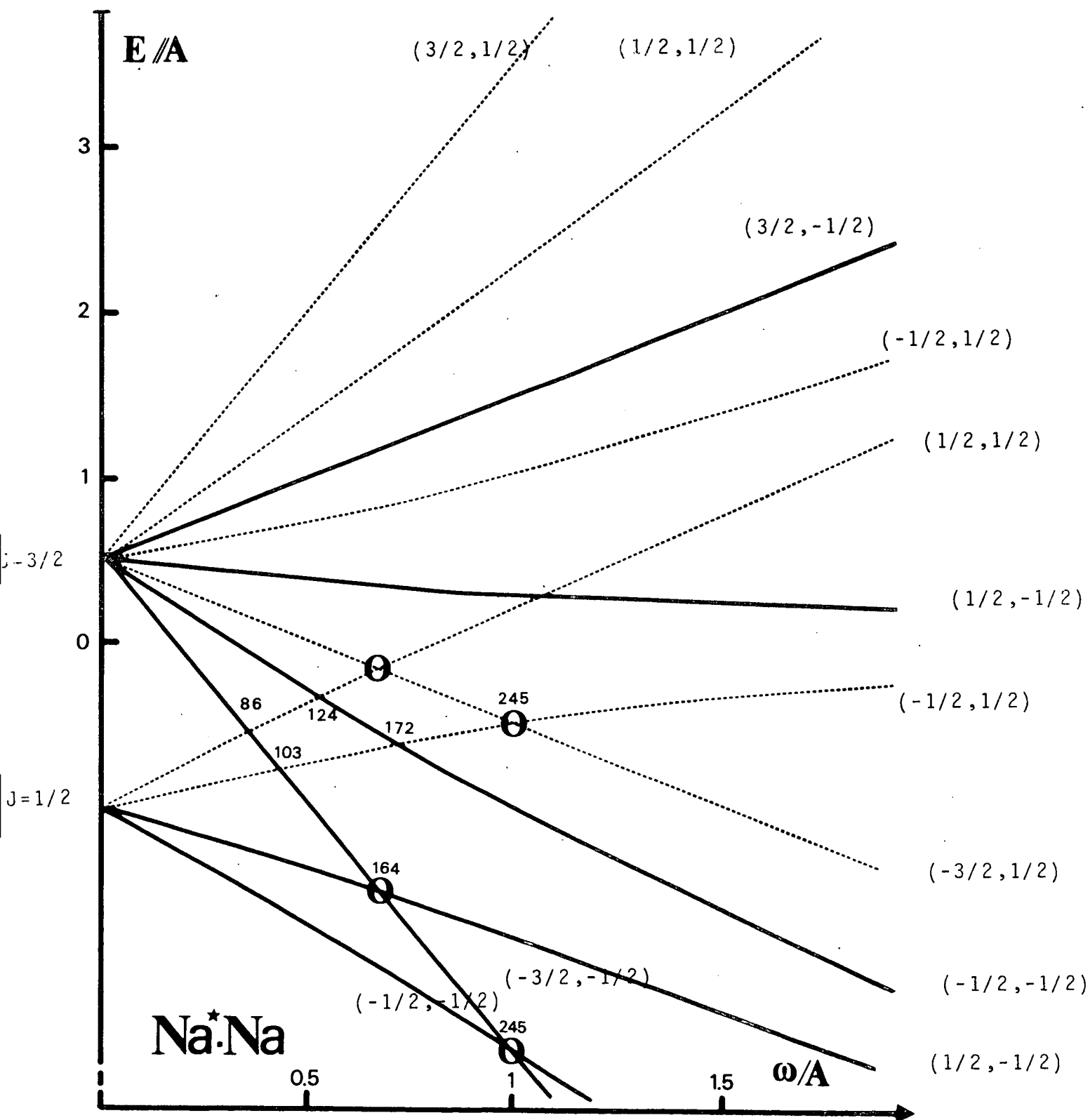


III-/FIG 3



III-/FIG 4

NIVEAUX D'ENERGIE (M,m)



III-/FIG 5

★ TABLEAU 1 ★

Valeurs expérimentales des sections efficaces de transfert $\sigma(j = \frac{3}{2} \pm \frac{3}{2} \rightarrow j = \frac{3}{2} \mp \frac{3}{2})$ pour les 5 gaz rares et pour différentes valeurs du champ magnétique. On a reporté à titre de comparaison dans la dernière colonne les valeurs à 6 kG de la section $\sigma(\frac{3}{2} \pm \frac{3}{2} \rightarrow \frac{3}{2} \pm \frac{1}{2})$

x \ H/kG	6	17	24	51	6
He $\frac{3}{2} \frac{3}{2}$ $\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$ $-\frac{3}{2}$ $\frac{3}{2}$	$5,4 \pm 0,8$ $5,7 \pm 0,9$	$5,3$ $5,5$	$5,3$ $5,2$	$5,2$ $4,8$	$28,3$
Ne $\frac{3}{2}$ $-\frac{3}{2}$ $-\frac{3}{2}$ $\frac{3}{2}$	$9,5 \pm 1,2$ $9,4$	$8,9$ $8,8$	$8,1$ 8	$8,2$ $8,1$	$24,2$
Ar $\frac{3}{2}$ $-\frac{3}{2}$ $-\frac{3}{2}$ $\frac{3}{2}$	$25,8 \pm 2,4$ $25,8$	25 $25,1$	$23,9$ $24,1$	23 25	$40,5$
Kr $\frac{3}{2}$ $-\frac{3}{2}$ $-\frac{3}{2}$ $\frac{3}{2}$	$42,3 \pm 3,5$ $42,9 \pm 3,7$	$40,6$ 41	$39,6$ $39,6$	$36,7$ $35,4$	$56,8$
Xe $\frac{3}{2}$ $-\frac{3}{2}$ $-\frac{3}{2}$ $\frac{3}{2}$	$45,1 \pm 3,8$ $46,1 \pm 3,8$	$46,2$ $45,4$	$45,1$ $44,4$	$40,3$ $40,6$	$64,5$

★ REFERENCES ★

- CARRINGTON C.G., STACEY D.N. and COOPER J. : J. Phys. B, 6, 417 (1973)
- DASHEVSKAYA E.I. , NIKITIN E.E. et REZNIKOV A.I. : J. Chem. Phys. 53 1175 (1970)
- ELBEL M., KOCH A., SCHNEIDER W. : Z. Physik, 255, 14 (1972)
- ELBEL M., SCHNEIDER W. : Physica 68, 146 (1973).
- FRANZ F.A. et SOORIARMOORTHI C.E. : Phys. Rev. A 8, 2390 (1973)
- GAY J.C. et SCHNEIDER W.B. : soumis à Z. Physik
- MASNOU F. et ROUEFF E. : Chem. Phys. Lett. 16, 593 (1972)
- MASNOU F. : Thèse - Paris (1973)
- MASNOU F. et Mc CAROLL R. : J. Phys. B 7, 2230 (1974)
- NIKITIN E.E. : J. Chem. Phys. 43, 744 (1965)
- PASCALE J. et VANDEPLANQUE : J. Chem. Phys. 60, 2278 (1974)
- PASCALE J. et OLSON R.E. : J. Chem. Phys. à paraître (1976)
- PITRE J. et KRAUSE L. : J. Can. Phys. 45 , 2671 (1967)
- PITRE J. et KRAUSE L. : J. Can. Phys. 46, 125 (1968)
- REID R.H.G. : J. Phys. B 6, 2018 (1973)
- SCHNEIDER W.B. : Z. Physik 248, 387 (1971)
- TSAO C.J. et CURNUTTE B. : J.Q.S.R.T. 2, 41 (1962)
- WILSON D.A. et SHIMONI Y. : J. Phys. B 8, 2393 (1975)

QUATRIEME PARTIE

DIFFUSION MULTIPLE EN CHAMP FORT

Le phénomène de diffusion multiple consiste en un échange de photons de résonance entre les atomes identiques d'une vapeur. Il en résulte que le rayonnement reste emprisonné dans la vapeur pendant un temps supérieur à la durée de vie $\tau = \Gamma^{-1}$ de l'atome isolé.

En champ magnétique faible, lorsque le niveau excité des atomes considérés est dégénéré, la diffusion multiple entraîne une dépolarisation du rayonnement de résonance et un affinement des courbes de croisement de niveaux et de double résonance (BLAMONT 1956 - BARRAT 1959). La dépolarisation du rayonnement de résonance en champ magnétique faible résulte de la probabilité non nulle qu'ont les photons émis au point \vec{R} par un atome dans le sous-niveau Zeeman m_0 d'exciter un atome dans le sous-niveau m différent de m_0 au point R' . Ceci n'est évidemment possible qu'en raison de la quasi-dégénérescence de rotation de l'état excité des atomes qui permet, à l'effet Doppler près, de conserver l'énergie dans le processus précédent.

Le phénomène d'emprisonnement du rayonnement et plus généralement de transfert radiatif a fait l'objet d'un grand nombre d'études théoriques et expérimentales. Il revêt une très grande importance en physique des plasmas et surtout en astrophysique en particulier pour la physique des atmosphères stellaires et planétaires. La théorie en est plus simple lorsqu'il s'agit d'un phénomène de diffusion sans changement de fréquence (cf. par exemple CHANDRASEKHAR - 1960). Mais lorsqu'il s'agit de la diffusion du rayonnement de résonance, les changements de fréquence introduits par l'effet Doppler, et dans une moindre mesure par les collisions, jouent un rôle essentiel. Depuis les travaux de BIBERMAN (1940) et d'HOLSTEIN (1947), la théorie du transfert radiatif a atteint un haut degré de sophistication (cf. par exemple IVANOV 1973) en vue en particulier de son application à la théorie de la formation des raies spectrales (cf. par exemple JEFFERIES - 1968, HUMMER - 1971).

Lorsque les conditions d'étude du milieu sont voisines de la symétrie sphérique, l'effet de l'emprisonnement sur l'état excité des atomes peut être décrit avec une bonne approximation par une matrice de relaxation présentant cette symétrie et dont les valeurs propres sont les coefficients γ^k qui caractérisent selon la valeur de k la décroissance de la population, de l'orientation etc... .

Ces phénomènes ont été étudiés expérimentalement et théoriquement dans de nombreuses situations (GUIOCHON et al. - 1957, BARRAT - 1959, DYAKONOV et al. - 1965, OMONT - 1965, ERMATCHENKO - 1967, PIPER et al. - 1970, DODSWORTH et al. - 1971, SANDLE et al - 1971).

Lorsque le champ magnétique appliqué à l'atome produit une levée de dégénérescence supérieure à quelques largeurs Doppler, ce qui est le cas dans nos expériences, le photon émis au point \vec{R} par un atome dans le sous-niveau Zeeman m_0 ne peut qu'exciter un atome au point \vec{R}' dans le même sous-niveau Zeeman m_0 en raison de la nécessité de conserver l'énergie (à l'effet Doppler près) dans le processus. Pour un état excité $J = 1$, l'emprisonnement sera donc différent selon la polarisation σ^\pm ou π du photon par rapport au champ. En d'autres termes, la diffusion multiple ne dépolarise plus le rayonnement et est caractérisée en première approximation en ce qui concerne l'emprisonnement de l'excitation par deux constantes Γ^σ et Γ^π a priori différentes. Ce phénomène a été étudié par OMONT (1961). Nous allons brièvement rappeler ses résultats obtenus dans le cadre d'une description simple de l'emprisonnement généralisant le formalisme développé par BARRAT (1958), puis le principe et les premiers résultats d'une étude qu'il a effectuée par la méthode de MONTE CARLO (1976). Nous donnerons enfin quelques valeurs expérimentales dont l'objet essentiel sera de justifier les hypothèses faites dans le § I-C.

- A -

TRAITEMENT ANALYTIQUE APPROCHE DE LA
DIFFUSION MULTIPLE EN CHAMP FORT

Le phénomène de diffusion multiple peut être décrit en première approximation par un potentiel effectif $V_T(\vec{R}'-\vec{R})$ qui relie l'état d'excitation d'un atome au point \vec{R} à celui de l'atome au point \vec{R}' qui lui transfère son excitation par un photon de résonance.

L'expression de $V_T(\vec{R}'-\vec{R})$ dans le cas d'une transition de résonance $J=1 \rightarrow J=0$ est (par exemple -OMONT-1967)

$$V_T(\vec{R}'-\vec{R}) = -\frac{3\Gamma}{4} \frac{e^{ik_0|\vec{R}-\vec{R}'|}}{k_0|\vec{R}-\vec{R}'|} J_u^2 \quad (1)$$

où J_u^2 est une matrice d'ordre 3 identique à celle du carré de la projection d'un moment cinétique $J = 1$ sur la droite $(\vec{R}'-\vec{R})$.

En présence d'un champ magnétique intense, l'écart d'énergie entre les sous-niveaux Zeeman vérifie $\omega \gg k_0 u$ où $k_0 u$ est la "largeur" du profil Doppler des raies. Le potentiel effectif de diffusion multiple ne peut produire de transition entre les sous-niveaux Zeeman d'énergies très différentes. En pratique, lorsque les conditions de validité de l'approximation séculaire sont remplies, cela revient à ne conserver dans J_u^2 que les termes diagonaux dans une base standard dans la direction du champ. L'emprisonnement de l'excitation s'effectue de manière indépendante pour les trois sous-niveaux Zeeman. Désignant par \vec{k} le vecteur d'onde du photon réémis repéré par les angles polaires (θ, ϕ) dans un référentiel fixe de l'espace (cf. FIG 1), ceci revient à remplacer dans l'expression (1), J_u^2 par sa partie diagonale

$$J_{u D}^2 = \begin{bmatrix} (1+\cos^2\theta)/2 & 0 & 0 \\ 0 & \sin^2\theta & 0 \\ 0 & 0 & (1+\cos^2\theta)/2 \end{bmatrix} \quad (2)$$

L'évolution de l'état excité des atomes dans la vapeur est décrit par une équation pilote non locale de la forme :

$$\dot{\rho}(\vec{R}, \vec{v}) = -i [\mathcal{H}, \rho] - \Gamma \rho - \langle M \rangle_c \rho + \Gamma \rho_D + \left(\frac{d\rho}{dt} \right)_p \quad (3)$$

où les différents termes représentent l'évolution sous l'action du champ magnétique, l'émission spontanée, la relaxation par collision, l'effet de l'emprisonnement et le terme source. De façon générale, ρ et $(d\rho/dt)_p$ dépendent de la position \vec{R} et de la vitesse \vec{v} des atomes. $\rho_D(\vec{R}, \vec{v})$ se met sous la forme :

$$\rho_D(\vec{R}, \vec{v}) = \int S(\vec{R}, \vec{v}; \vec{R}', \vec{v}') \rho(\vec{R}', \vec{v}') d\vec{R}' \cdot d\vec{v}' \quad (4)$$

Le noyau S a l'expression :

$$S \rho(\vec{R}', \vec{v}') = \frac{A}{|\vec{R}-\vec{R}'|^2} C \rho(\vec{R}', \vec{v}') C^\dagger \delta(\vec{v} \cdot \vec{u} - \vec{v}' \cdot \vec{u}) \quad (5)$$

où A est une constante et C une matrice diagonale d'ordre 3 :

$$C = J_{u D}^2 \exp \left(-\frac{1}{2} \chi(v_u) |\vec{R}-\vec{R}'| J_{u D}^2 \right) \quad (6)$$

$\chi(v_u)$ est le coefficient d'absorption de la vapeur à la fréquence angulaire k ($c = 1$) du photon (v_u est la projection de \vec{v} sur $\vec{u} \parallel \vec{R}-\vec{R}'$) :

$$k = k_0 + m \omega_0 + k_0 v_u \quad (7)$$

Suivant la méthode de BARRAT (1959), OMONT (1961) remplace $\rho(\vec{R}, \vec{v})$ par une valeur moyenne ρ indépendante de \vec{R} et de \vec{v} et $\chi(v_u)$ par sa valeur moyenne et il prend pour volume d'intégration une sphère de rayon L dont l'atome émetteur occupe le centre. ρ_D s'écrit ainsi sous la forme :

$$\Gamma \rho_{D \text{ mm}} = (\Gamma - \Gamma_m) \rho_{\text{mm}} \quad (8)$$

où Γ_m^{-1} est le temps d'emprisonnement des photons de la composante Zeeman m.

L'utilisation d'un coefficient d'absorption moyen rend très inexactes les expressions des temps d'emprisonnement dès que l'épaisseur optique de la cellule dépasse quelques unités. Il est donc préférable de modifier les expressions d'OMONT en y introduisant la moyenne sur la distribution des vitesses de l'atome émetteur supposée maxwellienne (DYAKONOV et PEREL - 1965 ; cette méthode revient à faire l'hypothèse d'une complète redistribution de la fréquence du photon à chaque processus de diffusion). On obtient ainsi

$$\Gamma^\pi = \Gamma^0 = \frac{3}{4} \Gamma \int_{-\infty}^{+\infty} f(v_u) dv_u \int_0^\pi \sin^3 \theta \cdot \exp[-\chi(v_u)L \cdot \sin^2 \theta] d\theta \quad (9)$$

$$\Gamma^\sigma = \Gamma^1 = \frac{3}{4} \Gamma \int_{-\infty}^{+\infty} f(v_u) dv_u \int_0^\pi \frac{1+\cos^2 \theta}{2} \cdot \sin \theta \cdot \exp[-\chi(v_u)L \frac{1+\cos^2 \theta}{2}] d\theta \quad (10)$$

avec

$$f(v_u) = \exp(-v_u^2/u^2)/u\sqrt{\pi}$$

$$\chi(v_u) = \chi_0 \exp(-v_u^2/u^2) \quad (11)$$

$$\chi_0 = \pi^{3/2} 3\Gamma N/k_0^3 \cdot u$$

L est un paramètre de l'ordre du rayon (ou de la demi-arête) de la cellule et $k_0 u$ est la "largeur" Doppler.

Ces temps d'emprisonnement permettent de décrire en moyenne dans un modèle approximatif les effets de la diffusion multiple sur l'évolution des populations des sous-niveaux Zeeman du système.

Le problème physique à résoudre comporte en fait une étape supplémentaire qui est le calcul des intensités lumineuses réémises par la vapeur (OMONT-1961). Dans la direction faisant l'angle θ_0 avec le champ magnétique, les intensités lumineuses réémises hors de la cellule à partir des sous-niveaux Zeeman $m = 0$ et $m = \pm 1$ par un atome situé à la distance x de la paroi dans la direction d'émission, sont en première approximation proportionnelles à :

$$I_0(\theta_0) \propto \sin^2 \theta_0 \int_{-\infty}^{+\infty} f(v) dv \exp[-\chi(v) x \sin^2 \theta_0] \quad (12)$$

$$I_{\pm 1}(\theta_0) \propto \frac{1 + \cos^2 \theta_0}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} f(v) dv \exp \left[- \chi(v) x \frac{1 + \cos^2 \theta_0}{2} \right] \quad (13)$$

le facteur de proportionnalité dépendant du nombre d'atomes excités au point x dans le sous-niveau considéré.

En première approximation, les intensités réémises par la vapeur dans une direction donnée (par exemple $\theta_0 = \pi/2$) se mettront sous la forme :

$$I_m = \rho_{mm} \lambda^m(N)$$

où ρ_{mm} indépendant de la position désigne la population moyenne du sous-niveau Zeeman m et $\lambda^m(N)$ est une fonction de la densité N qui dépend de la répartition de l'excitation dans la vapeur et peut donc prendre des valeurs très différentes selon les conditions d'études adoptées. Dans le cas où l'on s'intéresse par exemple au rapport des intensités σ et π de fluorescence dans la direction perpendiculaire au champ, on obtient en supposant pour simplifier que $\rho_{11}(x) = \rho_{-1-1}(x)$ et en posant $\lambda^\sigma = \lambda^1 + \lambda^{-1}$:

$$\frac{\lambda^\sigma(N)}{\lambda^\pi(N)} = \lambda(N) = \frac{\int f(v) dv \int_0^{2L} dx \exp[-\chi(v) x/2] \rho_{11}(x)/\rho_{11}}{\int f(v) dv \int_0^{2L} dx \exp[-\chi(v) x] \rho_{00}(x)/\rho_{00}} \quad (14)$$

Pour les petites épaisseurs optiques ($\chi_0 L \ll 1$) on voit immédiatement que $\lambda(0) = 1$. Pour les grandes épaisseurs optiques on sait (HOLSTEIN-1947) que si $\chi_0 \cdot x \gg 1$:

$$\int f(v) dv \cdot \exp[-\chi(v) \cdot x] \approx \left[\chi_0 x \sqrt{\text{Log}(\chi_0 x)} \right]^{-1} \quad (15)$$

On voit donc que $\lambda(N)$ tendra vers 2. Si l'on supposait toute l'excitation concentrée au centre de la cellule on aurait

$$\lambda(N) \approx 2 \left[\text{Log}(\chi_0 \cdot L) / \text{Log}(\chi_0 L/2) \right]^{1/2} \quad (16)$$

Remarquons que la généralisation de ce résultat à une direction θ_0 quelconque ($\chi_0 L \sin^2 \theta_0, \chi_0 L(1 + \cos^2 \theta_0)/2 \gg 1$)

$$\lambda^1/\lambda^0 \approx \left[\text{Log}(\chi_0 L \sin^2 \theta_0) / \text{Log}(\chi_0 L [1 + \cos^2 \theta_0] / 2) \right]^{1/2} \quad (17)$$

montre que ce rapport est de l'ordre de l'unité quel que soit θ_0 , si $\theta_0 \gg (\chi_0 L)^{1/2}$; l'intensité émise sur chaque composante Zeeman est donc beaucoup plus isotrope que le diagramme de rayonnement d'un atome pour cette composante.

On peut déduire du modèle précédent malgré ses limitations un certain nombre de renseignements concernant l'expression de I_σ/I_π en fonction des différents paramètres du problème. La résolution de l'équation pilote dans le cas de l'excitation du sous-niveau $m = 0$ conduit à l'expression suivante du rapport des intensités observées dans la direction perpendiculaire au champ :

$$I_\sigma/I_\pi = \lambda(N) \frac{g}{\Gamma^\sigma(N) + g} \quad (18)$$

où g est le taux de transfert par collisions de $m = 0$ vers $m = \pm 1$, mais il subsiste une indétermination importante sur les valeurs à affecter à $\Gamma^\sigma(N)$ et à $\lambda(N)$ dans la mesure où l'on ne connaît pas la distribution de l'excitation dans la vapeur.

- B -

PRINCIPE DE L'ETUDE PAR LA METHODE DE MONTE CARLO

L'intérêt du modèle précédent est d'être simple et de permettre de traiter le problème d'un point de vue analytique. On ne peut néanmoins en attendre que des estimations très approximatives dans les conditions de moyennes épaisseurs optiques ($15 > \chi(0).L > 5$) où l'on a réalisé les expériences de la partie I.

Il n'est évidemment pas possible de traiter analytiquement une situation présentant quelque analogie avec celle existant dans nos expériences. Le problème dépend en effet de trop nombreux paramètres et en particulier des conditions géométriques de l'excitation et de la détection, de la forme et des dimensions du milieu, de la distribution spectrale du rayonnement incident, de l'effet des collisions, de la dispersion anormale et éventuellement de l'inhomogénéité du champ (cf. § I-C).

Une méthode numérique semble indiquée pour tenir compte des nombreux paramètres que comporte le problème réel. Il s'agit de la méthode de MONTE CARLO. Elle a été utilisée fréquemment pour résoudre des problèmes comportant un grand nombre de variables en physique statistique, physique nucléaire, théorie des liquides et aussi dans les problèmes de transfert radiatif et de collisions moléculaires. Un exposé détaillé de la méthode et des applications peut être trouvé par exemple dans HANDSCOMB (1964).

Le principe de la méthode utilisée par OMONT (1976) pour la résolution du problème que nous avons exposé précédemment est le suivant : on calcule dans diverses conditions (collisions, inhomogénéité du champ, dispersion anormale), les temps d'emprisonnement des photons σ et π dans la vapeur et les intensités des diverses polarisations de la lumière de fluorescence dans les 4 directions normales aux faces et non équivalentes du milieu supposé de forme cubique (cf. FIG 1).

L'expérience est effectuée pour N photons. Pour chaque photon, on tire au sort une valeur de la fréquence ν dans le profil de la raie émise par la lampe. (Profil supposé gaussien). Le vecteur d'onde \vec{k} du premier photon est perpendiculaire à la face d'entrée de la cellule (cf. FIG 1). On tire ensuite la distance où le photon de fréquence ν est absorbé dans la vapeur. La fréquence du photon absorbé par l'atome fixe la vitesse de celui-ci dans la direction \vec{k} . On détermine par tirage les deux autres composantes de la vitesse de l'atome. Le photon est ensuite réémis à une fréquence ν' , dans une direction \vec{k}' que l'on obtient à nouveau par tirage de deux angles (θ', φ') . L'ensemble des processus précédents est donc dans le principe très facile à décrire et se prête très bien à la programmation. Pour chaque atome absorbant le photon on calcule les intensités qui seraient réémises dans les 4 directions non équivalentes. La sommation de ces valeurs à chaque pas permet d'accélérer la convergence de la méthode. Le calcul est arrêté lorsque le photon sort de la cellule. On recommence alors le calcul avec un autre photon.

La convergence de la méthode précédente dépend évidemment de l'épaisseur optique du milieu. Aux épaisseurs optiques moyennes ($\chi_0 L \approx 10$) environ 10 000 photons sont nécessaires pour obtenir des résultats significatifs (variance de l'ordre de 5%).

La valeur des temps d'emprisonnement ainsi obtenus aux moyennes épaisseurs optiques (cf. § IV-C-1) n'est pas très éloignée de celle déterminée analytiquement par SCHERR (1971) dans le cas d'une sphère, à partir des méthodes développées par HOLSTEIN (1947). On peut dire en particulier que la croissance des temps d'emprisonnement en fonction de la densité n'est pas exponentielle comme on le trouve dans le modèle de BARRAT (1959) mais beaucoup plus lente et approximativement de la forme $\chi_0 L \cdot [\text{Log}(\chi_0 L)]^{1/2}$ ce qui est le résultat des modèles de HOLSTEIN (1947) et de DYAKONOV et PEREL (1965).

★☆☆☆☆★

- C -

COMPARAISON AUX RESULTATS EXPERIMENTAUX

1 - ORDRE DE GRANDEUR DE $\Gamma^\sigma(N)$ ET $\lambda(N)$

Les résultats numériques obtenus avec la méthode de MONTE CARLO semblent en relativement bon accord avec les résultats expérimentaux. Ceux-ci sont cependant peu précis puisqu'ils sont déduits en général par des méthodes indirectes des résultats obtenus lors de l'étude des collisions résonnantes et non résonnantes sur le Mercure.

Si l'on connaît le taux de transfert par collisions g , la relation (18) permet de déduire de la mesure de I_σ/I_π une relation entre $\Gamma^\sigma(N)$ et $\lambda(N)$; il suffit en principe de répéter cette mesure pour plusieurs valeurs différentes de g pour en déduire $\Gamma^\sigma(N)$ et $\lambda(N)$. Ceci suppose évidemment que le modèle développé dans la partie IV-A ne soit pas trop loin de la réalité et que Γ^σ et λ ne dépendent pas trop de g .

Si $g \ll \Gamma^\sigma(N)$, on a approximativement

$$\rho_1 = I_\sigma/I_\pi = g^\sigma \cdot \lambda(N) / \Gamma^\sigma(N) \quad (19)$$

C'est généralement le cas pour les collisions résonnantes. g est alors proportionnel à N et on connaît de façon précise sa valeur lorsque H tend vers 0. On utilisera donc les résultats des mesures effectuées à 5 kG en adoptant la valeur :

$$\frac{g^\sigma}{\Gamma} (H = 5\text{kG}) = 0,94 \cdot \frac{g^\sigma}{\Gamma} (H=0) = 1,46 \cdot 10^{-16} \text{ N} \quad (20)$$

où $g^\sigma(H=5 \text{ kG})$ est calculé à partir des résultats du Tableau 1 de la partie I-B. Les valeurs ainsi obtenues pour $\lambda(N)\Gamma/\Gamma^\sigma(N)$ sont portées sur la figure 2. On y

donne également les résultats du calcul de MONTE CARLO. Ces derniers semblent systématiquement un peu plus petits bien qu'ils ne soient pas incompatibles avec les résultats expérimentaux compte tenu des erreurs expérimentales et de l'incertitude sur les résultats du calcul de MONTE CARLO dans ce cas où $I_\sigma/I_\pi < 0,1$.

On donne dans la figure 3, les valeurs expérimentale et calculée par la méthode de MONTE CARLO de $\rho_2 = I_\sigma/I_\pi$ dans le cas où g vaut environ 0,05. L'étude correspondante a été effectuée avec des cellules contenant environ 0,1 Torr d'Hélium ou de Krypton. L'accord est donc dans ce cas excellent.

En utilisant les relations (18) et (20), on obtient :

$$\frac{1}{\Gamma^\sigma(N)} = \frac{1}{g^\sigma} \frac{\rho_1}{\rho_2} - \frac{1}{g} \quad (21)$$

$$g^\sigma \cdot \lambda(N) = \rho_1 \cdot \Gamma^\sigma(N) \quad (22)$$

On peut donc déduire des mesures de ρ_1 et ρ_2 , les valeurs de $\Gamma^\sigma(N)$ et $\lambda(N)$. Mais on se convainc aisément qu'elles sont extrêmement incertaines du fait des incertitudes $\Delta\rho_1$, $\Delta\rho_2$ et Δg^σ : compte tenu de l'incertitude sur N (3 à 5 %) on peut prendre $\Delta\rho_1/\rho_1 \approx 10\%$ et $\Delta\rho_2/\rho_2 \approx 5\%$ avec $\Delta g^\sigma/g^\sigma \approx 10\%$. L'incertitude $\Delta\Gamma^\sigma$ sur la valeur de Γ^σ dépasse alors 50 % ! Il n'est donc pas possible de tirer des conclusions précises de cette détermination indirecte. On obtient :

$$8 \cdot 10^{12} < N < 2 \cdot 10^{13}$$

$$10 < \frac{\Gamma}{\Gamma^\sigma}(N) < 25$$

$$1 < \lambda < 2$$

Les valeurs de Γ/Γ^σ déduites par le calcul de MONTE CARLO sont environ deux fois plus petites que les précédentes. On ne peut cependant conclure nettement en raison de l'imprécision des résultats expérimentaux probablement beaucoup moins précis que les évaluations théoriques.

Remarquons que dans la gamme de densités où l'on a effectué les expériences du § I-C, $\Gamma^\sigma(N)/\Gamma$ est au minimum de 0,05 tandis que $g^{(11)(00)}/\Gamma$ vaut au maximum $3 \cdot 10^{-3}$. L'hypothèse $\Gamma^\sigma \gg g^{(11)(00)}$ que nous avons faite se trouve donc justifiée a posteriori.

2 - EFFETS DE L'INHOMOGENEITE DU CHAMP SUR L'EMPRISONNEMENT

L'inhomogénéité du champ magnétique se traduit par un déplacement de la fréquence centrale du profil d'absorption des atomes dans les sous-niveaux Zeeman $m = \pm 1$ selon la position dans la cellule.

Les paramètres importants de ce problème (cf. § I-C) sont la "largeur" Doppler ($k_0 u$) de la raie pour l'élément considéré, et la variation maximum du champ sur le volume de la cellule. Les calculs ont été effectués avec un modèle d'inhomogénéité qui suppose que la distribution du champ au voisinage de la cellule placée au centre de la bobine possède la symétrie du champ d'un solénoïde fini. Compte tenu de $\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0$ et $\vec{\nabla} \wedge \vec{B} = \vec{0}$, on écrit alors :

$$\Delta\omega/k_0 u = \text{HIN} \left[z^2 - \frac{1}{2} (x^2 + y^2) \right] / L^2 \quad (23)$$

où $\Delta\omega$ caractérise le déplacement de la fréquence d'absorption et (HIN) la variation de la valeur du champ dans le volume de la cellule. On a donc

$$(\Delta\omega)_{\max} = 2 \cdot \text{HIN} \cdot k_0 u$$

avec $k_0 u = 620 \text{ MHz} \approx 300 \text{ gauss}$ pour $\text{Hg}(6^3\text{P}_1)$. La valeur 1 du paramètre (HIN) correspond à une variation du champ de 600 gauss dans le volume de la cellule. Lorsque l'homogénéité du champ est de $4 \cdot 10^{-3}$, et le champ maximum de 80 kG (bobine supraconductrice), le paramètre HIN vaut donc de l'ordre de 0,5. Ceci correspond aux conditions d'études au centre du champ dans la partie I-C. En ce qui concerne les expériences réalisées à Grenoble avec la Bobine 10 MW (Homogénéité $3 \cdot 10^{-3}$), la valeur de (HIN) à 200 kG est de l'ordre de 1.

On a reporté sur la figure 4 les variations théoriques du temps d'emprisonnement en fonction du paramètre (HIN) pour une profondeur optique de l'ordre de 5 ce qui correspond à une température du queusot de la cellule de l'ordre de 3°C ($N \approx 8,6 \cdot 10^{12} \text{ at/cm}^3$). Dans les conditions d'étude des collisions résonnantes, au centre du solénoïde supraconducteur, la valeur de (HIN) est de l'ordre de 0,5. Les variations relatives du temps d'emprisonnement sont de l'ordre de 3 % et de l'ordre de grandeur de l'incertitude sur les valeurs obtenues avec la méthode de MONTE CARLO. Ceci confirme donc les résultats de l'étude expérimentale directe rapportée dans

la partie I-C qui montrent qu'on peut négliger les effets de cette inhomogénéité. Par contre, des valeurs de l'inhomogénéité de $5 \cdot 10^{-2}$ conduisent à 80 kG à des valeurs de HIN de l'ordre de 7 pour lesquelles on prévoit des variations de Γ^σ de l'ordre de 40 %. A 3 cm du centre du solénoïde on peut adopter comme modèle approximatif pour l'inhomogénéité

$$\Delta\omega/k_0 u = \text{HIN} \cdot z/L \quad (24)$$

ceci correspond à la variation ΔB_z de la composante du champ sur l'axe de la bobine ; on suppose que l'apparition d'une composante radiale $B_\rho = -\Delta B_z/2$ a une influence négligeable sur la module de \vec{B} et donc sur la fréquence de la composante Zeeman, et que la petite modification de l'orientation de \vec{B} est sans importance. A 80 kG, HIN vaut de l'ordre de 7, (homogénéité $5 \cdot 10^{-2}$). En l'absence de collisions le calcul de MONTE CARLO prévoit alors une diminution du temps d'emprisonnement des photons σ observés en diffusion latérale perpendiculairement au champ. Mais l'inhomogénéité est si importante qu'il en résulte d'autres effets spectaculaires. Par exemple, une étude expérimentale effectuée avec une cellule à Xénon ($p = 4$ torr, $g/\Gamma \approx 2,4$) à haute densité de Mercure ($N \approx 3 \cdot 10^{13}$ at/cm³ - $\chi_0 L \approx 20$) à 3 cm du centre du solénoïde montre (cf. § I-C - FIG 7) que, à la fois I_σ et I_π décroissent de façon considérable avec le champ (d'un facteur environ 2,5 entre 5 et 80 kG), alors que le rapport I_σ/I_π reste sensiblement égal à 2.

Le calcul de MONTE CARLO effectué avec le modèle d'inhomogénéité de la formule (24) prédit un comportement analogue avec une décroissance encore plus importante des intensités de fluorescence σ et π (facteur 4) (cf. FIG 5). On peut se demander ce que devient le rayonnement qui disparaît ainsi. Le calcul montre qu'une très grande partie du rayonnement est émise hors de la cellule dans un cône très ouvert d'axe parallèle au champ, après un très petit nombre de diffusions, par la région voisine de la face éclairée de la cellule. Ceci se comprend aisément puisque c'est là qu'est absorbé le plus grand nombre de photons de la lampe et que la transparence de la vapeur est considérablement augmentée sauf dans les directions perpendiculaires au champ.

3 - ORDRES DE GRANDEUR DES EFFETS DE LA DISPERSION ANORMALE POUR LES CHAMPS FAIBLES.

La dispersion anormale de la vapeur et la rotation Faraday peuvent affecter de façon sensible l'emprisonnement de la lumière de résonance pour des valeurs assez faibles du champ. Les photons de la composante $m = 0$ émis dans la direction $\vec{k}(\theta, \varphi)$ sont polarisés linéairement dans le plan (Oz, \vec{k}) (cf. FIG 1). S'ils traversent une épaisseur x de vapeur leur plan de polarisation tourne de l'angle

$$\psi = \frac{1}{2} k x (n_+ - n_-).$$

Une partie du rayonnement π est donc transformée en rayonnement de polarisation perpendiculaire à \vec{H} qui ne peut être absorbé puisque sa fréquence est très différente de celle des composantes σ^\pm . Ceci augmente donc la probabilité que le rayonnement π s'échappe de la vapeur et diminue son temps d'emprisonnement. Mais comme ψ est proportionnel à $\cos \theta$, cet effet n'existe pas si \vec{k} est perpendiculaire à \vec{H} et on prévoit au contraire que la diminution de l'emprisonnement entraîne aussi une diminution de l'intensité π émise dans les directions perpendiculaires à \vec{H} .

L'angle de rotation vaut explicitement (cf. par exemple OMONT - 1965-1967)

$$\psi = \frac{3\pi}{2} \frac{\Gamma N}{k_0^2 \cdot u} x \cdot \cos \theta = \frac{1}{2\sqrt{\pi}} \chi_0 \cdot x \frac{k_0 u}{\omega} \cos \theta$$

Si $\psi \ll 1$, la fraction de l'intensité π qui n'est plus absorbable est $\Delta I_\pi / I_\pi \approx \psi^2$. Pour estimer l'effet cumulé de cette rotation Faraday sur les photons successifs, il faut évaluer l'expression $\sum x_i^2 \sin^2 \theta_i$ où x_i est la distance parcourue par le $i^{\text{ème}}$ photon. Il semble naturel de prévoir que cette moyenne doit être en première approximation proportionnelle à L^2 de sorte qu'on écrira :

$$(\Delta I_\pi / I_\pi)_T \approx \alpha (\chi_0 L)^2 (k_0 u / \omega)^2$$

avec

$$\alpha \approx \frac{\langle x^2 \rangle}{L^2} \frac{\langle \sin^2 \theta \cdot \cos^2 \theta \rangle}{4\pi}$$

où le coefficient de proportionnalité α est probablement inférieur à 1/10. (L'éva-

luation de α pose essentiellement le problème de la détermination de la distance moyenne entre deux absorptions). Un effet analogue existe pour les composantes σ :

$$\psi' = \frac{1}{4\sqrt{\pi}} \chi_0 x \cdot \frac{k_0 u}{\omega} \frac{\sin^2 \theta \cdot \cos^2 \theta}{1 + \cos^2 \theta}$$

mais son effet cumulé est environ 15 fois plus faible (facteur angulaire) que pour la composante π . On le négligera donc.

Il est très simple de tenir compte de ces phénomènes par un calcul de MONTE CARLO. Les valeurs ainsi calculées pour les intensités π émises dans la direction OY perpendiculaire à \vec{H} (cf. FIG 1) sont données ci-dessous, en unités arbitraires pour quelques valeurs de H et de $\chi_0 L$.

H	0,75 kG	1,5 kG	3 kG	>> 3 kG
$\omega/k_0 u$	2,5	5	10	>> 10
$\chi_0 L$				
I_π				
5	1,24	1,27	1,32	1,34
10	0,71	0,80	0,87	0,88
15	0,39	0,59	0,61	0,66

De telles croissances de I_π avec H ont été observées en-dessous de 3 kG mais elles n'ont pas été étudiées systématiquement. Il est en effet difficile en-dessous de 1,5 kG d'être sûr que le recouvrement des profils Doppler des différentes composantes Zeeman est encore négligeable.

L'intensité σ émise dans la direction OY présente un comportement analogue à celui de I_π à la fois dans les observations et dans les calculs. Ce n'est pas étonnant puisque I_σ/I_π est en première approximation indépendant du temps d'emprisonnement Γ^π (cf. Eq (18) et (19)). Les résultats du calcul semblent indiquer néanmoins que I_σ/I_π augmente légèrement quand on diminue le champ : par exemple

pour $\chi_0 L = 15$, de 10 à 15 % quand on passe de 3 à 1,5 kG. Il est possible que ceci explique les valeurs un peu grandes qu'on a observées pour I_σ/I_π dans cette zone (cf. § I-C). Mais comme on peut le voir d'après les valeurs du Tableau précédent, on peut être sûr que les effets de la dispersion anormale sont négligeables pour $H \gtrsim 5$ kG lorsque $\chi_0 L \leq 15$: son effet sur la valeur de I_σ/I_π à 5kG est certainement inférieur à 2%. Cette conclusion est importante puisqu'elle justifie le choix que nous avons fait de la valeur 5 kG comme champ de référence pour l'étude des variations des taux de transfert avec le champ (cf. § I-C).

★ LEGENDES DES FIGURES ★

FIG 1 - Notations et situations étudiées dans la partie IV

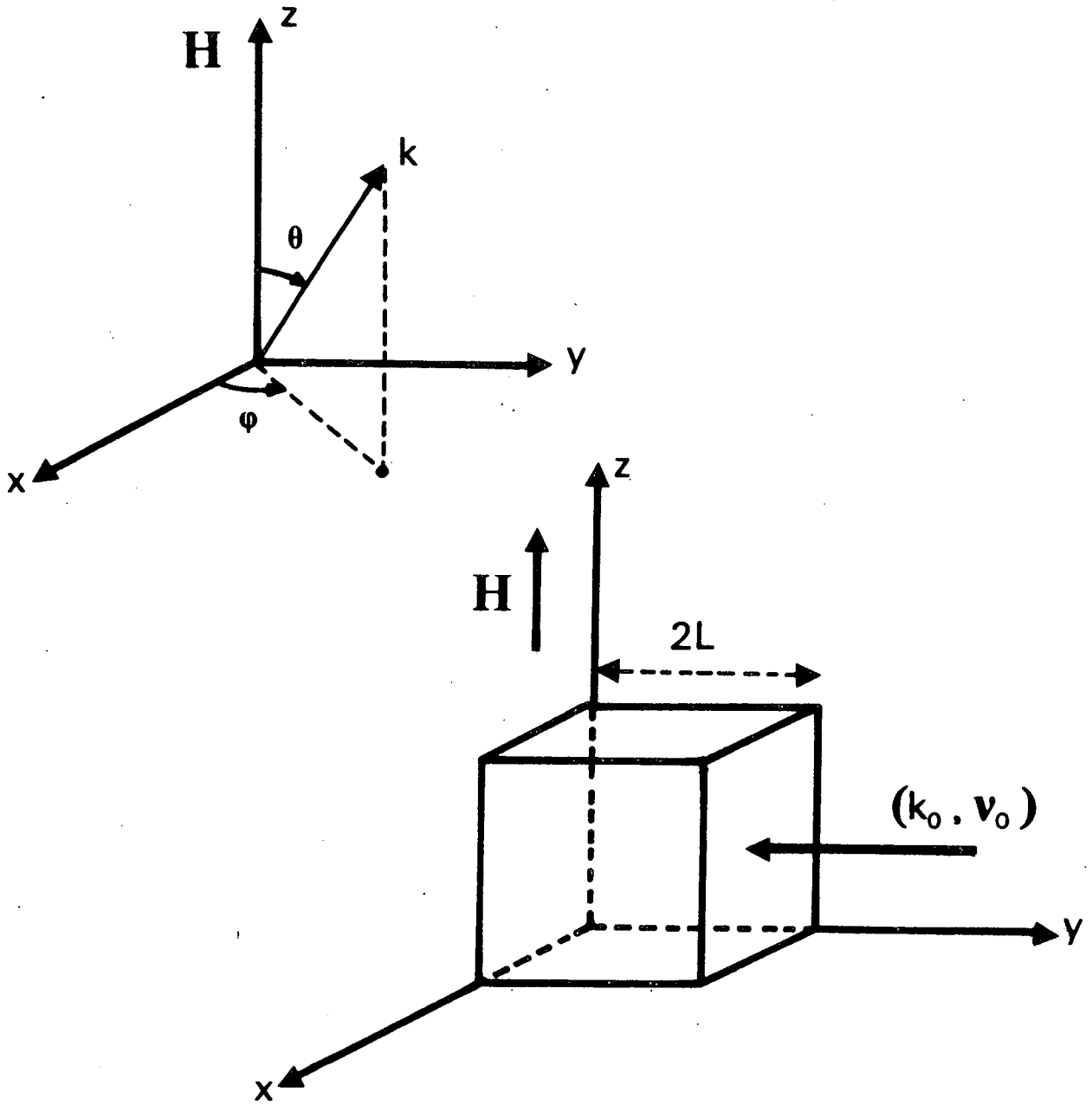
FIG 2 - Valeurs du paramètre $\lambda(N) \cdot (\Gamma/\Gamma^0)$ déduites à $H = 5$ kG des mesures effectuées dans la partie I-C dans le cas d'une cellule à Mercure pur (\bullet) et d'une cellule contenant de faibles taux de gaz résiduels ($g/\Gamma \sim 2 \cdot 10^{-3}$) (\times). Les taux de transfert en champ nul par collisions résonnantes étant connus, on peut déduire les valeurs du paramètre précédent des valeurs de ρ obtenues à différentes densités. On a reporté sur cette figure les prévisions de la méthode de Monte Carlo (\circ).

FIG 3 - Valeurs expérimentales et calculées par la méthode de Monte Carlo de $\rho_2 = I_\sigma / I_\pi$ pour $g/\Gamma \approx 0,05$ ($H = 5$ kG) (cellules à Krypton et Hélium $p = 0,1$ t).

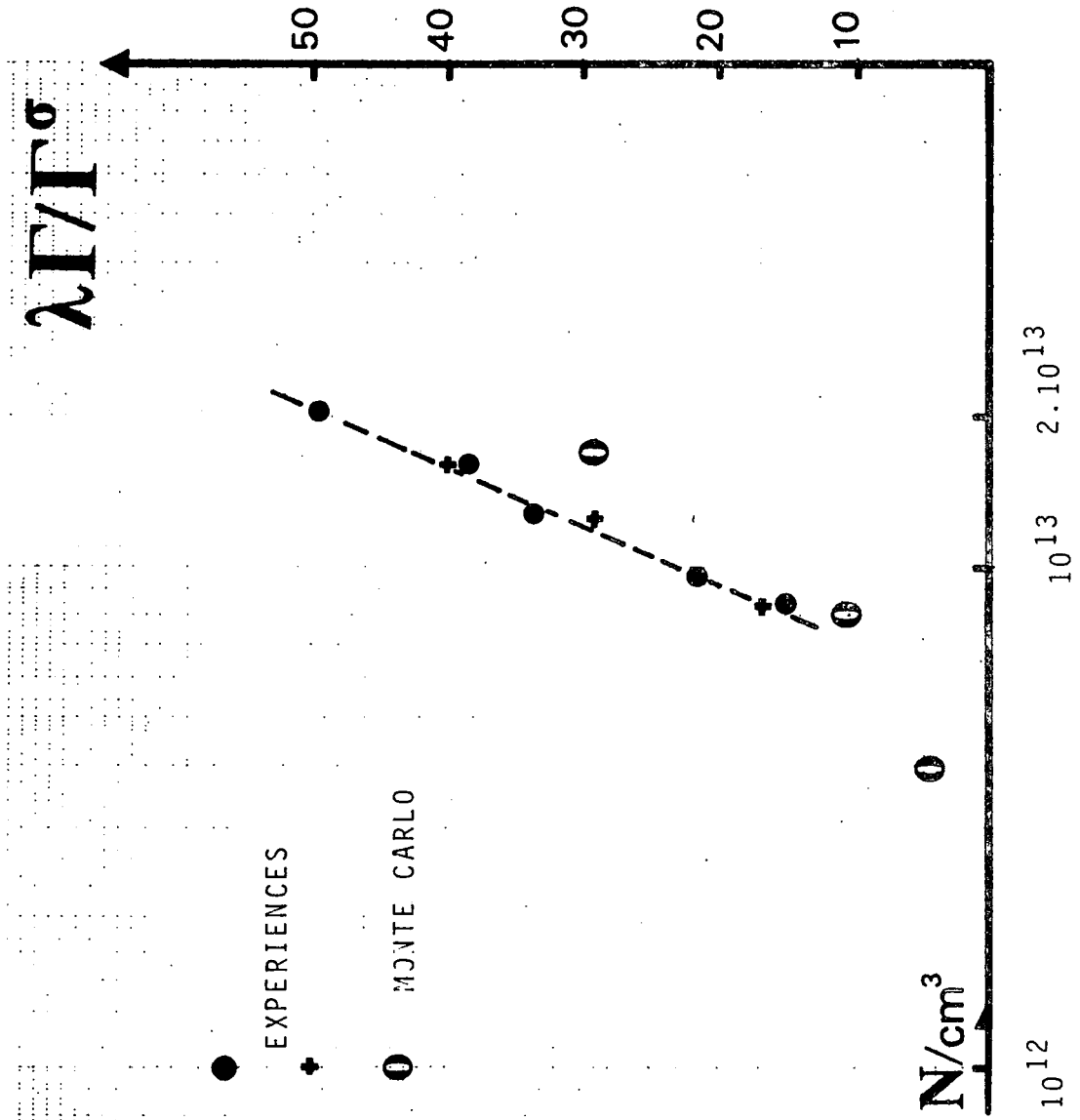
FIG 4 - (D'après OMONT - 1976). Variations du temps d'emprisonnement $\tau^\sigma = (\Gamma^\sigma)^{-1}$ en fonction de l'inhomogénéité pour une épaisseur optique du milieu de l'ordre de 5 ($T \approx 3^\circ\text{C}$). Le paramètre HIN porté en abscisse représente le rapport du déplacement maximum en fréquence pour l'élément considéré résultant de l'inhomogénéité du champ et de la largeur Doppler $2k_0 u$ du profil des raies.

FIG 5 - Variations en fonction du paramètre d'inhomogénéité des intensités I_σ et I_π de fluorescence pour une profondeur optique du milieu de l'ordre de 20 et un taux de transfert par collisions $g/\Gamma \approx 2,4$ (calcul de Monte Carlo), pour une cellule contenant 4 torr de Xénon.

★●★●★●★●★

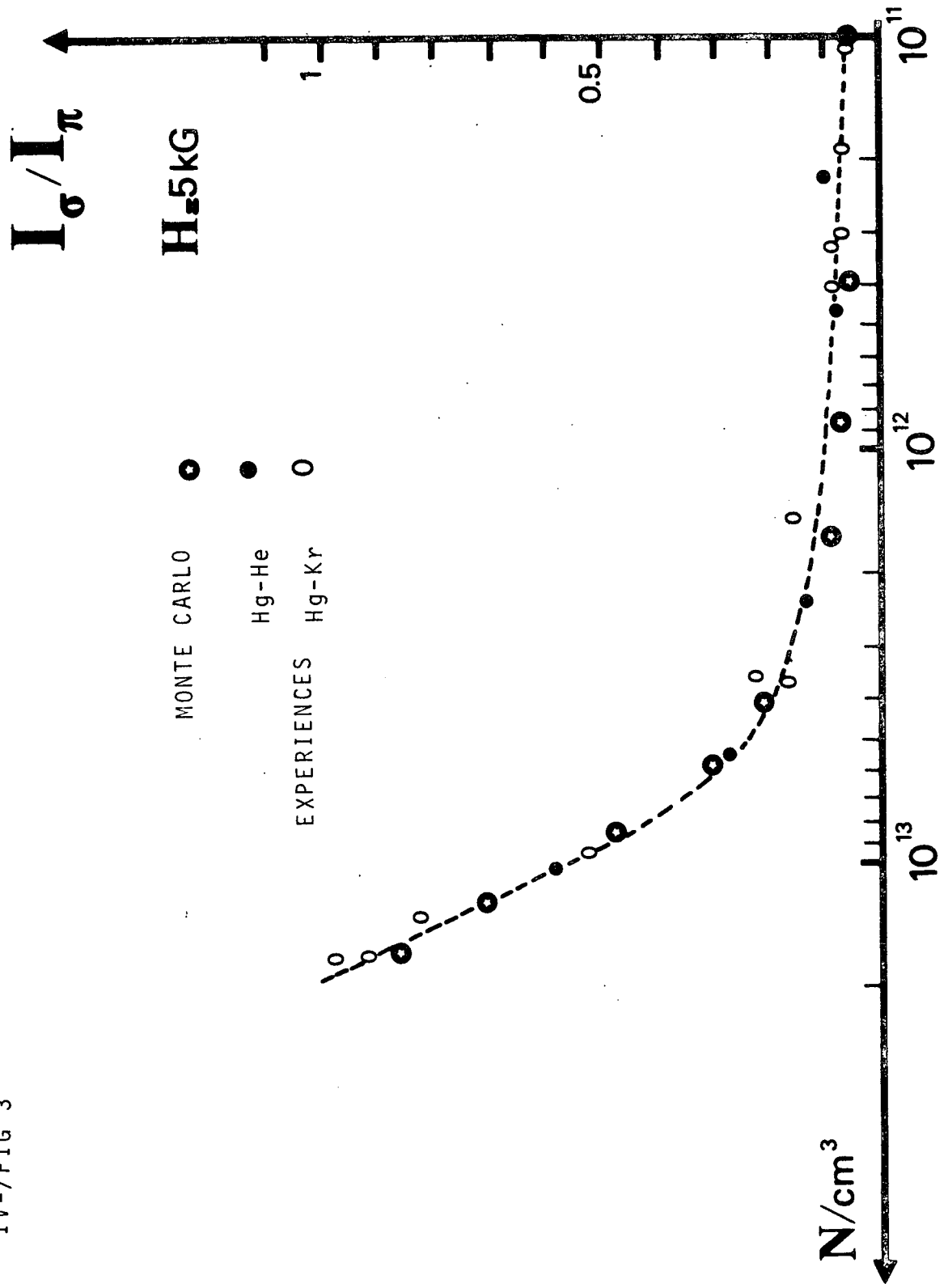


IV-/FIG 1

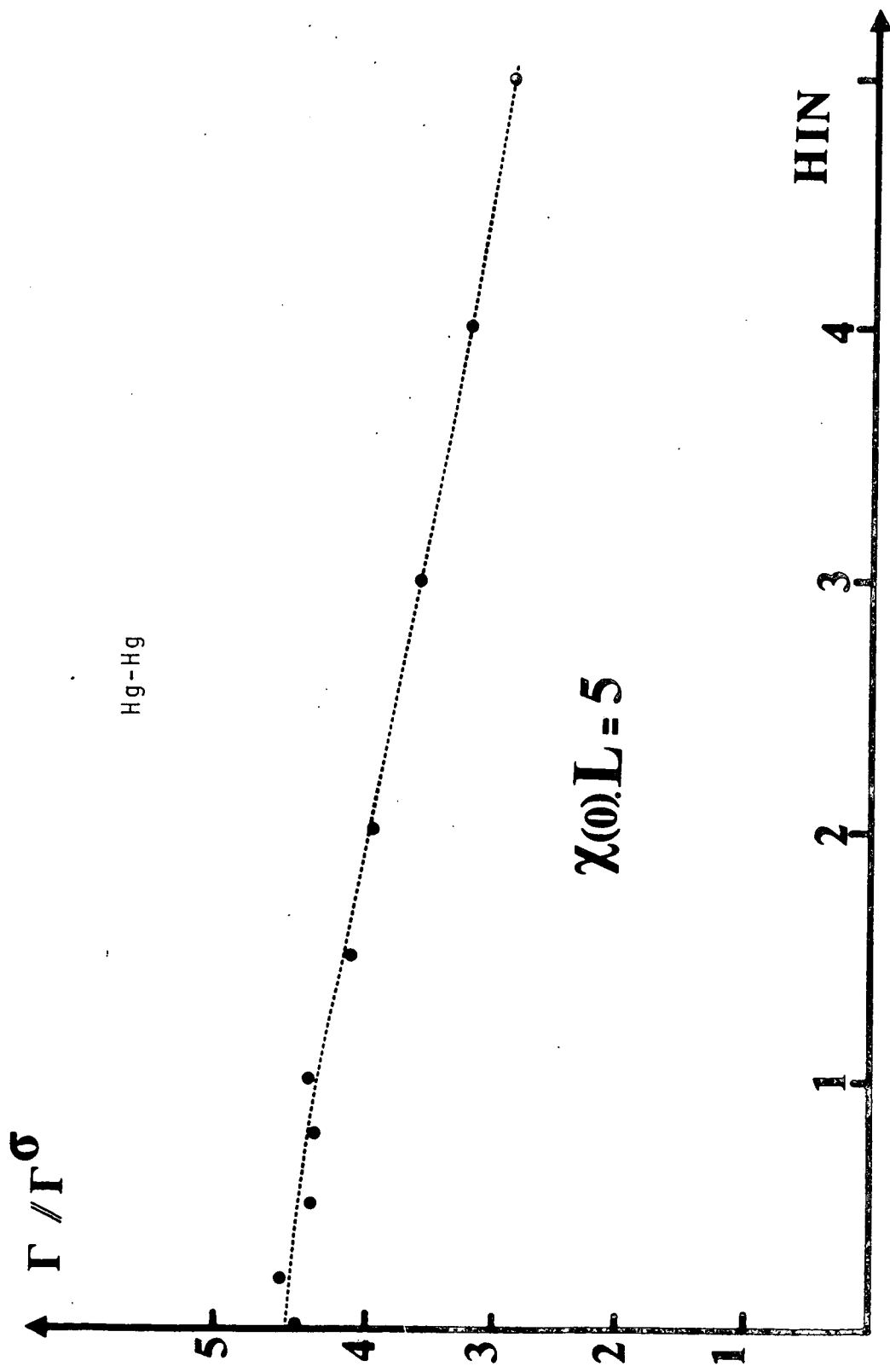


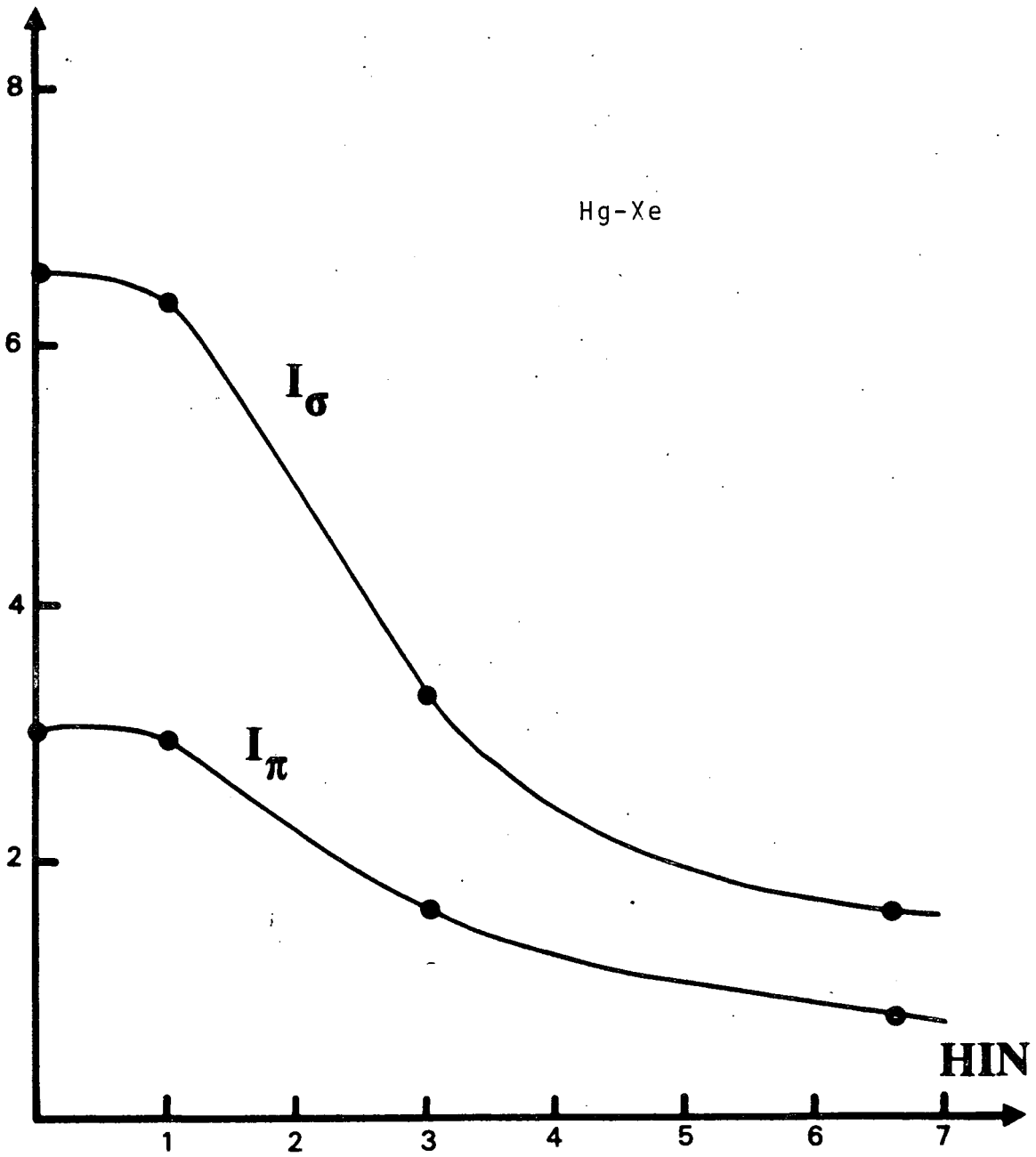
IV-//FIG 2

IV-/FIG 3



IV-/FIG 4





IV-/FIG 5

★ REFERENCES ★

- BARRAT J.P. : Thèse - Paris (1959)
J. de Phys. 20, 541, 633, 657 (1959)
- BIBERMAN L.M. : DAN SSSR 27, 920 (1940)
JETP, 17, 416 (1947)
- BLAMONT J.E. : Thèse - Paris (1956), Ann. Phys. 2, 551 (1957)
- CHANDRASEKHAR S. : Radiative Transfer, DOVER N.Y. (1960)
- DODSWORTH B.M., OMONT A. : Phys. Rev. A3, 1901 (1971)
- DODSWORTH B.M., GAY J.C., OMONT A. : Phys. Rev. A3, 1912 (1971)
- ERMATCHENKO V.M. : JETP 24, 1236 (1967)
- DYAKONOV M.I. et PEREL V.I. : JETP 20, 997 (1965)
- GUIOCHON M.A., BLAMONT J.E., BROSSEL J. : J. Phys. Rad., 18, 99 (1957)
- HAMMERSLEY J.M. and HANDSCOMB D.C. : Monte Carlo methods - Methuen and co. London
(1964)
- HOLSTEIN T. : Phys. Rev. 72, 1212 (1947)
Phys. Rev. 83, 1159 (1951)
- HUMMER D.G. et RYBICKI G.B. : Ann. Rev. Astron. Astroph. 9, 237 (1971)
- IVANOV V.V. : Transfer of Radiation in Spectral Lines (Ed. D.G. HUMMER)
N.B.S. Special Publication n° 385 - Washington (1973)
- JEFFERIES J.T. : Spectral Line Formation - Blaisdell- Waltham.
- PIPER J.A. and SANDLE W.J. : J. Phys. B 3, 10 (1970)
- OMONT A. : Thèse 3ème cycle - Paris (1961)
- OMONT A. et BROSSEL J. : C.R.A.S. 252, 710 (1961)
- OMONT A. : C.R.A.S. 252, 861 (1961)
- OMONT A. : Thèse - Paris (1967)
- OMONT A. : J. de Phys. 26, 576 (1965)
- OMONT A. : Non publié (1976)
- SANDLE W.J. and WILLIAMS O.M. : J. Phys. B, 4, 531 (1971)
- SCHERR : Phys. Rev. B 4, 3885 (1971)

CINQUIEME PARTIE

COLLISIONS QUASI-RESONNANTES ENTRE DEUX ISOTOPES

(TRANSITIONS $J=1 \rightarrow J=0$)

INTRODUCTION

Dans les deux articles qui suivent, on considère la situation où les deux atomes en interaction par le potentiel dipôle-dipôle en R^{-3} sont isotopes d'une même espèce chimique. Les énergies des transitions de résonance entre l'état excité $J = 1$ et l'état fondamental $J = 0$ des deux atomes diffèrent de la quantité ΔE . Le transfert de l'excitation lors de la collision n'est donc pas tout à fait résonnant. Le problème a la symétrie sphérique. La dégénérescence de rotation des niveaux de chaque atome n'est pas levée en l'absence d'interaction. La situation est donc très différente de celle étudiée dans les trois premières parties. L'étude a été effectuée avant celle des collisions en champ intense. La situation est en effet beaucoup plus simple puisqu'en raison de la symétrie sphérique du problème, les moyennes angulaires que nécessite le calcul de la matrice de relaxation peuvent être faites analytiquement. On peut donc résoudre l'équation de Schrödinger pour une collision quelconque de l'espace et en déduire par une rotation l'effet des autres collisions. Un choix quelconque de la base fixe de l'espace est possible et le plus judicieux est de choisir une base telle que l'axe Oz soit perpendiculaire au plan de collision. En raison des symétries du potentiel dipôle-dipôle, il est bien connu (OMONT-1967) que l'équation de Schrödinger dans cette base pour une transition $J=1 \rightarrow J=0$ se découple en deux systèmes différentiels. L'un d'ordre 2 décrit l'évolution des états moléculaires Π perpendiculaires au plan de collision, l'autre d'ordre 4 décrit l'évolution du système formé par les états Σ et les états Π parallèles au plan de collision. Cette propriété reste valable lorsque les atomes ne sont pas identiques.

L'article I est repris sous la forme publiée au Journal de Physique. Il traite d'un aspect particulier du problème abordé (évolution des états Π perpendiculaires au plan de collision) que nous avons développé en raison de sa simplicité (problème à 2 niveaux couplés par une interaction en R^{-3} et séparés par l'écart d'énergie ΔE) et de rapports étroits avec divers problèmes de théorie des collisions.

L'article II comporte un certain nombre de modifications par rapport à la version publiée au Journal de Physique (GAY-1974). On y donne les taux de relaxation et de transfert entre les deux atomes en fonction du défaut de résonance ΔE et on met en évidence diverses propriétés caractéristiques des processus quasi-résonnants. Les possibilités d'applications expérimentales dans le domaine des collisions atomiques (collisions entre isotopes) sont décrites mais elles sont beaucoup plus limitées que dans les situations analysées dans les trois premières parties. Par contre, l'extension aux collisions moléculaires (transfert entre niveaux de rotation) pourra présenter un grand intérêt. (GORDIETS et al. (1973), TAKAYANAGI (1973), VDOVIN et al. (1975)).

De manière générale, l'étude nous a permis de dégager les caractéristiques des processus quasi-résonnants et de mettre au point les méthodes numériques que l'on a pu par la suite appliquer aux collisions en champ intense. Par ailleurs une solution analytique approchée du problème fondée sur la méthode asymptotique développée par TSAO et CURNUTTE (1962) et sur une méthode de coupure permettant de tenir compte des collisions à courte distance (P.W. ANDERSON - 1949) a été proposée par OMONT (1967). Des méthodes analogues développant le travail initial de TSAO et CURNUTTE ont été abondamment utilisées dans le domaine des collisions moléculaires par BENEDICT et al (1963), RABITZ et al. (1970), OKA (1973) pour traiter le transfert par collision entre niveaux de rotation ou de vibration, et dans le domaine des collisions atomiques (PASMANTER et al - 1972). Il était donc intéressant de tester dans un cas simple la validité de ce type de traitement.

Article I

On traite dans cet article le cas d'un système à deux niveaux séparés par un écart d'énergie ΔE et couplés par un potentiel en R^{-3} . Bien que la forme en R^{-n} du terme d'interaction soit très simple, le modèle n'est pas soluble exactement. Une revue des cas solubles analytiquement dans le modèle à deux niveaux a été faite par NIKITIN (1970). Ceci n'est réalisable que dans des cas très particuliers où le système différentiel de deux équations du 1er ordre couplées peut se ramener à une équation du second ordre d'un type connu par exemple du type HYPERGEOMETRIQUE. Les modèles de LANDAU-ZENER, ELLISON-BOROWITZ, DEMKOV discutés par NIKITIN (1970) illustrent cette situation dans le cas de termes de couplage entre les niveaux

correspondant à diverses situations physiques (par exemple le transfert de charges ou de manière générale tous les problèmes où se produisent des croisements et anticroisements des courbes de potentiel). De nombreuses investigations sont faites pour tenter de résoudre des problèmes de ce genre qui se posent fréquemment en théorie des collisions, à l'aide de méthodes approchées de type méthode "steepest descent" ou en utilisant un formalisme analogue à celui développé par ZWAAN (1929) et STUECKELBERG (1932) (par exemple CROTHERS-1971).

• Un traitement analytique du problème résolu dans l'article I a été proposé par VAINSHTEIN et al. (1963) et SOBELMAN (1972). Il n'est pas en accord avec nos résultats numériques exacts. On doit cependant remarquer que le traitement de VAINSHTEIN et al. donne dans certains cas particuliers des résultats corrects, en général lorsqu'il existe lors de la collision une région de transition bien localisée. Leur modèle permet de retrouver en particulier dans un cas limite la formule de LANDAU-ZENER. Il a été amélioré par DUBROSKII (1964) et GAJIC et al (1973) mais ne paraît utilisable pour les potentiels variant en R^{-n} avec la distance qu'à la limite des petites vitesses (MASSEY - 1971). Il n'existe en définitive, aucun modèle analytique simple permettant de calculer les sections efficaces de transfert dans un système à deux niveaux couplés par un potentiel en R^{-n} . Ceci provient de la longue portée du potentiel et de l'absence de région de transition bien localisée.

• L'étude de ce problème nous a permis de dégager les caractéristiques essentielles de l'effet du défaut de résonance sur les sections efficaces de collision.

- On a montré que lorsque ΔE croît, il y a décroissance de la section efficace de transfert dont le comportement est caractéristique des phénomènes de résonance (ERMATCHENKO- 1973).

- Lorsque ΔE croît, le premier maximum de la probabilité de transfert est déplacé vers les petits paramètres d'impact. C'est aussi ce que l'on a observé dans le cas plus compliqué des collisions en champs intenses (cf. § I). Dans les situations physiques réelles, la section efficace proviendra donc de régions des courbes de potentiel à plus courtes distances que dans le cas où $\Delta E = 0$.

- On met en évidence que la probabilité de transfert de la population aux petites valeurs du paramètre d'impact ne vérifie pas le "principe" d'équipartition

et n'oscille pas autour de la valeur $1/2$. Les valeurs moyennes obtenues sont en général beaucoup plus petites et dépendent fortement de la valeur de ΔE . Ceci est important dans la mesure où cette hypothèse est très communément utilisée dans diverses extensions de l'analyse de TSAO et CURNUTTE (1962).

Article II

On expose les résultats de l'étude théorique des collisions entre isotopes d'une même espèce chimique pour des transitions $J=1 \rightarrow J=0$ de résonance.

- L'exploitation des symétries du problème est effectuée de manière systématique. On montre que le système différentiel équivalent à l'équation de Schrödinger se découple en un système (2x2) étudié dans l'article I et en un système (4x4) dont on déduit la solution générale par une seule intégration numérique.

- La relaxation est isotrope. Les éléments de la matrice de relaxation sont calculés en fonction de la valeur de l'écart d'énergie ΔE . On montre que les taux de transfert par collision entre les deux atomes décroissent sensiblement de manière exponentielle en fonction de ΔE . On montre l'apparition d'un déplacement important de la raie optique de l'atome émetteur, caractéristique du caractère non-résonnant du processus. A la limite des très grandes valeurs de l'écart d'énergie, les caractéristiques de la relaxation peuvent être prévues à l'aide d'un potentiel effectif en R^{-6} agissant sur un seul des atomes.

- On met en évidence le rôle du couplage radial et du couplage rotationnel entre les niveaux de la pseudo-molécule pour expliquer le comportement des coefficients de relaxation et de transfert aux grandes valeurs de ΔE et aux petits paramètres d'impact. La relaxation, sans transfert d'excitation réel à l'autre atome provient essentiellement du couplage rotationnel entre les niveaux de symétries différentes de la pseudo-molécule lorsque ΔE est grand. Le transfert de population entre les deux atomes provient au contraire du couplage radial entre états de même symétrie ($\Pi-\Pi$ ou $\Sigma-\Sigma$).

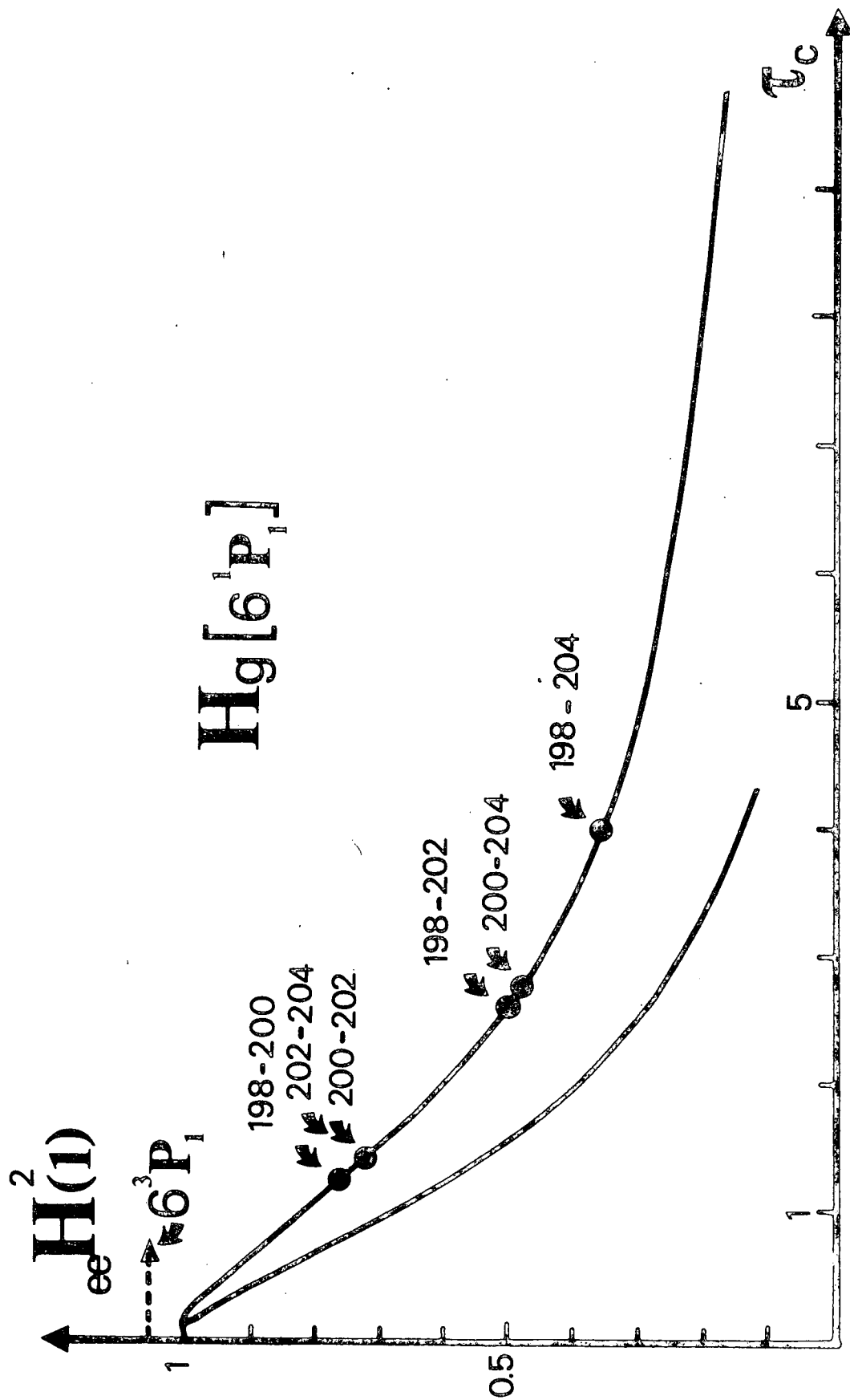
◦ Nous montrons enfin les limitations de la méthode asymptotique développée par TSAO et CURNUTTE en particulier dans le cas du transfert de la population. Dans la mesure où des méthodes analogues sont couramment utilisées dans le domaine des collisions moléculaires (transfert entre niveaux de rotation), il n'est pas exclu que cela conduise à une surestimation importante des sections efficaces pour les grandes valeurs de ΔE .

Les applications expérimentales possibles dans le domaine des collisions atomiques sont limitées par l'absence de déplacements isotopiques importants sur les raies de résonance des divers éléments.

- Une situation particulièrement favorable illustrée dans la figure ci-contre est celle offerte par la structure isotopique du Mercure dans le niveau 6^1P_1 . L'expérience tentée par G. MEUNIER (1975) n'a pu être menée à bien en raison des difficultés d'obtention d'une forme de raie non renversée à 1850 Å. Le principe de l'expérience était d'étudier par effet Hanle la relaxation de l'état excité d'un isotope du Mercure en traces dans un isotope plus concentré.

- L'étude expérimentale effectuée par CHERON et SAINTOUT (1971) sur le niveau 6^3P_1 du Mercure ne permet pas de mettre en évidence des effets importants provenant de l'existence du défaut de résonance (cf. FIGURE). En pratique les résultats expérimentaux sont compatibles à la fois avec les résultats de la théorie de l'article II tenant compte du défaut de résonance et avec les résultats d'OMONT (1967) obtenus dans le cas $\Delta E = 0$.

- Notons que la théorie prévoit des déplacements importants de la raie de résonance de l'atome émetteur pouvant devenir comparables à l'élargissement de cette raie. Il est possible que ceci puisse être mis en évidence en employant des techniques de haute résolution (par exemple transition à 3 photons sans effet Doppler).



Valeurs théoriques du coefficient de relaxation de l'alignement.

On a reporté sur la figure les régions de la courbe que l'on peut atteindre avec les isotopes du mercure dans les niveaux 6^1P_1 et 6^3P_1 .

REFERENCES

- ANDERSON P.W. : Phys. Rev. 76, 647 (1949)
- BENEDICT W.S. and HERMAN R. : J.Q.S.R.T. 3, 265 (1963)
- CHERON B. et SAINTOUT L. : J. Phys. 32, 751 (1971)
- CROTHERS D.S.F. : Advances in Physics, 20,86 - 405 (1971)
- DUBROVSKY G.V. : JETP 46, 863 (1964)
- ERMATCHENKO V. : CRAS 277, B 475 (1973)
- GAJIC N. and JANEV R.K. : Abstracts of the VIII I.C.P.E.A.C. (Belgrade 1973)
- GAY J.C. : J. de Physique, 35, 813 (1974)
- GORDIETS B.F., OSIPOV A.I., STUPOCHENKO E.V. and SHELEPIN L.A. : Sov. Phys. Uspekhi 15, 759 (1973)
- MASSEY H.S.W. : dans "Electronic and ionic impact phenomena" vol. III, OXFORD (1971)
- MEUNIER G. : Thèse 3ème cycle - Paris (1975)
- NIKITIN E.E. : Comments Atomic and Mol. Physics, 2, 59 (1970)
- OKA : Adv. At. Mol. Phys. 9 (1973)
- OMONT A. : Thèse - Paris (1967)
- PASMANTER R.A. and BEN REUVEN A. : J.Q.S.R.T. 13, 57 (1972)
- RABITZ H. A. and GORDON R.G. : J. Chem. Phys. 53, 1815, 1831 (1970)
- SOBELMAN I.I. : Introduction to the theory of the atomic spectra - PERGAMON (1972)
- STUECKELBERG E.C.G. : Hev. Phys. Acta 5, 369 (1932)
- TAKAYANAGI : Comments Atomic and Mol. Phys. 4, 59 (1973)
- TSAO C.J. and CURNUTTE B. : J.Q.R.S.T., 2, 41 (1962)
- VAINSHTEIN L., PRESNIAKOV L., SOBERMAN I.I. : JETP 16, 370 (1963)
- VDOVIN et GALITSKII : Soviet Phys. JETP 69, 103 (1975)
- ZWAAN A. : Thèse Utrecht (1929).

Classification
Physics Abstracts
 5.250 — 5.280

INFLUENCE D'UN ÉCART A LA RÉSONANCE SUR LES SECTIONS EFFICACES DE COLLISIONS QUASI RÉSONNANTES I. CAS D'UN SYSTÈME A DEUX NIVEAUX

J. C. GAY et A. OMONT

Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure (*)
 et Université Paris VII, 2, place Jussieu, Paris 5^e, France

(Reçu le 4 juillet 1973)

Résumé. — On étudie, dans le cadre d'une approximation à deux niveaux, l'effet d'un défaut de résonance sur la section efficace de collision dans le cas où le potentiel d'interaction varie en R^{-3} avec la distance. Il résulte que les travaux existant sur le sujet ne rendent pas correctement compte du comportement de la section efficace en fonction de l'écart d'énergie.

Abstract. — We study the behaviour of collision cross sections under the influence of an energy deficiency using a R^{-3} potential and a two state approximation. It ensues from this study that earliest works on the subject do not properly account for the dependence of the cross sections on the energy difference.

1. Introduction. — La théorie des collisions résonnantes est bien établie depuis les travaux de Omont [1], [2] et de Dyakonov et Perel [3]. Rappelons que de telles collisions se produisent lorsqu'un atome excité dans un niveau de résonance est perturbé par un atome identique (ou de même espèce chimique) dans l'état fondamental. Le terme essentiel de l'interaction responsable de l'élargissement des raies spectrales de l'atome ou des raies de croisement de niveaux de l'état excité est en général le potentiel dipôle-dipôle en R^{-3} . L'interaction étant résonnante, les sections efficaces obtenues sont grandes (10^{-12} - 10^{-13} cm²) et l'approximation de trajectoires classiques rectilignes durant la collision, est bien justifiée. Les nombreux résultats expérimentaux obtenus [2] ont confirmé la validité des diverses approximations effectuées et l'accord entre les valeurs théoriques et expérimentales est en général meilleur que 5 %.

Ces diverses théories ont en commun qu'elles supposent que l'écart d'énergie ΔE pouvant exister entre les niveaux de résonance de l'atome excité et du perturbateur est tel que :

$$\Delta E \cdot T_c \ll \hbar$$

où T_c représente la durée moyenne d'une collision.

Ceci signifie, plus précisément, que lors du calcul d'une collision, on peut négliger les effets de l'écart d'énergie devant ceux du potentiel dipôle-dipôle. Une

estimation de l'influence de l'écart d'énergie ΔE sur la section efficace de collisions résonnantes a été faite par Omont [1], [2] qui utilise la méthode asymptotique développée par Tsao et Curnutte [4], ceci en vue d'interpréter certaines expériences sur le niveau 6^3P_1 du mercure où l'on utilise un mélange des isotopes 199 et 204 [1], [2]. Dans ce cas, l'écart maximum d'énergie ΔE qui a pour origine la structure isotopique de volume et l'interaction hyperfine vaut 22 GHz et est de l'ordre de grandeur de $\hbar T_c^{-1}$. Soit

$$\Delta E \cdot T_c \sim \hbar.$$

L'accord paraît satisfaisant entre cette évaluation simplifiée et les résultats expérimentaux bien que l'effet expérimental ne puisse pas être regardé comme entièrement significatif [1], [2]. Néanmoins, certaines situations expérimentales exigent pour être interprétées correctement, une théorie plus raffinée où l'on tient compte, durant la collision de l'évolution supplémentaire créée par l'existence de l'écart à la résonance ΔE . Citons par exemple, l'étude sur le niveau 6^1P_1 du mercure, de collisions résonnantes entre les atomes d'isotopes différents. La situation peut être en effet fort différente pour un même élément selon la force d'oscillateur de la transition étudiée, celle-ci intervenant dans l'expression du potentiel et par suite, dans celle de la durée moyenne de la collision T_c . Ainsi pour le mercure

$$T_c(6^1P_1) \sim 5 T_c(6^3P_1).$$

(*) Associé au CNRS.

La structure isotopique de la raie de résonance restant sensiblement indépendante du niveau 6^3P_1 ou 6^1P_1 , considéré, il en résulte que :

$$\Delta E \cdot T_c(6^1P_1) \sim 5 \hbar$$

d'où la nécessité pour interpréter de telles expériences, d'une théorie tenant compte à la fois du potentiel de collision et de l'écart d'énergie [5].

On peut également envisager des situations expérimentales et théoriques où l'écart d'énergie ΔE n'a plus la symétrie sphérique. Par exemple, celle où il est créé par un champ magnétique intense de l'ordre de 80 kG [6]. Il est alors indispensable de refaire une théorie complète qui ne néglige plus l'effet du champ magnétique durant la collision.

Des expériences sont en cours dans les deux situations rapportées précédemment et seront comparées ultérieurement aux prévisions théoriques [5], [6].

Le but de notre présent travail est l'étude de l'influence du défaut de résonance ΔE sur la section efficace de collision, le potentiel de collision variant en R^{-3} avec la distance, dans un cas où l'on peut réduire à deux niveaux, le problème de collision. Plus précisément, une telle situation se présente lorsque l'on considère les collisions entre deux isotopes d'une même espèce atomique (transitions 1-0) [5], l'interaction étant du type dipôle-dipôle. Il est bien connu [1] que les symétries de cette interaction sont telles que les états moléculaires Π perpendiculaires au plan de collision ne sont pas couplés aux états Π et Σ appartenant au plan de collision. Il en résulte que l'on peut étudier dans ce cas simple à deux niveaux (néanmoins physiquement justifié), l'influence de l'écart d'énergie sur la section efficace de collisions. La forme générale du problème permet en outre, de le relier à d'autres études intéressant les collisions (transfert de charges, collisions moléculaires, transferts entre niveaux de structure fine lorsque la structure fine est petite) et dont on trouvera un aperçu dans le travail de Nikitin [7]. La plupart des questions liées à la fluorescence sensibilisée sont en dehors du cadre de notre étude puisque nous faisons implicitement l'hypothèse que le défaut de résonance ΔE est très petit comparé à l'énergie de translation de l'atome. Enfin, cette étude a permis la mise au point de méthodes numériques adaptées au traitement de problèmes physiques plus compliqués [5], [6].

Le plan de ce travail est le suivant :

Nous donnons au paragraphe 2 les propriétés de symétrie de la matrice de collision dont le principal intérêt est d'abrèger le calcul numérique dont nous donnons les résultats au paragraphe 3 ainsi que leur comparaison aux résultats de diverses méthodes d'approximation. Le paragraphe 4 est consacré à des remarques sur le calcul des sections efficaces et à l'exposé des résultats. Enfin nous comparons nos résultats numériques aux résultats analytiques proposés par divers auteurs au paragraphe 5.

2. Définition et symétries du problème. — 2.1

DÉFINITION. — Les notations utilisées sont analogues à celles déjà définies par Omont et Meunier [2]. Nous désignerons dans la suite par $|1\rangle$ et $|2\rangle$ les états du système formé par les atomes en collision.

Si a_i est l'amplitude de probabilité de trouver le système dans l'état $|i\rangle$, l'équation de Schrödinger s'écrit, dans un système d'unités où $\hbar = 1$:

$$i \frac{d}{dt} \begin{bmatrix} a_1 \\ a_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -\Delta E/2 & V_{12}(t) \\ V_{12}(t) & \Delta E/2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_1 \\ a_2 \end{bmatrix} \quad (1)$$

ΔE représente l'écart d'énergie entre les deux états du système en l'absence d'interaction et V_{12} le terme d'interaction proportionnel à R^{-3}

$$V_{12}(t) = \frac{p}{3R^3} = \frac{p}{3(b^2 + v^2 t^2)^{3/2}} = \frac{p}{3b^3(1 + x^2)^{3/2}}$$

avec

$$x = \frac{vt}{b} \quad r^2 = 1 + x^2$$

où b est le paramètre d'impact et v la vitesse relative des deux atomes ; p est un paramètre dépendant des atomes considérés.

Nous écrivons le système (1) en représentation d'interaction sous la forme :

$$i \frac{d}{dx} \begin{bmatrix} c_1 \\ c_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 & V \cdot e^{-i\eta x} \\ V \cdot e^{i\eta x} & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} c_1 \\ c_2 \end{bmatrix} \quad (1')$$

ou

$$i \frac{d}{dx} C(x) = \mathcal{U}(x) C(x)$$

avec

$$\eta = \Delta E \cdot \frac{b}{v} \quad V = \frac{q}{3r^3} = \frac{q}{3(1 + x^2)^{3/2}}$$

$$q = \frac{p}{b^2 v}$$

La variable sans dimension q que nous utiliserons souvent par la suite est donc proportionnelle à l'inverse du carré du paramètre d'impact.

Nous posons également

$$\Delta E_a = \left[\frac{v^3}{p \sqrt{\mu}} \right]^{1/2}$$

$$\tau = \frac{\Delta E}{\Delta E_a}$$

ΔE_a étant une énergie caractéristique du problème (1').

Il vient alors :

$$\eta = \Delta E \frac{b}{v} = \frac{\tau}{q^{1/2} \mu^{1/4}}$$

(1) Le paramètre μ s'introduit lorsque l'on traite le problème dans l'approximation d'Anderson (voir par exemple Omont [1]). Dans le présent cas, les calculs ont été conduits avec $\mu = 8/27$.

ΔE_n vaut par exemple 20 GHz pour les collisions résonnantes avec le niveau 6^3P_1 du mercure, 4 GHz pour le niveau 6^1P_1 , aux énergies thermiques.

2.2 SYMÉTRIES DE LA MATRICE DE COLLISION. — Le but de notre étude est le calcul de la matrice de collision S associée au système (1').

$S = U(+\infty, -\infty)$ où l'opérateur d'évolution $U(x, y)$ est défini par $C(x) = U(x, y)C(y)$.

L'opérateur $U(x, y)$ possède de nombreuses propriétés de symétrie bien connues [8], [9], [10] qui permettent d'alléger le calcul numérique de la matrice de collision, et qui ont été généralisées dans des cas plus compliqués [5], [6]. Ces propriétés sont les suivantes :

1. Unitarité

$$U(x) = U^+(x) \Rightarrow U \cdot U^+ = U^+ \cdot U = I.$$

2. Unimodularité

$$\text{Tr } U(x) = 0 \Rightarrow \text{Det } U(x, y) = 1.$$

3. Invariance par renversement du temps

$$U(x, y) = U^*(-x, -y).$$

On peut alors démontrer les relations (2)

$$w_1(x) = c_2(x)c_1^*(-x) - c_1(x)c_2^*(-x) = w_1(0)$$

$$w_2(x) = c_1(x)c_1(-x) + c_2(x)c_2(-x) = w_2(0). \quad (2)$$

Il en résulte en particulier

$$S = U(+\infty, -\infty) = \tilde{U}(0, -\infty) \cdot U(0, -\infty)$$

où \tilde{U} est la transposée de la matrice U .

En outre, on peut mettre la matrice S de collision sous la forme

$$S = \begin{bmatrix} \alpha & iy \\ iy & \alpha^* \end{bmatrix} \quad (2')$$

avec γ réel et $|\alpha|^2 + \gamma^2 = 1$.

En définitive, les relations (2) et (2') signifient que l'étude du système différentiel sur l'intervalle $(-\infty, 0)$ avec une seule condition initiale ($c_1(-\infty) = 1$, $c_2(-\infty) = 0$ par exemple) suffit pour obtenir la solution générale du problème de collision, ce qui permet de réduire le temps de calcul de manière appréciable (§ 3.1).

Enfin, remarquons que dans le cas particulier où l'écart d'énergie ΔE est nul, la solution cherchée s'écrit :

$$\alpha = \cos \frac{2q}{3} \quad \gamma = -\sin \frac{2q}{3}.$$

3. Intégration numérique et comparaison aux résultats de diverses approximations. — **3.1 MÉTHODES DE RÉOLUTION.** — Pour effectuer l'intégration numérique de l'équation de Schrödinger, nous avons utilisé la variable ψ telle que

$$\psi = \text{Arc tg } x$$

qui représente l'angle de rotation de l'axe internucléaire au cours de la collision. Cette variable est en effet mieux adaptée aux méthodes d'intégration à pas constant. Le système différentiel prend alors la forme :

$$i \frac{d}{d\psi} \begin{bmatrix} c_1 \\ c_2 \end{bmatrix} = \frac{q}{3} \cos \psi \begin{bmatrix} 0 & e^{-i\eta \text{tg } \psi} \\ e^{i\eta \text{tg } \psi} & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} c_1 \\ c_2 \end{bmatrix}. \quad (3)$$

La divergence existant dans le système différentiel en $\psi = \pm \pi/2$ peut être évitée soit par l'utilisation de formes asymptotiques [9], soit plus simplement en commençant l'intégration numérique au voisinage de $(-\pi/2)$. De toute évidence, la région où ψ est de l'ordre de $(-\pi/2)$ n'est pas importante car il ne s'y produit pas de transitions (elle correspond à la situation où les deux atomes sont infiniment éloignés).

Les difficultés de la résolution du système (3) tiennent essentiellement au caractère oscillatoire de ses solutions ce qui réduit la précision et la vitesse de l'intégration numérique.

Trois types de méthodes numériques ont été employés, les critères de choix étant évidemment la précision et la rapidité du calcul. Il s'agit de méthodes Runge-Kutta à 4 points, predictor-corrector Adams à 5 points et de la méthode d'extrapolation de Burlitsch et Stoer [11]. Cette dernière s'est révélée en général la plus performante à condition de faire choix d'un pas initial judicieux. Les méthodes ainsi mises au point dans ce cas simple à deux niveaux ont pu être réutilisées sans difficultés lors de la résolution de problèmes beaucoup plus compliqués [5], [6].

3.2 CARACTÉRISTIQUES DES SOLUTIONS NUMÉRIQUES.

— Les variations de l'amplitude de probabilité de transition γ en fonction de la variable q présentent plusieurs caractéristiques importantes :

— Un comportement oscillatoire régulier de période 3π dès que q est plus grand que 10, ceci indépendamment de la valeur de τ (cf. Fig. 1 dans le cas où $\tau = 10$).

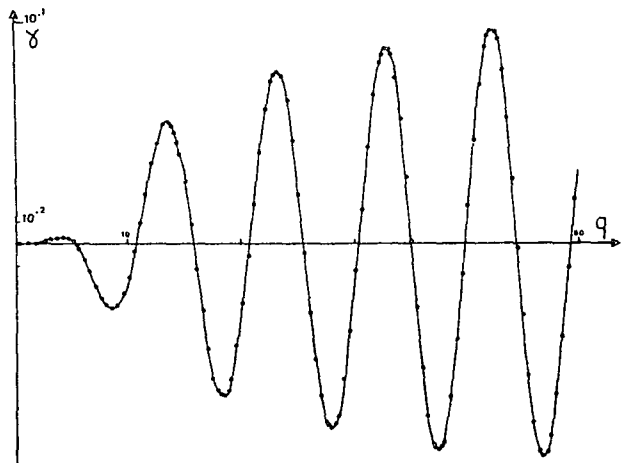


FIG. 1. — Evolution de l'amplitude de probabilité de transition γ en fonction du paramètre q proportionnel à l'inverse du carré du paramètre d'impact, dans le cas où τ vaut 10. On remarque la régularité des oscillations pour $q > 10$.

— L'amplitude de ces oscillations dépend fortement des valeurs de q et τ .

Plus précisément, lorsque τ est de l'ordre de 1 l'oscillation se produit entre 0 et 0,8 pour les valeurs de q supérieures à 10 (cf. Fig. 2 où l'on donne les

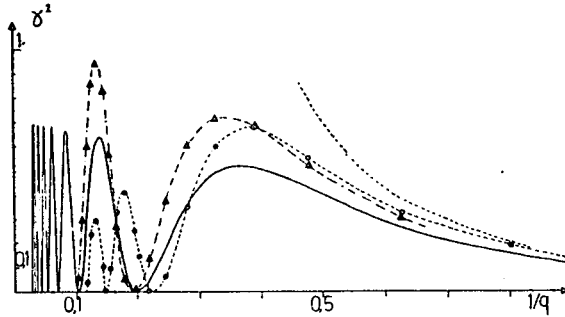


FIG. 2. — Probabilité de transition en fonction de $1/q$, dans le cas où $\tau = 1$ (courbe en traits pleins obtenue par résolution numérique). L'aire limitée par la courbe est proportionnelle à la section efficace de collision.

Développement de Magnus au deuxième ordre ---●---
 Théorie des perturbations (formule (7)) ---□---
 Approximation adiabatique (formule (9)) -.-▲-.-

variations de la probabilité de transition γ^2 en fonction de $1/q$ proportionnel au carré du paramètre d'impact). Lorsque τ vaut 10 (cf. Fig. 1), la valeur du maximum de l'amplitude pour q de l'ordre de 10 est 0,03 et donc très notablement inférieure à la valeur obtenue dans le cas où τ est de l'ordre de 1. En outre, la valeur du maximum de l'oscillation dépend fortement de q puisqu'elle vaut 0,11 pour q de l'ordre de 100. Cela entraîne en schématisant quelque peu et en anticipant sur la discussion du paragraphe 4, que la contribution des petits paramètres d'impact (inférieurs au rayon de Weiskopf) sera essentielle pour l'évaluation de la section efficace de collision aux grands écarts d'énergie ($\tau \sim 10$).

De ce fait, une étude de la région de faibles paramètres d'impacts (grandes valeurs de q) est nécessaire. Cette étude a été faite en utilisant les résultats précédents concernant le comportement de $\gamma(q)$.

Nous posons

$$\gamma(q, \tau) = H(q, \tau) \sin\left(\frac{2q}{3} + \varepsilon(q, \tau)\right) \quad (4)$$

et nous faisons l'hypothèse de variations lentes de $H(q, \tau)$ et $\varepsilon(q, \tau)$ en fonction de q . Ces approximations sont très bien vérifiées pour q supérieur à 50 (quelle que soit la valeur de $\tau \leq 10$). Elles permettent de déterminer $H(q, \tau)$ et $\varepsilon(q, \tau)$ avec précision tout en ne nécessitant que deux résolutions numériques du système (3) au voisinage de la valeur de q choisie.

En définitive, il apparaît qu'il est possible de mettre $H^2(q, \tau)$ sous la forme approchée (cf. Fig. 3)

$$H^2(q, \tau) = e^{-(\beta(\tau) + \delta(\tau)/q)} \quad (5)$$

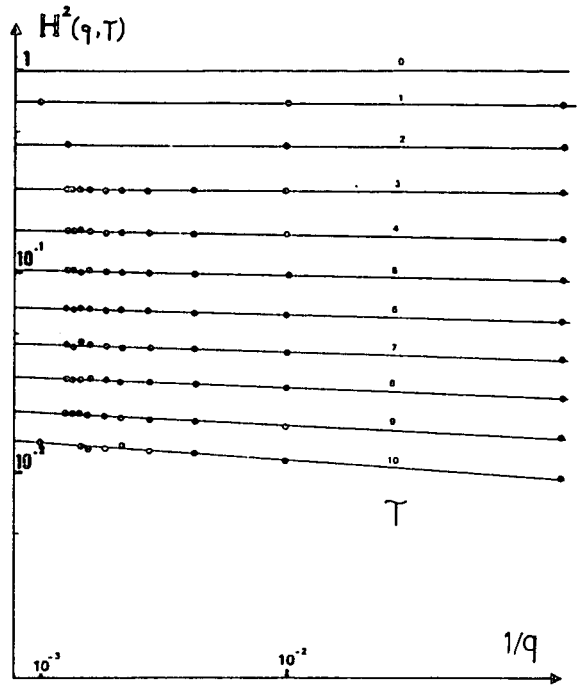


FIG. 3. — Variations de $H^2(q, \tau)$ en fonction de $1/q$ pour diverses valeurs de τ , en coordonnées logarithmiques.

$\beta(\tau)$ varie linéairement en fonction de τ (cf. Fig. 4)

$$\beta(\tau) \simeq 0,44 \cdot \tau.$$

Le déphasage $\varepsilon(q, \tau)$ est une fonction croissante de q et de τ et se sature à la limite des grandes valeurs de q . Mais il n'est pas possible de mettre sous une forme

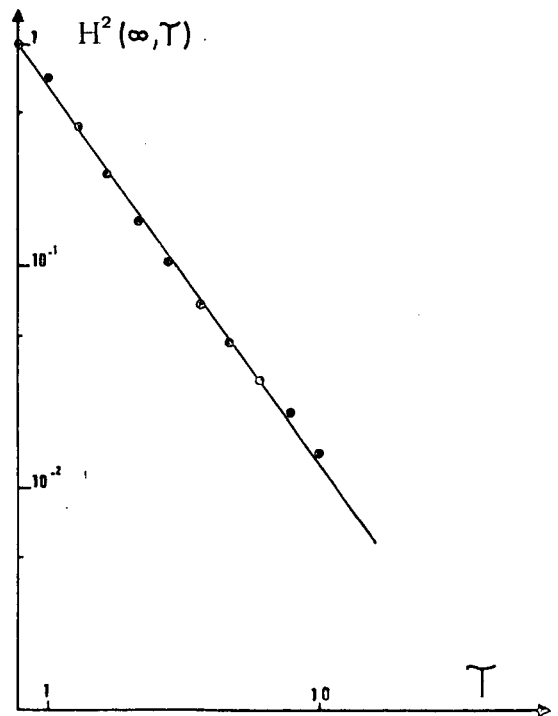


FIG. 4. — Variations de $H^2(\infty, \tau)$ en fonction de τ en coordonnées logarithmiques. La valeur de $H^2(\infty, \tau)$ a été extrapolée à partir des résultats de la figure 3.

simple la loi de variation de $\varepsilon(\infty, \tau)$ en fonction de τ . Enfin, malgré la simplicité de la forme empirique (5) il n'a pas été possible de lui donner une interprétation analytique satisfaisante.

3.3 COMPARAISON AVEC L'APPROXIMATION ASYMPTOTIQUE (LIMITE $q \rightarrow 0$). — L'étude de la région des grands paramètres d'impact peut être effectuée en utilisant un développement de perturbation ou mieux le développement de Magnus [10], [12], ce dernier permettant de conserver la propriété d'unitarité de la matrice de collision et ayant *a priori* un domaine de validité plus étendu.

Au deuxième ordre de cette approximation, il vient immédiatement :

$$S^{(2)} = \exp \left\{ -i \left[2 \frac{q}{3} \eta K_1(\eta) \sigma_x - \frac{q^2}{9} M \sigma_z \right] \right\}$$

d'où les éléments de la matrice de collision :

$$\begin{aligned} \alpha^{(2)} &= \cos W + i \frac{q^2}{9} M \cdot \frac{\sin W}{W} \\ \gamma^{(2)} &= -\frac{2q}{3} \eta K_1(\eta) \frac{\sin W}{W} \end{aligned} \quad (6)$$

avec

$$\begin{aligned} W &= \left[\frac{4}{9} q^2 \eta^2 K_1^2(\eta) + \frac{q^4}{81} M^2 \right]^{1/2} \\ M &= \int_{-\infty}^{+\infty} dx_2 \int_{-\infty}^{x_2} dx_1 \cdot \frac{\sin \eta(x_2 - x_1)}{r_1^3 \cdot r_2^3} \\ &= \frac{2}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \omega^2 K_1^2(\omega) \mathfrak{P} \mathfrak{F} \frac{1}{\eta - \omega} \cdot d\omega \end{aligned}$$

où $\mathfrak{P} \mathfrak{F}$ désigne la partie principale au sens de Cauchy et K_1 est la fonction de Bessel de deuxième espèce modifiée. On constate que lorsque l'écart d'énergie tend vers zéro $\alpha^{(2)}$ et $\gamma^{(2)}$ tendent vers la solution exacte du système. Lorsque q tend vers zéro, on retrouve le résultat de la théorie des perturbations

$$\gamma^{AS} \sim -\frac{2q}{3} \eta K_1(\eta). \quad (7)$$

La figure 2 permet de comparer les résultats de cette approximation au calcul numérique exact. Il apparaît que le développement de Magnus est une bien pauvre approximation de la probabilité de transition dès que q est supérieur à 1. De ce fait, les sections efficaces que l'on pourrait obtenir à partir de ce modèle représenteraient très mal la réalité [10].

Par contre dans la région où q est inférieur à 0,1, l'accord entre le calcul numérique et le développement de Magnus qui se réduit alors pratiquement au développement de perturbation, est bon ; ceci permet de restreindre le domaine de l'intégration numérique aux valeurs de q supérieures à 0,1.

3.4 COMPARAISON A L'APPROXIMATION ADIABATIQUE. — Ecrivant l'équation de Schrödinger dans la base des vecteurs propres du Hamiltonien il vient :

$$\frac{dC_{\pm}(x)}{dx} = \pm \frac{\dot{\varphi}(x)}{2} \exp \left(\pm 2i \int_0^x E(x') dx' \right) \cdot C_{\pm}(x) \quad (8)$$

avec

$$E(x) = \left[\frac{\eta^2}{4} + V^2(x) \right]^{1/2}$$

et

$$\dot{\varphi}(x) = \frac{\eta}{2 E^2(x)} \frac{dV}{dx}.$$

Au premier ordre de perturbation l'amplitude de probabilité de transition par collision se met sous la forme :

$$\gamma^{AD} = \int_0^{+\infty} \dot{\varphi}(x) \cdot \sin \left(2 \int_0^x E(x') dx' \right) \cdot dx. \quad (9)$$

Une telle approximation n'est *a priori* valable que pour des valeurs de la probabilité de transition très faibles. Les figures 5 et 6 montrent les courbes obtenues pour q de l'ordre de 100. Lorsque τ égale 1, on constate que l'approximation adiabatique est mauvaise, du moins au premier ordre du calcul de perturbation (cf. Fig. 2 et 6). Ceci n'est pas surprenant puisque la valeur maximale de l'amplitude de probabilité de transition est dans ce cas de l'ordre de 1. Lorsque τ égale 10, l'accord entre le calcul numérique et l'approximation adiabatique est meilleur (de l'ordre de 10 % en valeur relative). Enfin, la période des oscillations est en accord avec la valeur 3π déjà mentionnée.

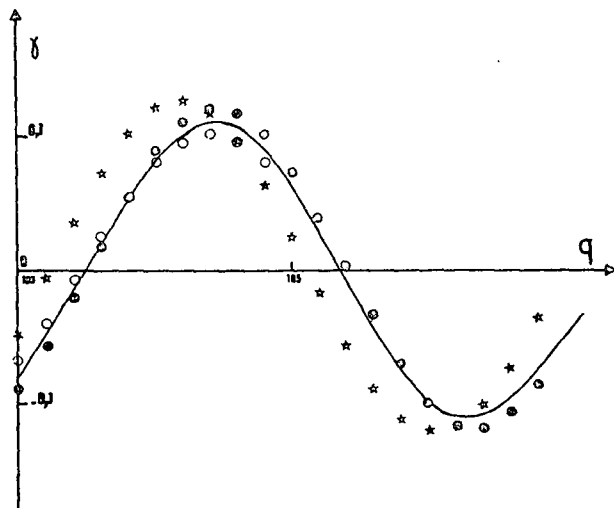


FIG. 5. — Comparaison de la valeur exacte de γ obtenue numériquement aux valeurs obtenues par diverses approximations pour $\tau = 10$ et $q \sim 100$.

- Calcul numérique exact.
- Approximation adiabatique (9).
- (formule (10)).
- * Sobelman et coll. (formule (14)).

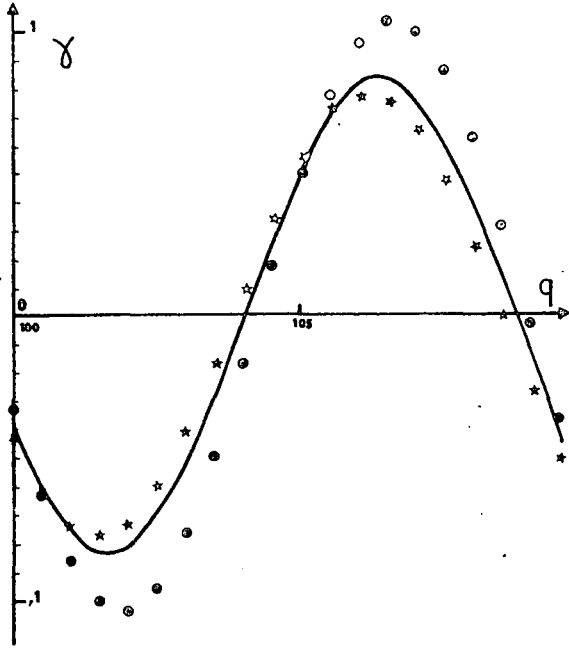


FIG. 6. — Comparaison analogue à celle de la figure 5, pour $\tau = 1$. Nous n'avons pas porté les résultats de l'approximation (10) qui s'écarte notablement de la solution exacte. On constate dans ce cas que la formule (14) donne des résultats en bon accord avec le calcul numérique.

Ainsi, ce modèle adiabatique, s'il n'est pas entièrement satisfaisant du point de vue quantitatif, rend compte qualitativement de façon correcte des caractéristiques des solutions du système (3) dans la région des faibles paramètres d'impact. Il est possible de mettre l'expression (9) sous la forme d'une intégrale simple en utilisant la méthode suivante : on effectue dans l'expression (9) le changement de variable :

$$\psi = \text{Arc tg } x$$

d'où

$$\gamma^{\text{AD}} = \int_0^{\pi/2} d\psi \cdot G(\psi) \sin 2 \int_0^{\psi} s(\psi') d\psi' \quad (9')$$

avec

$$s(\psi) = \frac{E(\psi)}{\cos^2 \psi}$$

et

$$G(\psi) = -\frac{q\eta}{2} \frac{\sin \psi}{s^2(\psi) \cdot \cos^2 \psi}$$

$G(\psi)$ et $s(\psi)$ sont représentées sur la figure 7. Il apparaît que $G(\psi)$ est localisée et atteint son maximum au voisinage du point ψ_0 où $s(\psi)$ présente un minimum, et tel que

$$\cos^6 \psi_0 = \frac{9 \eta^2}{2 q^2}.$$

Par conséquent, l'essentiel de la transition dans le

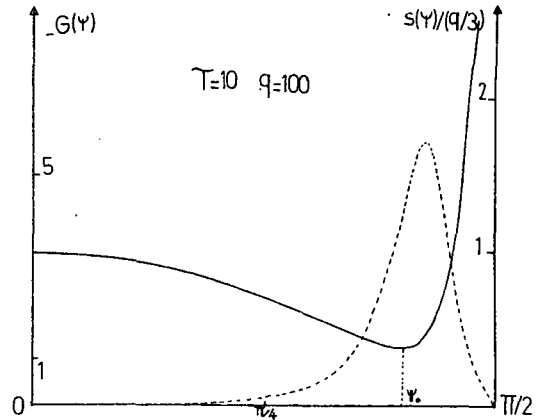


FIG. 7. — Variations de la « pseudo-énergie » $s(\psi)$ et de la force du potentiel en représentation adiabatique. On constate que $G(\psi)$ est localisée dans la région du minimum de $s(\psi)$.

problème équivalent en ψ s'effectue dans la région où ψ est de l'ordre de ψ_0 .

Il est alors justifié de remplacer (9') par (10) :

$$\gamma^{\text{AD}} \sim \int_{\pi/4}^{\pi/2} G(\psi) \sin 2 J(\psi) \cdot d\psi \quad (10)$$

avec

$$J(\psi) = \int_0^{\psi_0} s(\psi) d\psi + (\psi - \psi_0) s(\psi_0) + \frac{(\psi - \psi_0)^3}{9} \frac{q^2 \cdot \sin^2 \psi_0}{s(\psi_0) \cos^2 \psi_0}$$

où l'on a développé l'argument du sinus autour de la valeur ψ_0 .

Cette approximation pour $\tau = 10$ et $q = 100$, conduit à un accord de 10 % avec la solution exacte (Fig. 5). Elle permet d'autre part de justifier le comportement oscillatoire de γ . En effet dans les conditions précédentes, l'argument du sinus comporte un terme constant $J(\psi_0)$ tel que

$$J(\psi_0) = \int_0^{\psi_0} s(\psi) \cdot d\psi.$$

Lorsque q est grand, l'écart d'énergie devient négligeable devant le potentiel de collision et donc

$$s(\psi) \sim \frac{q}{3} \cos \psi.$$

Soit

$$J(\psi_0) \sim \frac{q}{3} \sin \psi_0 \sim \frac{q}{3}.$$

L'origine physique de ces oscillations peut donc être attribuée à un effet d'interférence entre les deux chemins permettant d'effectuer la transition, le système évoluant librement entre les deux régions de transition $\psi \sim \pm \psi_0$.

Remarquons enfin que pour $\psi = \pm \psi_0$,

$$V_{12}(R_0) = \Delta E / \sqrt{2}.$$

Pour les grandes valeurs de q , les transitions s'effectuent autour de ces points mais elles n'y sont pas très localisées : il est clair sur la figure 7 que l'extension de la zone de transition est du même ordre que $(\pi/2 - \psi_0)$: le potentiel en R^{-3} varie relativement lentement et la zone de transition s'étend du côté des grandes valeurs de R sur une distance de l'ordre de R_0 . Ceci explique en partie les difficultés rencontrées pour trouver une solution analytique satisfaisante.

4. Calcul des sections efficaces. — Nous définissons la section efficace de transfert par collision par la relation :

$$\begin{aligned} \sigma(v, \tau) &= 2\pi \int_0^{+\infty} \gamma^2(b) \cdot b \, db \\ &= \frac{\pi p}{v} \Sigma(v, \tau) \end{aligned} \quad (11)$$

avec

$$\Sigma(v, \tau) = \int_0^{+\infty} \frac{\gamma^2}{q^2} \cdot dq. \quad (11')$$

4.1 SOMMATION SUR LE PARAMÈTRE D'IMPACT. — Cette sommation est effectuée en distinguant trois régions de paramètre d'impact :

a) Une région asymptotique correspondant aux valeurs de q inférieures à A , où γ^{AS} (éq. (7)) est une bonne approximation de l'amplitude de probabilité de transition et qui correspond physiquement aux collisions à longue distance. Nous avons choisi $A = 0,1$ (cf. § 3.3).

b) Une région intermédiaire :

$$A \leq q \leq B$$

où le calcul numérique de γ est nécessaire quelle que soit la valeur de la différence d'énergie ΔE (excepté dans le cas où $\Delta E = 0$).

c) Une région de collisions fortes $q > B$.

Il vient donc

$$\Sigma = \Sigma^{AS} + \Sigma^{NU} + \Sigma^{CF}.$$

L'évaluation de la contribution asymptotique Σ^{AS} à la section efficace est aisée.

Il vient :

$$\begin{aligned} \Sigma^{AS} &= \int_0^{0,1} (\gamma^{AS})^2 \frac{dq}{q^2} \\ &= \frac{4}{9} \frac{\tau^2}{\mu^{1/2}} [K_1^2(\eta_0) - K_0^2(\eta_0)] \end{aligned}$$

où η_0 est la valeur de η lorsque q vaut 0,1.

Pratiquement, lorsque τ est plus grand que 1, la contribution Σ^{AS} est totalement négligeable.

Nous n'avons pas pu déterminer analytiquement la valeur moyenne de γ^2 pour les petites valeurs du

paramètre d'impact. De ce fait, le choix de la valeur à adopter pour B est délicat. Nous avons en définitive choisi : B de l'ordre de 10 (excepté dans le cas où $\tau = 10$ où nous avons pris $B \simeq 50$). La région $q \leq B$ correspond alors aux deux premières oscillations de la section efficace. Remarquons que ce choix est certainement bon pour les valeurs de τ telles que :

$$0 \leq \tau \leq 2$$

pour lesquelles la région $q < 10$ donne la majeure partie de la section efficace de collision (cf. Fig. 2), mais qu'il devient discutable dès que τ est supérieur à 4, l'essentiel de la section provenant alors de la région de petits paramètres d'impact.

Nous avons utilisé les résultats du paragraphe 3.2 (formule empirique (5)) pour évaluer la contribution Σ^{CF} . Ceci nous a semblé préférable à l'utilisation de l'approximation adiabatique (formule (9)) dont les résultats sont relativement imprécis et de ce fait peu adaptés au calcul de Σ^{CF} qui donne lorsque τ est supérieur à 5 l'essentiel de la section de collision.

Il vient alors :

$$\Sigma^{CF} = \int_B^{+\infty} H^2(q, \tau) \sin^2 \left(\frac{2q}{3} + \varepsilon(q, \tau) \right) \cdot \frac{dq}{q^2}.$$

L'hypothèse de variations lentes de $H(q, \tau)$ et $\varepsilon(q, \tau)$ en fonction de q autorise à remplacer le terme oscillant par sa moyenne, soit :

$$\begin{aligned} \Sigma^{CF} &= \frac{1}{2} \int_B^{+\infty} \frac{H^2(q, \tau)}{q^2} \cdot dq \\ \Sigma^{CF} &= \frac{e^{-\beta}}{2} \delta (1 - e^{-\delta/B}) \end{aligned} \quad (12)$$

où nous avons utilisé la relation empirique (5).

Remarques. — Lorsque τ est inférieur à 1 la formule (12) est une bonne approximation de la section de collisions fortes parce qu'elle ne contribue que faiblement à la section totale et que pour q supérieur à 10, la probabilité de transition a pratiquement atteint sa valeur de saturation (Fig. 2). En d'autres termes

$$\frac{\delta}{B} \ll 1 \quad \text{et} \quad H^2(B, \tau) \simeq H^2(\infty, \tau)$$

Soit

$$\Sigma^{CF} \simeq \frac{e^{-\beta}}{2B}.$$

Ceci signifie également que dans le domaine où τ est inférieur à 1 des procédures analogues à celles employées dans le cas parfaitement résonnant ($\tau = 0$) (voir par exemple les références [1] et [4]), restent applicables à condition de remplacer par $\frac{1}{2} H^2(q \sim 10, \tau)$ la valeur $\frac{1}{2}$ couramment admise dans la théorie d'Anderson pour la moyenne de la probabilité de transition aux faibles paramètres d'impact. Lorsque τ est

TABLEAU I

Variations de la section efficace réduite Σ (ég. (11')) en fonction du paramètre τ proportionnel à l'écart d'énergie à vitesse relative fixée. Les valeurs de la colonne 4 ont été calculées à partir de l'éq. (15). (ég. (46.46) de la référence [13b]).

$\tau = \frac{\Delta E}{\Delta E_a}$	Σ	$\frac{\Sigma}{\Sigma(0)}$	Sobelman et coll. [13b] $\frac{\Sigma}{\Sigma(0)}$
0	$\frac{\pi}{3}$	1	1
0,2	0,873	0,835	0,505
0,4	0,685	0,645	0,302
0,6	0,533	0,510	0,191
0,8	0,412	0,394	0,126
1	0,318	0,304	$0,85 \times 10^{-1}$
2	$0,94 \times 10^{-1}$	$0,9 \times 10^{-1}$	$0,17 \times 10^{-1}$
3	$0,33 \times 10^{-1}$	$0,31 \times 10^{-1}$	$0,52 \times 10^{-2}$
4	$0,13 \times 10^{-1}$	$0,13 \times 10^{-1}$	$0,20 \times 10^{-2}$
5	$0,6 \times 10^{-2}$	$0,58 \times 10^{-2}$	$0,94 \times 10^{-3}$
6	$0,3 \times 10^{-2}$	$0,3 \times 10^{-2}$	$0,48 \times 10^{-3}$
7	$0,17 \times 10^{-2}$	$0,16 \times 10^{-2}$	$0,26 \times 10^{-3}$
8	$0,10 \times 10^{-2}$	$0,97 \times 10^{-3}$	$0,15 \times 10^{-3}$
9	$0,57 \times 10^{-3}$	$0,55 \times 10^{-3}$	$0,88 \times 10^{-4}$
10	$0,34 \times 10^{-3}$	$0,32 \times 10^{-3}$	$0,54 \times 10^{-4}$

de l'ordre de 10, il n'est pas sûr que la saturation de la probabilité de transition soit atteinte et en toute rigueur, pour $q < 100$, il n'est pas justifié de remplacer la fonction périodique par sa moyenne. L'erreur relative commise sur Σ pour ces valeurs de τ peut donc être assez grande et en tout cas supérieure à la valeur 1 % que nous admettons dans le cas où τ est de l'ordre de 1. L'amélioration de la précision de l'évaluation est d'autre part sans intérêt, puisque dans la région de collisions fortes se pose le problème de la validité du potentiel en R^{-3} utilisé.

4.2 SECTIONS EFFICACES. — La section efficace totale obtenue est donnée dans le tableau I en fonction de la variable τ qui représente l'écart d'énergie à vitesse relative fixée.

La figure 8 où est porté $\Sigma/\Sigma(0)$ en fonction de τ montre que la décroissance de la section efficace est sensiblement exponentielle avec deux constantes de temps.

Pour $\tau < 3$

$$\Sigma \sim \Sigma(0) \cdot e^{-\tau/0,87}$$

Pour $5 < \tau < 10$

$$\Sigma \sim 8,5 \times 10^{-2} \Sigma(0) \cdot e^{-\tau/1,8}$$

avec

$$\Sigma(0) = \frac{\pi}{3}$$

La zone de transition entre les deux modes de décroissance se situe pour τ de l'ordre de 5 et coïncide en première approximation avec l'égalité des contribu-

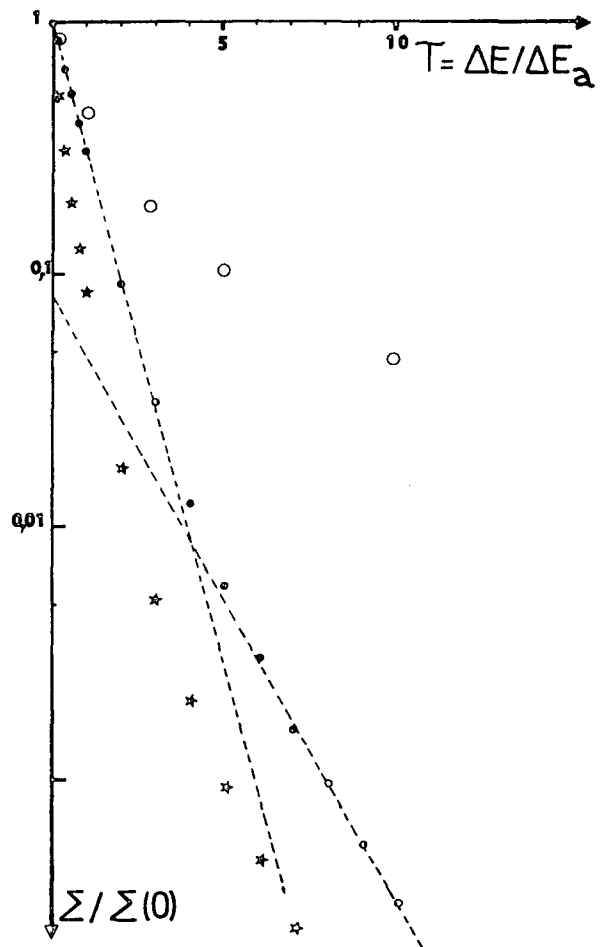


FIG. 8. — Section efficace totale en fonction de τ .

- Ce travail.
- * Sobelman et coll. (Formule (15)).
- (Formule (13)).

ctions à la section efficace des régions de paramètres d'impact inférieur ou supérieur à B (B de l'ordre de 10).

Pour $\tau < 5$

$$\Sigma \simeq \Sigma^{AS} + \Sigma^{NU}$$

$\tau > 5$

$$\Sigma \simeq \Sigma^{CF}$$

Cela montre une nouvelle fois l'importance de la région de petits paramètres d'impact pour l'évaluation de la section efficace aux grands écarts d'énergie (ou aux petites vitesses), et pose donc le problème de la validité du potentiel en R^{-3} utilisé. Nous renvoyons pour une discussion plus générale de ce problème à la référence [5]. Néanmoins l'on peut dire que la nécessité de l'adjonction d'un potentiel de type van der Waals dépend essentiellement de l'espèce atomique considérée et de la force d'oscillateur de la transition. Ainsi pour illustrer ce dernier point, on peut supposer que l'effet sur la section efficace du potentiel en R^{-6} aux courtes distances sera probablement important pour le niveau 6^3P_1 du mercure, aux grands écarts d'énergie, tandis qu'il restera très faible pour le niveau 6^1P_1 dont la force d'oscillateur est beaucoup plus importante.

5. **Comparaison à des études antérieures.** — Les essais de traitements analytiques de ce problème sont peu nombreux. Il faut citer l'étude effectuée en 1966 par Callaway et Bartling [10] d'un problème plus général où l'on considère l'effet supplémentaire d'un potentiel diagonal en R^{-n} . Les résultats de l'étude (très restreinte) de l'influence du défaut d'énergie sur la section efficace de collision ne sont pas comparables directement aux nôtres. Le traitement analytique proposé, fondé sur le développement de Magnus n'est évidemment pas satisfaisant (cf. § 3.3).

Un autre type de traitement déjà mis en œuvre par Tsao et Curnutte [4] et modifié par Omont [1] utilise la solution asymptotique du problème et une méthode de coupure (cf. 4.1) pour prendre en compte les collisions fortes. Appliquant cette méthode à notre problème et utilisant la formule asymptotique (7), il vient :

$$[\gamma^{AS}(q_c)]^2 = \left[\frac{3}{2} q_c \eta_c K_1(\eta_c) \right]^2 = \frac{1}{2}$$

$$\Sigma_c = \int_0^{q_c} \left(\frac{\gamma^{AS}}{q} \right)^2 dq + \int_{q_c}^{+\infty} \frac{dq}{2q^2}$$

ou, tous calculs faits :

$$\Sigma_c = \Phi(\tau) \Sigma_c(0)$$

$$\begin{cases} \Phi(\tau) = \frac{\sqrt{3}}{2} \tau^2 (2 K_1^2(\eta_c) - K_0^2(\eta_c)) \\ \Sigma_c(0) = 0,95 & \Phi(0) = 1 \\ q_c \eta_c K_1(\eta_c) = \left(\frac{9}{8} \right)^{1/2} \end{cases} \quad (13)$$

η_c désignant la valeur de η lorsque q vaut q_c . La section efficace est donc donnée par un système de deux équations.

D'après les remarques que nous avons faites aux paragraphes 3 et 4, cette méthode doit donner une mauvaise approximation de la section efficace aux grandes valeurs de l'écart d'énergie. De fait, la figure 8 montre que pour τ de l'ordre de 1, l'approximation précédente conduit à une valeur 50 % au-dessus de la valeur réelle. Ce traitement ne semble valable que pour

$$\tau < 0,2$$

c'est-à-dire pour des valeurs de l'écart d'énergie pour lesquelles le calcul de la section efficace ne présente pas de difficultés majeures et où l'égalité

$$\langle (y^{CF})^2 \rangle \simeq \frac{1}{2}$$

est bien vérifiée.

Le traitement le plus intéressant dont nous avons connaissance est en définitive celui de Vainshtein, Presniakov et Sobelman. Quelques erreurs existent dans la publication initiale [13a] et nous lui préférons la version donnée ultérieurement par Sobelman dans « *Introduction to the theory of the atomic spectra* » [13b] lorsque cela est possible. L'emploi de méthodes asymptotiques permet de mettre la probabilité de transition sous la forme ([13b], éq. (46.23))

$$\gamma^2 = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} V(x) \cos \left(\int_0^x \sqrt{\eta^2 + 4V^2(x')} dx' \right) \cdot dx \right|^2 \quad (14)$$

Si cette forme de γ^2 ne paraît pas totalement justifiée théoriquement, l'évaluation numérique fait apparaître un accord satisfaisant pour $\tau = 1$, moins bon pour $\tau = 10$ avec la solution exacte (Fig. 5 et 6).

Cependant, la procédure qui conduit à l'expression analytique ((46.35) de [13b]) de la probabilité de transition paraît erronée et en tous cas ne donne qu'une très médiocre estimation de l'expression (14), l'accord n'étant jamais meilleur que 50 %. Il en résulte que la section efficace ((46.46) de [13b]) ainsi obtenue

$$\Sigma = \Sigma(0) \exp \left[- \left(\frac{3}{2} \right)^{1/6} \tau^{2/3} \right] I_3(\beta) \quad (15)$$

$$I_3 = \int_0^{+\infty} \sin^2 \frac{2}{y^2} \cdot y \times \\ \times \exp \left\{ - \left(\frac{3}{2} \right)^{1/6} \tau^{2/3} \left[\sqrt{1 + y^2} 2^{5/6} 3^{1/6} \tau^{2/3} - 1 \right] \right\} \cdot dy$$

que nous avons retabulée (l'expression et par suite la tabulation de I_3 effectuées dans [13a] sont fausses) représente très mal la réalité (Tableau I et Fig. 8). Une exploitation analytique rigoureuse de (14) paraît cependant difficile à mener à bien.

Conclusion. — L'étude de ce problème simple à deux niveaux couplés par un potentiel en R^{-3} a permis de mettre en évidence un certain nombre de difficultés que l'on peut attribuer à la longue portée du potentiel et à la présence du défaut d'énergie ΔE qui complique la résolution numérique et rend délicate la mise en œuvre de méthodes d'approximation. Plus précisément, l'absence d'une zone de transition bien délimitée au cours de la collision rend difficile l'évaluation précise de la probabilité de transition par une méthode analytique. (Ce résultat doit être valable plus généralement pour un potentiel en R^{-n} .) En particulier la notion de pseudo-croisements de niveaux moléculaires et la formule de Landau-Zener [7] sont sans intérêt ici. Les sections efficaces de collision obtenues essentiellement par des méthodes numériques ont été comparées à celles données par les théories existantes. De cette comparaison, il résulte que la théorie d'Anderson améliorée par Tsao et Curnutte [4] et Omont [1] ne rend pas compte de façon satisfaisante des variations de la section efficace en fonction de l'écart d'énergie. Il en est de même de la méthode asymptotique proposée par Vainshtein, Presniakov et Sobelman [13] qui bien que séduisante et donnant la valeur exacte de la section efficace dans certains cas particuliers est obtenue après de trop nombreuses hypothèses simplificatrices qui ne sont pas toujours justifiées dans le cas d'un potentiel en R^{-n} . Il est cependant possible que cette méthode donne une meilleure estimation de la section efficace de collision dans des cas où la zone de transition est mieux localisée.

Par conséquent, il est difficile d'obtenir une forme analytique précise de la section efficace de collision, fût-ce dans le cas particulièrement simple où l'on

connaît bien la forme du potentiel et où l'approximation à deux niveaux est justifiée.

L'essentiel des caractéristiques précédentes, périodicité des solutions, zone de transition mal définie, difficulté d'une interprétation quantitative précise du comportement de la solution exacte dans la zone de collisions fortes, est retrouvé avec l'interaction en R^{-3} lors de l'étude de systèmes mathématiquement et physiquement plus complexes [5], [6].

Les résultats précédents permettent d'autre part d'affirmer que la méthode proposée par Omont [1] ne rendra compte de la variation des taux de relaxation par collision que sur un domaine restreint d'énergie et de ce fait justifient l'étude numérique précise entreprise dans ces situations. Cela signifie également que le travail de Tsao et Curnutte [4] concernant les collisions moléculaires ne donne qu'une médiocre estimation des sections efficaces. Cependant dans ce cas, la complexité des phénomènes physiques mis en jeu est telle qu'il paraît difficile de mettre en œuvre une analyse plus précise.

Enfin, dans le cas des grands défauts d'énergie ($\tau \sim 10$) il apparaît que la section efficace provient essentiellement de la région des petits paramètres d'impact. Il en est de même dans les cas physiques que nous avons étudiés ultérieurement. Ceci pose, pour une évaluation précise des sections efficaces de transfert, le problème de la validité du potentiel dipôle-dipôle utilisé [5], [6].

Remerciements. — Nous remercions C. Cohen-Tannoudji et V. M. Ermachenko pour les nombreuses discussions que nous avons eues. Les calculs numériques ont été effectués sur l'ordinateur CII 10070 de l'Atelier d'Informatique dont nous remercions le personnel.

Bibliographie

- [1] OMONT, A., Thèse, Paris (1967).
- [2] OMONT, A. et MEUNIER, J., *Phys. Rev.* **169** (1968) 92.
- [3] DYAKONOV, M. I. et PEREL, V. I., *Sov. phys. JETP* **21** (1965) 1.
- [4] TSAO, C. J. et CURNUTTE, B., *JQSRT* **2** (1962) 41.
- [5] GAY, J. C., à paraître.
GAY, J. C. : Communication, VIII ICPEAC (Belgrade 1973).
- [6] GAY, J. C., à paraître.
- [7] NIKITIN, E. E., *Comments Atomic Molecular Phys.* **2** (1970) 4.
- [8] FAROUX, J. P., Thèse, Paris (1969).
- [9] LEBEDA, C. F. et THORSON, W. R., *Can. J. Phys.* **48** (1970) 2937.
- [10] CALLAWAY, J. et BAUER, E., *Phys. Rev.* **140** (1965) 1072.
CALLAWAY, J. et BARTLING, J. Q., *Phys. Rev.* **150** (1966) 69.
- [11] BURLIRSCH, R. et STOER, J., *Numerische Math.* **8** (1966) 1.
- [12] PECHUKAS, P. et LIGHT, J. C., *J. Chem. Phys.* **44** (1966) 3897.
- [13] VAINSHTEIN, L., PRESNIAKOV, L. et SOBEL'MAN, I., *Sov. phys. JETP* **16** (1963) 370.
SOBEL'MAN, I. dans « *Introduction to the theory of the atomic spectra* » paragraphe 46 (Pergamon) 1972.

INFLUENCE D'UN ECART A LA RESONANCE
SUR LES SECTIONS EFFICACES DE COLLISIONS QUASI-RESONNANTES

II) *Cas d'une transition de résonance $J=1 \rightarrow J=0$ et applications*

R É S U M É

On étudie dans le cas de transitions de résonance $J = 1 \rightarrow J = 0$, les sections efficaces de collisions résonnantes dans des situations où le transfert de l'excitation entre les deux atomes durant la collision n'est pas parfaitement résonnant. Les effets de ce caractère du transfert de l'excitation sont une diminution très rapide des taux de relaxation et de transfert des observables de l'état excité des atomes et l'apparition d'un déplacement de la raie optique de l'atome "émetteur" pouvant devenir comparable à l'élargissement de cette raie par le potentiel dipôle-dipôle.

La comparaison de nos résultats (obtenus par résolution numérique de l'équation de Schrödinger) à ceux que donne la méthode approchée développée par OMONT met en évidence l'insuffisance de l'approximation de Born semi-classique pour décrire les taux de transfert dès que celui-ci devient non-résonnant. La validité de l'utilisation d'une telle approximation dans le domaine des collisions moléculaires (transfert de population entre niveaux de rotation) pourrait donc être à reconsidérer.

L'application de nos résultats à diverses situations physiques, en particulier aux collisions quasi-résonnantes entre isotopes différents d'une même espèce chimique, est discutée et les extensions possibles de ce type d'étude dans le domaine atomique sont décrites.

★◆◆◆★

I - INTRODUCTION

Après avoir étudié dans un précédent article ⁽¹⁾ l'influence d'un écart à la résonance ΔE sur les sections efficaces de collisions résonnantes ⁽²⁾ dans le cadre d'une approximation à deux niveaux, nous envisageons le cas plus général où les atomes considérés (notés 1 et 2 ci-dessous) ont un état excité de moment cinétique $J=1$ et un état fondamental $J=0$. A la différence des situations envisagées par d'autres auteurs ⁽²⁾, nous supposons qu'il existe un écart d'énergie entre les niveaux excités (ou les niveaux fondamentaux) des atomes 1 et 2, de sorte que le transfert d'excitation durant la collision n'est pas parfaitement résonnant. Nous ne négligeons donc plus le changement d'énergie interne du système constitué des deux atomes devant l'énergie des composantes prépondérantes du spectre de Fourier du potentiel de collision (dépendant du temps dans une approximation d'impact), et les effets liés au caractère fini de la durée de l'interaction sont donc considérés.

De telles situations peuvent se présenter dans le cas des collisions entre deux isotopes, ou lorsque les deux atomes présentent de manière plus générale des niveaux d'énergie proches les uns des autres. (cf par exemple ⁽³⁾ ⁽⁴⁾ ⁽⁵⁾ ⁽⁶⁾).

Nous renvoyons pour une présentation plus générale de ce problème à l'introduction et à la conclusion de la référence ⁽¹⁾.

Le plan de notre travail est le suivant :

Au § II, nous définissons le problème de manière plus précise et nous donnons les relations de symétrie auxquelles satisfait la matrice de collision qui sont la généralisation des propriétés bien connues utilisées dans la référence ⁽¹⁾. Le § III est consacré aux moyennes angulaires effectuées dans ce cas simple où ΔE a la symétrie sphérique par la méthode donnée par A. OMONT et J. MEUNIER ⁽³⁾. Au § IV nous donnons

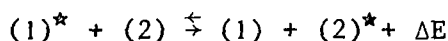
les résultats du calcul numérique de la matrice de collision et la comparaison aux valeurs obtenues par diverses approximations analytiques. Le § V est consacré au calcul des taux de relaxation c'est-à-dire aux moyennes effectuées sur le module du paramètre d'impact et de la vitesse relative des atomes, et nous discutons les résultats, la validité des approximations utilisées et les applications expérimentales possibles aux § VI et VII.

II - POSITION DU PROBLEME ET NOTATIONS

1 - Définition du problème

On considère deux atomes de même espèce chimique en interaction en phase gazeuse, aux énergies thermiques. Nous supposons que l'un des deux atomes (désigné dans la suite par l'indice 1) est excité dans un niveau de résonance avant la collision et que le second atome (désigné par l'indice 2) est dans l'état fondamental. Nous supposons de plus que l'état excité des atomes étudiés a un moment cinétique $J=1$, et l'état fondamental un moment cinétique $J=0$, la transition entre l'état excité et l'état fondamental étant une transition optique de résonance.

Le processus de collision s'écrit alors :



ΔE désignant la différence des énergies des états excités des atomes (1) et (2). (cf. FIGURE 1). Nous admettrons que les inégalités suivantes sont vérifiées :

$$kT \gg \Delta E \gg h/T_c \quad (1)$$

où T_c désigne la durée moyenne de la collision. Le but de notre étude est l'obtention des taux de relaxation et de transfert par collision des obser-

vables des états excités des atomes (1) et (2), en fonction de l'écart à la résonance ΔE .

Les hypothèses simplificatrices suivantes sont admises :

- ★ Le processus de relaxation est attribué à l'interaction dipôle-dipôle en R^{-3} (car il est bien connu (2) (3) que ce terme donne la contribution principale aux sections efficaces de relaxation et de transfert dans le cas où l'atome excité et le perturbateur sont identiques).
- ★ ΔE est supposé tel que l'on puisse négliger tout changement de vitesse au cours de la collision (cf. inégalité (1)).
- ★ Nous utiliserons l'approximation d'impact avec trajectoire classique rectiligne. L'ensemble des deux hypothèses précédentes permet de découpler le mouvement relatif des atomes et l'évolution de leur état interne.
- ★ Nous supposerons les états fondamentaux $J=0$ peu perturbés par le processus de collision.

Nous supposerons enfin dans cette étude, que l'écart d'énergie ΔE a la symétrie sphérique ce qui est le cas par exemple lors de collisions entre deux atomes, isotopes d'une même espèce chimique.

2 - Forme de l'équation de Schrödinger

Les notations sont celles adoptées par A. OMONT et J. MEUNIER (3) et dans la référence (1). Nous noterons $|A_i\rangle$ ($i=1,2$) les vecteurs à trois composantes représentant l'état d'excitation de l'atome i , l'autre atome se trouvant alors dans l'état fondamental.

$V_{12}(R)$ représente le potentiel dipôle-dipôle

$$V_{12}(R) = -\frac{1}{R^3} [3(\vec{P}_1 \cdot \vec{u})(\vec{P}_2 \cdot \vec{u}) - \vec{P}_1 \cdot \vec{P}_2]$$

(\vec{P}_i est le moment dipolaire électrique de l'atome i , \vec{u} le vecteur unitaire repérant la position relative des deux atomes au cours de la collision).

L'équation de Schrödinger s'écrit alors (avec $\hbar = 1$) :

$$i \frac{d}{dt} |A_{12}\rangle = \mp \frac{\Delta E}{2} |A_{12}\rangle + V_{12} |A_{21}\rangle \quad (2)$$

$$\text{Posant } R^2 = b^2 + v^2 t^2$$

$$x = vt/b$$

$$r^2 = 1 + x^2$$

où b est le paramètre d'impact et \vec{v} la vitesse relative des atomes, la matrice représentant V_{12} peut alors se mettre sous la forme (3)

$$V_{12} = \frac{p}{R^3} (J_u^2 - J^2/3)$$

(J représente un spin 1 fictif dans l'espace des états de deux atomes).

Le paramètre p caractérise la force du potentiel dipôle-dipôle pour la transition considérée

$$p = \frac{9}{4} \frac{\Gamma}{k_0^3} = - \langle 1 || P_1 || 0 \rangle \langle 0 || P_2 || 1 \rangle = |\langle 1 || P || 0 \rangle|^2 \quad (3)$$

Nous utiliserons également dans la suite les quantités suivantes (1) :

$$q = p/(b^2 v) \quad (4)$$

$$\Delta E_a = (v^3/p\sqrt{\mu})^{1/2} \quad (5)$$

$$\text{avec } \mu = 8/27$$

$$\tau = \Delta E / \Delta E_a \quad (6)$$

$$\text{et enfin } \tilde{\eta} = \Delta E \cdot b/v = \tau / (q^{1/2} \mu^{1/4}) \quad (7)$$

En représentation d'interaction, l'équation de Schrödinger s'écrit alors :

$$i \frac{d}{dx} |B_{\frac{1}{2}}(x)\rangle = V(x) e^{\mp i \eta x} |B_{\frac{2}{1}}(x)\rangle \quad (8)$$

La forme explicite de $V(x)$ dans une base standard d'axe perpendiculaire au plan de collision est la suivante ⁽³⁾ :

$$V(x) = qr^{-3} \begin{bmatrix} -1/6 & 0 & (1-ix)^2/2r^2 \\ 0 & 1/3 & 0 \\ (1+ix)^2/2r^2 & 0 & -1/6 \end{bmatrix} \quad (9)$$

Le système différentiel de six équations du premier ordre, couplées, équivalent à l'équation de Schrödinger (Eq. (8)) se décompose en deux sous-systèmes, l'un de dimensions (2x2), l'autre de dimension (4x4). Le système (2x2) a été l'objet d'une étude précédente ⁽¹⁾, et correspond à l'évolution des états moléculaires Π "perpendiculaires" au plan de collision qui ne sont pas couplés aux états moléculaires Π et Σ appartenant au plan de collision du fait des symétries bien connues du potentiel d'interaction ⁽³⁾.

La forme explicite des deux systèmes différentiels est, dans une telle base standard et en posant :

$$|B_1\rangle = \sum_m a_m |1m, 2f\rangle$$

$$|B_2\rangle = \sum_m b_m |2m, 1f\rangle$$

(m désignant les trois sous-niveaux Zeeman des états excités).

$$[I] \quad i \frac{d}{dx} \begin{bmatrix} a_0 \\ \vdots \\ b_0 \end{bmatrix} = qr^{-3}/3 \begin{bmatrix} 0 & e^{-i\eta x} \\ e^{i\eta x} & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_0 \\ \vdots \\ b_0 \end{bmatrix} \quad (10)$$

$$[II] \quad i \frac{d}{dx} \begin{bmatrix} [A] \\ [B] \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 & [P(x)] \cdot e^{-i\eta x} \\ [P(x)] \cdot e^{i\eta x} & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} [A] \\ [B] \end{bmatrix} \quad (11)$$

où l'on a utilisé les notations

$$[A] = \begin{bmatrix} a_1 \\ a_{-1} \end{bmatrix} \quad [B] = \begin{bmatrix} b_1 \\ b_{-1} \end{bmatrix}$$

et

$$[P(x)] = qr^{-3} \begin{bmatrix} -1/6 & (1-ix)^2/2r^2 \\ (1+ix)^2/2r^2 & -1/6 \end{bmatrix} \quad (12)$$

$[P(x)]$ est évidemment la restriction de $V(x)$ au sous-espace formé des états Zeeman $m = \pm 1$ des deux atomes.

Nous désignons par S la matrice de collision associée au système (8), et définie par :

$$|B_{\frac{1}{2}}(+\infty)\rangle = S |B_{\frac{1}{2}}(-\infty)\rangle$$

par S_I et S_{II} , les restrictions de S associées aux systèmes différentiels I et II (équations (10) et (11)) :

$$\begin{bmatrix} a_0 \\ (+\infty) \\ b_0 \end{bmatrix} = S_I \begin{bmatrix} a_0 \\ (-\infty) \\ b_0 \end{bmatrix} \quad (13)$$

$$\begin{bmatrix} [A] \\ (+\infty) \\ [B] \end{bmatrix} = S_{II} \begin{bmatrix} [A] \\ (-\infty) \\ [B] \end{bmatrix} \quad (14)$$

avec

$$S_{II} = \begin{bmatrix} [S_1] & [S'_2] \\ [S_2] & [S'_1] \end{bmatrix} \quad (15)$$

3 - Symétries de la matrice de collision

Utilisant l'unitarité, l'unimodularité, et l'invariance par renversement du temps, nous avons vu (cf. référence 1) qu'il était possible de mettre S_I sous la forme :

$$S_I(\eta) = \begin{bmatrix} \alpha & i\gamma \\ i\gamma & \alpha^* \end{bmatrix}$$

avec γ réel et $|\alpha|^2 + \gamma^2 = 1$

L'échange des atomes conduit à changer le signe de ΔE , donc de η et il en résulte :

$$S_I(-\eta) = \begin{bmatrix} \alpha^* & i\gamma \\ i\gamma & \alpha \end{bmatrix}$$

Dans le cas du système différentiel II (Eq. 11), on peut également démontrer un certain nombre de propriétés de la matrice de collision S_{II} (7).

1. *Unitarité* $S_{II} \cdot S_{II}^+ = S_{II}^+ \cdot S_{II} = I$

2. *Unimodularité* $\text{Det } S_{II} = 1$ (conséquence de la nullité de la trace du hamiltonien dans la représentation adoptée)

3. *Renversement du temps*

L'invariance par renversement du temps entraîne dans la base standard précédemment définie :

$$S_{II}(\eta) = \tilde{S}_{II}(\eta)$$

ou encore

$$\begin{aligned} S_1(\eta) &= \tilde{S}_1(\eta) \\ S_1'(\eta) &= \tilde{S}_1'(\eta) \\ S_2'(\eta) &= \tilde{S}_2'(\eta) \end{aligned}$$

4. Echange des atomes

On note P_{12} l'opérateur d'échange des atomes

$$P_{12} S_{II}(\eta) P_{12}^+ = S_{II}(-\eta)$$

soit

$$S_i(-\eta) = S_i^*(\eta) \quad (i=1,2)$$

5. Existence d'une base où le potentiel est réel

Il existe une relation supplémentaire liée à une particularité de l'interaction dipôle-dipôle et valable plus généralement pour des potentiels ayant la même forme mathématique (potentiel de Van der Waals par exemple), dans le cas d'un moment cinétique $J=1$. Il existe en effet une base fixe où le potentiel hermitique V_{12} est représenté par une matrice réelle. Cette base est la base cartésienne associée à la base standard définie précédemment. Elle est constituée par les états propres associés à la valeur propre 0 des trois composantes J_x , J_y , J_z du moment cinétique $J=1$.

S'il l'on désigne par M la restriction aux états du plan de collision de la matrice de passage de la base standard à la base cartésienne, un choix possible de M à un facteur de phase près, est :

$$M = 1/\sqrt{2} \begin{bmatrix} -1 & -i \\ 1 & -i \end{bmatrix}$$

Il vient, P_c désignant la représentation en base cartésienne de la restriction au plan de collision de l'interaction dipôle-dipôle :

$$P_c(x) = M^{-1} [P(x)] M$$

avec

$$P_c(x) = P_c^*(x)$$

L'utilisation de la conjugaison complexe dans la base cartésienne permet après quelques transformations simples de déduire, en base standard, les propriétés suivantes de la matrice de collision :

$$S_1(-\eta) = \sigma_x \cdot S_1^*(\eta) \cdot \sigma_x$$

$$S_2(-\eta) = -\sigma_x \cdot S_2^*(\eta) \cdot \sigma_x$$

où l'on a utilisé la propriété $MM^{-1} = -\sigma_x$ (matrice de Pauli).

L'utilisation des propriétés 3,4,5 permet de mettre les quatre sous-matrices S_1 , S_1' , S_2 , S_2' sous la forme suivante :

$$\begin{aligned} S_1(\eta) &= \begin{bmatrix} \alpha_1 & \alpha_2 \\ \alpha_2 & \alpha_4 \end{bmatrix} \\ S_1'(\eta) = S_1(-\eta) &= \begin{bmatrix} \alpha_4^* & \alpha_2^* \\ \alpha_2^* & \alpha_1^* \end{bmatrix} \\ S_2(\eta) = S_2'(\eta) &= \begin{bmatrix} \beta_1 & i\gamma_2 \\ i\gamma_3 & -\beta_1^* \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (16)$$

avec γ_2, γ_3 réels.

L'unitarité de S_{II} fournit deux relations supplémentaires et l'unimodularité est automatiquement satisfaite par l'utilisation des propriétés 1, 3, 4, 5.

Il en résulte que la connaissance des coefficients $(\alpha_1, \alpha_2, \beta_1, \gamma_3)$ est suffisante pour obtenir tous les éléments de la matrice S_{II} .

On a alors en effet :

$$\begin{aligned} \alpha_4 &= -\frac{\alpha_2^2 \cdot \alpha_1^* + \alpha_1 \beta_1^{*2} + 2i \alpha_2 \gamma_3 \beta_1^*}{|\alpha_2|^2 + |\beta_1|^2} \\ \gamma_2 &= \frac{|\alpha_2|^2 - |\beta_1|^2}{|\alpha_2|^2 + |\beta_1|^2} \cdot \gamma_3 - i \frac{(\alpha_2 \alpha_1^* \beta_1 - \beta_1^* \alpha_1 \alpha_2^*)}{|\alpha_2|^2 + |\beta_1|^2} \end{aligned}$$

L'utilisation complète des propriétés de symétrie du problème permet donc d'obtenir la forme générale de la matrice de collision en résolvant l'équation de Schrödinger avec seulement une condition initiale.

On peut également démontrer, par des méthodes analogues utilisant l'opérateur d'évolution $U(x,y)$ que la résolution du système différentiel de $x=-\infty$ à $x=0$, avec cette fois deux conditions initiales permet d'obtenir la forme générale de la matrice de collision du problème. Le temps de calcul nécessité dans ce dernier cas étant le même que dans le cas où l'on résoud de $x=-\infty$ à $x = +\infty$ avec une condition initiale, nous n'avons pas utilisé cette variante dans les calculs du § IV.

Dans le cas particulier où l'écart d'énergie est nul, on peut écrire (atomes identiques) :

$$P_{12} S_{II}(0) P_{12}^+ = S_{II}(0)$$

soit

$$\begin{aligned} S_1(0) &= S'_1(0) \\ S'_2(0) &= \tilde{S}_2(0) = S_2(0) \end{aligned}$$

Le hamiltonien étant dans ce cas symétrique dans l'échange des atomes, on démontre que le système (II) se réduit à deux systèmes (2x2) découplés (2) (3).

Remarquons enfin que l'étude complète des propriétés de symétrie du système permet une réduction considérable du temps de calcul numérique exigé pour la résolution et prend de ce fait une importance cruciale lorsque le problème envisagé dépend de nombreux paramètres physiques (8).

De plus, elle offre des moyens de contrôle très précieux de la précision de la résolution numérique.

III. - MATRICE DE RELAXATION

La résolution de l'équation de Schrödinger fournit les paramètres relatifs à une collision. Il est nécessaire ensuite de tenir compte des diverses orientations du plan de collision dans l'espace pour obtenir la matrice de relaxation $M(b, v, \Delta E)$ décrivant dans l'espace de Liouville la perturbation de la matrice densité de la vapeur par collisions (3).

Nous supposerons l'isotropie de la distribution des vitesses relatives dans l'espace^{*}. Dans le référentiel de la collision le résultat de chaque collision est en outre indépendant de l'orientation de la vitesse relative \vec{v} dans l'espace puisque l'écart d'énergie ΔE est invariant par rotation et qu'il n'existe pas de champ extérieur au système. Il résulte que les collisions sont statistiquement isotropes et que le formalisme développé par OMONT et MEUNIER (3) pour effectuer les moyennes angulaires peut être réutilisé sans modifications.

*NOTE : Remarquons que cette hypothèse n'est vérifiée que dans la mesure où l'excitation des atomes de la vapeur est de type "Broad-line" centrée sur la raie de résonance considérée. Ceci ne serait plus vrai si l'on excitait par exemple uniquement les ailes de la raie de résonance (voir par exemple J.C. GAY, Thèse 3ème cycle, Paris 1971). L'invariance statistique de rotation n'existe plus alors puisqu'on n'excite qu'une partie des atomes ayant une vitesse radiale importante comparée à la vitesse moyenne d'agitation thermique, dans la direction de l'excitation. De ce fait les atomes susceptibles d'interagir avec le faisceau et participant ultérieurement au processus de collision auront une vitesse \vec{v} dirigée dans la direction de l'excitation. La relaxation a alors la symétrie cylindrique autour de cette direction.

Remarquons aussi qu'en toute rigueur, les moyennes sont à prendre non pas sur la vitesse relative, mais sur les composantes de la vitesse de chaque atome (cf. par exemple (3)).

Nous notons ρ_1 et ρ_2 les matrices densités relatives aux états excités des deux espèces atomiques de la vapeur et $Y_1(\vec{b}, \vec{v})$, $Y_2(\vec{b}, \vec{v})$, les matrices de l'espace de Liouville associées à une valeur du paramètre d'impact \vec{b} et de la vitesse relative \vec{v} , définies par :

$$\begin{aligned}\rho_1(+\infty) &= Y_1(\vec{b}, \vec{v}) \rho_1(-\infty) = S_1 \rho_1(-\infty) S_1^+ \\ \rho_2(+\infty) &= Y_2(\vec{b}, \vec{v}) \rho_1(-\infty) = S_2 \rho_1(-\infty) S_2^+\end{aligned}\quad (17)$$

où S_1 et S_2 ont été définies au § II.

Les matrices de relaxation M_i sont alors définies pour une valeur du module du paramètre d'impact et de la vitesse relative par :

$$\begin{aligned}M_1(b, v) &= \langle Y_1(\vec{b}, \vec{v}) \rangle \\ M_2(b, v) &= \langle Y_2(\vec{b}, \vec{v}) \rangle\end{aligned}\quad (18)$$

où les crochets indiquent la moyenne angulaire sur l'orientation de la vitesse relative dans l'espace. Les matrices M_1 et M_2 sont comme nous venons de l'indiquer, invariantes par rotation dans l'espace de Liouville.

Pour un paramètre d'impact et une vitesse relative donnés, on définit les coefficients ${}_{\alpha\beta} \Pi^k(i)$ représentant ⁽²⁾ ⁽³⁾ les probabilités moyennes de destruction ($i=1$) des observables de l'atome 1, ou de transfert ($i=2$) des mêmes observables à l'atome 2.

$${}_{\alpha\beta} \Pi^k(i, b, v) \quad {}_{\alpha\beta} T_q^k(i) = [\delta_{i1} - M_i(b, v)] \quad {}_{\alpha\beta} T_q^k(1) \quad (19)$$

Les coefficients ${}_{\alpha\beta} \Pi^k(i, b, v)$ se mettent sous la forme ⁽³⁾ :

$$\begin{aligned}e_f \Pi^1(i) &= \delta_{i1} - \frac{1}{3} \langle \text{Tr } S_i(\vec{b}, \vec{v}) \rangle \\ e_e \Pi^k(i) &= \delta_{i1} - \sum_{\chi} (-)^{k+\chi} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & k \\ 1 & 1 & \chi \end{Bmatrix} \{S_i^{\chi}\}^2\end{aligned}$$

avec
$$S_i = \sum_{\chi\sigma} (S_i)_{\sigma}^{\chi} ee^{\Gamma_{\sigma}^{\chi}(i)} \quad (20)$$

$$\{S_i^{\chi}\}^2 = \sum_{\sigma} |(S_i)_{\sigma}^{\chi}|^2$$

En utilisant les équations (16) et (20) on obtient explicitement :

$$ee^{\Pi^1(1)} = 1 - \frac{1}{3} (\alpha_1 + \alpha_4 + \alpha)$$

$$ee^{\Pi^1(2)} = -\frac{1}{3} (\beta_1 - \beta_1^* + i\gamma)$$

et

$$\begin{bmatrix} ee^{\Pi^0(i)} \\ ee^{\Pi^1(i)} \\ ee^{\Pi^2(i)} \end{bmatrix} = \delta_{i1} - \begin{bmatrix} \frac{1}{3} & \frac{1}{3} & \frac{1}{3} \\ \frac{1}{3} & \frac{1}{6} & -\frac{1}{6} \\ \frac{1}{3} & -\frac{1}{6} & \frac{1}{30} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \{S_i^0\}^2 \\ \{S_i^1\}^2 \\ \{S_i^2\}^2 \end{bmatrix}$$

avec

$$\{S_1^0\}^2 = \frac{1}{3} |\alpha_1 + \alpha + \alpha_4|^2$$

$$\{S_1^1\}^2 = \frac{1}{2} |\alpha_1 - \alpha_4|^2$$

$$\{S_1^2\}^2 = 2 |\alpha_2|^2 + \frac{1}{6} |\alpha_1 + \alpha_4 - 2\alpha|^2$$

$$\{S_2^0\}^2 = \frac{1}{3} |\beta_1 - \beta_1^* + i\gamma|^2$$

$$\{S_2^1\}^2 = \frac{1}{2} |\beta_1 + \beta_1^*|^2$$

$$\{S_2^2\}^2 = \gamma_3^2 + \gamma_2^2 + \frac{1}{6} |\beta_1 - \beta_1^* - 2i\gamma|^2$$

L'effet d'un changement de signe de l'écart d'énergie ΔE sur les coefficients Π^k peut être déduit des relations démontrées au § II. Il se résume en un changement de signe de la partie imaginaire de $ee^{\Pi^1(1)}$; celle-ci correspond à un shift de la raie optique de l'atome 1 dont l'origine doit être attribuée au caractère non résonnant de l'interaction lorsque l'écart d'énergie ΔE est non nul.

Soulignons une nouvelle fois que l'utilisation des relations (20) pour effectuer les moyennes angulaires n'est possible qu'en raison de la

symétrie sphérique de la relaxation ceci impliquant un certain nombre d'hypothèses sur la distribution de vitesse des atomes excités, et sur la cinétique de chaque collision. L'utilisation de ces relations n'est en particulier plus possible lorsque le système est soumis pendant la collision à un fort champ magnétique extérieur ⁽⁸⁾. Il est alors nécessaire de calculer explicitement les coefficients $\Pi_{\alpha\beta q}^k(i)$ pour chaque orientation du plan de collision par rapport au champ magnétique (et par conséquent les éléments de la matrice de collision pour toutes les orientations possibles).

IV - CALCUL NUMERIQUE DE LA MATRICE DE COLLISION

COMPARAISON A DIVERSES APPROXIMATIONS

1 - Méthodes de résolution numérique

Les méthodes mises au point lors de l'étude du système à deux niveaux (système (I)) ⁽¹⁾ ont été réutilisées pour résoudre le système (II). Les symétries du problème (cf. § II) ont permis d'obtenir la forme générale de la matrice de collision en intégrant le système différentiel avec une condition initiale. Les difficultés de la résolution sont dûes, là encore, à la divergence inessentielle du système en $\psi = \pm \frac{\pi}{2}$ ($\psi = \text{Arc tg } x$ a été utilisée comme variable d'intégration) et dans le comportement oscillant en ψ des solutions.

2 - Variations des coefficients $\Pi_q^k(i)$ en fonction de q et de τ

Aux grands paramètres d'impact, les taux de relaxation sont des fonctions lentement croissantes de la variable q et convenablement représentés par un calcul de perturbation au second ordre de la matrice de collision (cf. § IV-3).

Le comportement devient ensuite oscillant en fonction de q , et diffère de manière importante selon qu'il s'agit des coefficients de relaxation ($i=1$; $k \neq 0$) ou de transfert ($i=2$) (³). Les coefficients de relaxation (cf. FIG 2) oscillent en fonction de q à des fréquences dépendant fortement de τ (le spectre de Fourier se simplifie lorsque τ croît). La position du maximum de la première oscillation se déplace lorsque τ croît, vers les grandes valeurs de q (petits paramètres d'impact). Pour les très grandes valeurs de q , les coefficients oscillent autour de valeurs moyennes dépendant faiblement de τ (cf. FIG 3 et § IV-4). Les coefficients de transfert (cf. FIG 4) ont également un comportement oscillant dont la fréquence dépend fortement de la valeur de τ (cf. § IV-4). Le caractère essentiel est la décroissance très rapide en fonction de τ de l'amplitude des oscillations (cf. FIG 3). Cette caractéristique avait déjà été obtenue lors de l'étude effectuée dans la référence (¹). Toutes ces grandeurs deviennent extrêmement petites pour τ de l'ordre de 10. L'amplitude des oscillations dépend cependant fortement de la valeur de q (par exemple pour $\tau = 10$ et $k = 0$, $\Pi^0(q \sim 5) \sim 10^{-4}$ et $\Pi^0(q \sim 100) \sim 10^{-2}$). De sorte que la région de petits paramètres d'impact pourra fournir dans de tels cas une contribution en valeur relative importante pour le calcul des taux de transfert. Nous ne pouvons cependant pas donner de justifications analytiques précises au comportement des coefficients de transfert pour les grandes valeurs de q , ce qui n'est pas surprenant puisque cela avait échoué dans le cas beaucoup plus simple envisagé dans la référence (¹). L'utilisation de l'approximation adiabatique (cf. § IV-4) permet néanmoins une interprétation qualitative des phénomènes.

3 - Approximation asymptotique (limite $b \rightarrow \infty$)

A la limite des grands paramètres d'impact, le paramètre q tend vers 0. On effectue un développement de perturbation des solutions du système (11) et il vient au 2ème ordre en q (⁹) (¹⁰) :

$$S_1^{as} = \Gamma \int_{-\infty}^{+\infty} [P(x)] e^{-i\eta x} \int_{-\infty}^x e^{i\eta x'} [P(x')] dx dx'$$

$$S_2^{as} = -i \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i\eta x} [P(x)] dx$$

soit

$$ee^{\Pi^0(1)as} = ee^{\Pi^1(1)as} = ee^{\Pi^2(1)as} = \frac{8q^2}{27} f_1(\eta) \quad (21)$$

$$ef^{\Pi^1(1)as} = \frac{4q^2}{27} f_1(\eta) + \frac{4}{27} \frac{i}{\pi} q^2 \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{P} \mathcal{P} \frac{1}{\omega - \eta} f_1(\omega) d\omega$$

$$ee^{\Pi^0(2)as} = -2 ee^{\Pi^1(2)as} = 10 ee^{\Pi^2(2)as} = -\frac{8}{27} q^2 f_1(\eta)$$

$$ef^{\Pi^1(2)as} = 0$$

avec ⁽¹⁰⁾

$$f_1(\eta) = \frac{\eta^4}{4} [K_2^2(\eta) + 4 K_1^2(\eta) + 3 K_0^2(\eta)]$$

(les $K_i(x)$ sont les fonctions de Bessel modifiées).

Les valeurs ainsi obtenues sont en très bon accord avec les valeurs numériques exactes pour $q < 0,5$ et $\tau < 5$. Lorsque τ est supérieur à 5, il existe un désaccord évident. L'origine en est que pour les grandes valeurs de η , le développement limité au second ordre effectué est insuffisant et que la contribution des ordres supérieurs, même pour des valeurs de q petites (de l'ordre de 0,1), est prépondérante. Le calcul de ces termes d'ordres supérieurs est difficile analytiquement puisqu'il fait intervenir des intégrales du type :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{P} \mathcal{P} \frac{1}{\omega - \eta} g(\omega) d\omega$$

où $g(\omega)$ est donnée elle-même sous forme intégrale.

Pour éviter ces difficultés, il suffit de traiter les équations (2) au deuxième ordre de perturbation (cf. § IV-5). On obtient alors :

$$i \frac{d}{dt} |A_1\rangle = \frac{p^2}{36R^6 \Delta E} [J_u^2 - \frac{2J^2}{3}] |A_1\rangle \quad (22)$$

La condition de validité de (22) est bien évidemment :

$$\Delta E \gg p/R^3 \quad (23)$$

ou en variables $x = vt/b$

$$i \frac{d}{dx} |A_1\rangle = \frac{q^2}{3\eta r^6} [J_u^2 - \frac{2J^2}{3}] |A_1\rangle \quad (22')$$

$$\eta \gg q/r^3 \quad (23')$$

Lorsque la condition (23) est réalisée, l'atome 1 évolue dans un potentiel en $1/R^6$ qui décrit les effets de la collision avec l'atome 2. Ce dernier est alors peu affecté et l'on a en première approximation :

$$e e^{\Pi^0}(1) = \alpha_{\beta} \Pi^k(2) = 0$$

Un traitement de perturbation au 2ème ordre en q^2 de l'équation (22) donne alors :

$$e e^{\Pi^1}(1) = \frac{7\pi^2}{16 (12)^2} \frac{q^4}{\eta^2} = \frac{5}{3} e e^{\Pi^2}(1) \quad (24)$$

$$e f^{\Pi^1}(1) = \frac{31\pi^2}{4 (12)^3} \frac{q^4}{\eta^2} - i \frac{\pi q^2}{12\eta}$$

Les formes asymptotiques ainsi obtenues sont en très bon accord pour $q < 1$, $\tau \geq 5$ avec le calcul numérique exact.

En ce qui concerne la partie imaginaire de $_{ef}\Pi^1(1)$ (déplacement de la raie optique de l'atome 1), l'expression obtenue dans la formule (24) n'est rien d'autre que le premier terme du développement pour les grandes valeurs de η de la partie principale dans l'expression de la formule 21.

$$\eta \gg 1 \quad \frac{4}{27\pi} q^2 \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{P} \frac{1}{\omega - \eta} f_1(\omega) d\omega \approx - \frac{\pi q^2}{12\eta}$$

En résumé, nous avons restreint le domaine de l'intégration numérique aux valeurs de q supérieures à 0,1 et utilisé pour décrire la relaxation ou le transfert pour les valeurs de q inférieures à 0,1 les valeurs données par les formules (21) pour $\tau < 5$ et celles données par les formules (24) pour $\tau > 5$.

Cette étude du comportement asymptotique des solutions suggère également que la relaxation des observables de l'atome 1 sera conforme à celle donnée par un potentiel en $1/R^3$ pour les petites valeurs de τ , à celle donnée par un potentiel en $1/R^6$ de type Van der Waals pour les grandes valeurs de τ ($\tau > 10$). Nous reviendrons sur ce point au § IV-5.

4 - Approximation adiabatique (limite $b \rightarrow 0$)

IV-4-1) Les états propres du hamiltonien du système sont, en notation moléculaire du type Π et Σ . Il existe deux états Σ "parallèles" à l'axe internucléaire, et quatre états Π dont deux sont "perpendiculaires" au plan de collision (états notés Π_z) et les deux autres dans le plan de collision et perpendiculaires à l'axe internucléaire. Nous affecterons ces états des indices g_u rappelant leur symétrie dans l'échange des atomes lorsque l'écart d'énergie est nul (atomes identiques). Les valeurs propres associées sont :

$$E_{\Pi} = (\eta^2/4 + V_{\Pi}^2)^{1/2} \quad E_{\Sigma} = (\eta^2/4 + V_{\Sigma}^2)^{1/2} \quad (25)$$

avec
$$V_{\Pi} = q/3r^3 \quad V_{\Sigma} = 2q/3r^3$$

Les niveaux d'énergie du système en collision et les états moléculaires qui leur correspondent sont donnés, dans la FIG 5 pour $\tau = 10$, $q = 100$, en fonction de x . Nous nous bornerons dans la suite à étudier l'évolution dans le plan de collision (système (II) Eq. 11), le traitement adiabatique du système (I) (Eq. 10) ayant été effectué dans la référence (1).

L'équation de Schrödinger en représentation d'interaction par rapport aux valeurs propres de l'énergie, s'écrit dans la base des vecteurs propres :

$$i \frac{d}{dx} (\mathcal{U}) = \mathcal{H}_R (\mathcal{U}) \quad (26)$$

(\mathcal{U}) désigne les quatre composantes de la décomposition du vecteur d'état sur la base des vecteurs propres du hamiltonien).

Posant
$$\varphi_{\Pi} = \text{Arc tg } (2V_{\Pi}/\eta)$$

$$\varphi_{\Sigma} = \text{Arc tg } (2V_{\Sigma}/\eta)$$

$$\xi = (\varphi_{\Pi} + \varphi_{\Sigma})/2$$

et
$$\dot{\psi} = \frac{d}{dx} \text{Arc tg } x = 1/r^2$$

Les éléments de matrice non nuls de \mathcal{H}_R s'écrivent :

$$\langle \Sigma_g | \mathcal{H}_R | \Sigma_u \rangle = -i \frac{\dot{\psi}_{\Sigma}}{2} \cdot \exp \left(-2i \int_0^x E_{\Sigma} dx' \right)$$

$$\langle \Sigma_g | \mathcal{H}_R | \Pi_g \rangle = i \dot{\psi} \sin \xi \cdot \exp \left(-i \int_0^x (E_{\Pi} + E_{\Sigma}) dx' \right)$$

$$\langle \Sigma_g | \mathcal{H}_R | \Pi_u \rangle = i \dot{\psi} \cos \xi \cdot \exp \left(-i \int_0^x (E_{\Sigma} - E_{\Pi}) dx' \right)$$

$$\langle \Sigma_u | \mathcal{H}_R | \Pi_g \rangle = -i\dot{\psi} \cos \xi \cdot \exp \left(i \int_0^x (E_\Sigma - E_\Pi) dx' \right)$$

$$\langle \Pi_g | \mathcal{H}_R | \Pi_u \rangle = i \frac{\dot{\varphi}_\Pi}{2} \cdot \exp \left(2i \int_0^x E_\Pi dx' \right)$$

$$\langle \Sigma_u | \mathcal{H}_R | \Pi_u \rangle = i\dot{\psi} \sin \xi \cdot \exp \left(i \int_0^x (E_\Sigma + E_\Pi) dx' \right)$$

La matrice de collision associée au système (26) devient au second ordre de perturbation :

$$\Sigma^{AD} = I - i \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{H}_R dx - \frac{1}{2} \left(\int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{H}_R dx \right)^2$$

(le troisième terme n'est pas correct en toute rigueur puisque $[\mathcal{H}_R(x), \mathcal{H}_R(x')] \neq 0$. Il améliore cependant l'approximation au 1er ordre en \mathcal{H}_R en conservant la norme de la matrice de collision au second ordre).

L'expression des taux de relaxation et de transfert dans l'approximation adiabatique est alors :

$$\begin{aligned} ee^{\Pi^0}(1) &= \frac{1}{3} (2V_3^2 + 2|V_1|^2 + |V_2|^2) \\ ee^{\Pi^1}(1) &= \frac{4}{3} - \frac{1}{3} \left[|V_1|^2 + V_4^2 \left[1 + \sin^2 \left(\int_0^{+\infty} (E_\Pi - E_\Sigma) dx' \right) \right] \right. \\ &\quad \left. + V_3^2 \cdot \sin^2 \left(\int_0^{+\infty} (E_\Pi - E_\Sigma) dx' \right) \right] \\ ee^{\Pi^2}(1) &= \frac{4}{5} + \frac{2}{15} |V_2|^2 + \frac{1}{15} |V_1|^2 \\ &\quad + V_3^2 \left[\frac{1}{6} + \frac{1}{10} \cos \left[2 \int_0^{+\infty} (E_\Pi - E_\Sigma) dx' \right] \right] \\ &\quad + V_4^2 \left[\frac{1}{2} + \frac{1}{10} \cos \left[2 \int_0^{+\infty} (E_\Pi - E_\Sigma) dx' \right] \right] \end{aligned}$$

.../...

$$ee^{\Pi^0(2)} = - ee^{\Pi^0(1)}$$

$$ee^{\Pi^1(2)} = \frac{1}{3} [|V_1|^2 + V_3^2 \cos(2 \int_0^{+\infty} (E_{\Pi} - E_{\Sigma}) dx')] \quad (27)$$

$$ee^{\Pi^2(2)} = \frac{-1}{15} \left(2|V_2|^2 + |V_1|^2 - V_3^2 [6 \sin^2(\int_0^{+\infty} (E_{\Pi} - E_{\Sigma}) dx') - 1] \right)$$

$$\begin{aligned} \mathcal{R}\{ef^{\Pi^1(1)}\} &= 1 + \frac{1}{3} \left(\left(1 - \frac{1}{2} |V_2|^2 - \frac{1}{2} V_3^2 - \frac{1}{2} V_4^2 \right) \right. \\ &\quad \times \cos \left[\int_0^{+\infty} (2E_{\Sigma} - \eta) dx' \right] \\ &\quad \left. - \frac{1}{2} (V_3^2 + V_4^2) \cos \left[\int_0^{+\infty} (2E_{\Pi} - \eta) dx' \right] \right) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mathcal{I}m\{ef^{\Pi^1(1)}\} &= \frac{1}{3} \left(\left(1 - \frac{1}{2} |V_2|^2 - \frac{1}{2} V_3^2 - \frac{1}{2} V_4^2 \right) \right. \\ &\quad \times \sin \left[\int_0^{\infty} (2E_{\Sigma} - \eta) dx \right] - \frac{1}{2} (V_3^2 + V_4^2) \cdot \sin \left[\int_0^{\infty} (2E_{\Pi} - \eta) dx' \right] \left. \right) \end{aligned}$$

$$ef^{\Pi^1(2)} = \frac{i}{3} V_2$$

avec

$$\begin{aligned} V_1 &= i \int_0^{+\infty} dx \cdot \dot{\varphi}_{\Pi} \sin \left(2 \int_0^x E_{\Pi}(x') dx' \right) \\ V_2 &= i \int_0^{+\infty} dx \cdot \dot{\varphi}_{\Sigma} \sin \left(2 \int_0^x E_{\Sigma}(x') dx' \right) \\ V_3 &= - 2 \int_0^{+\infty} dx \cdot \dot{\psi} \sin \xi \cdot \cos \left[\int_0^x (E_{\Pi} + E_{\Sigma}) dx' \right] \\ V_4 &= - 2 \int_0^{+\infty} dx \cdot \dot{\psi} \cos \xi \cdot \cos \left[\int_0^x (E_{\Pi} - E_{\Sigma}) dx' \right] \end{aligned} \quad (28)$$

IV-4-2) Interprétation des formules (27) et (28)

L'expression du terme responsable des transitions entre les états $|\Pi_z g\rangle$ et $|\Pi_z u\rangle$ du système à deux niveaux est $(\dot{\varphi}_{\Pi}/2)$ (cf. FIG 5 et référence (1)). V_1 représente donc l'amplitude de probabilité de transition entre les deux états, au 1er ordre de perturbation.

L'évolution du système dans le plan de collision s'effectue par des termes de couplage entre les quatre états moléculaires qui ont deux origines. Le couplage entre états de même symétrie par rapport au groupe des rotations est de même nature que celui existant entre états du système I. Ces termes de couplage radial $(\dot{\varphi}_{\Sigma}/2$ et $\dot{\varphi}_{\Pi}/2)$ correspondent aux variations avec la distance R du potentiel moléculaire le long de l'axe internucléaire. (Dans le cas où l'écart d'énergie ΔE est nul, ces termes n'existent pas du fait de l'invariance du hamiltonien dans l'échange des atomes). Les deux autres termes de couplage $(\dot{\psi} \cos \xi$ et $\dot{\psi} \sin \xi)$ correspondent à l'interaction entre états moléculaires de symétries différentes Π et Σ (cf. FIG 5). Ces termes représentent donc le couplage de Coriolis ou rotationnel et varient en première approximation en $1/r^2$ avec la distance. Dans le cas où l'écart d'énergie ΔE est nul seul le terme de couplage entre états de même parité dans l'échange des atomes subsiste $(\dot{\psi} \sin \xi)$ et prend donc la valeur $\dot{\psi} = 1/r^2$.

Le traitement de perturbation effectué précédemment (§ IV-4-1) signifie physiquement que partant d'un état du diagramme de la FIG 5, il ne pourra y avoir qu'une seule interaction avec un autre état durant la collision, les termes faisant intervenir plusieurs interactions étant négligés. V_1 , V_2 , V_3 , V_4 représentent donc les amplitudes de probabilité de transition entre états Π , états Σ , et états Π et Σ au cours de la collision à cette approximation.

Les variations des V_i en fonction de q , pour $\tau = 10$ sont données dans la figure 6.

Le comportement de V_1 a déjà été décrit dans la référence 1 (§III-4).

V_2 est analogue mais pour un état Σ .

Un traitement approximatif analogue à celui de la référence 1 conduit avec $\psi = \text{Arc tg } x$ et des notations identiques à

$$V_{1,2} = \int_0^{\pi/2} d\psi \cdot G_{\Pi,\Sigma}(\psi) \cdot \sin \left(2 \int_0^{\pi} s_{\Pi,\Sigma}(\psi') d\psi' \right)$$

avec $s_{\Pi,\Sigma} = E_{\Pi,\Sigma} / \cos^2 \psi$.

Le développement de l'argument du sinus autour des valeurs ψ_{Σ}^0 ou ψ_{Π}^0 (cf. FIG 7) conduit aux conclusions de la référence 1 : on ne peut évaluer avec précision l'amplitude des oscillations de V_1 et V_2 en fonction de q et de τ mais il est possible de justifier leur comportement oscillatoire par un effet d'interférence entre les deux régions de transition possibles (cf. FIG 7).

L'argument du terme oscillant vaut :

$$J_{\Pi,\Sigma}^0 \sim \int_0^{\psi_{\Pi,\Sigma}^0} s_{\Pi,\Sigma}(\psi) d\psi \sim \int_0^{\pi/2} s_{\Pi,\Sigma}(\psi) d\psi$$

soit $J_{\Pi}^0 \sim 4q/3$ et $J_{\Sigma}^0 \sim 2q/3$

On trouve ainsi que V_1 oscille à la période 3π en fonction de q et V_2 à la période $3\pi/2$ pour q de l'ordre de 100 ce qui est en très bon accord avec les résultats du calcul numérique reportés sur la figure 6. Toutefois, la région de transition n'est pas suffisamment localisée (cf. référence 1) pour qu'un traitement approximatif donne l'amplitude des oscillations avec une précision suffisante.

Le comportement des termes dus au couplage de Coriolis V_3 et V_4 est également oscillant (cf. FIG 6). Un traitement approché des expressions (28) ne permet pas là encore, de décrire avec précision l'amplitude des oscillations ; on peut cependant en prévoir la période. La région de transition pour le couplage rotationnel s'étend entre ψ_0 et $-\psi_0$ avec $\psi_0 \approx \pi/2$. Elle n'est donc pas localisée. Néanmoins le terme $\sin \xi$ variant lentement, on peut le remplacer par une constante $A(q,\tau)$.

Soit
$$V_3 \approx -2A(q, \tau) \int_0^{\pi/2} d\psi \cos \int_0^{\pi} (s_{\Pi} + s_{\Sigma}) d\psi'$$

avec en première approximation pour les grandes valeurs de q :

$$s_{\Pi} + s_{\Sigma} \approx q \cos \psi$$

soit
$$V_3 \sim -\pi A(q, \tau) \cdot J_0(q) \sim -\sqrt{\frac{2\pi}{q}} A(q, \tau) \cos \left(q - \frac{\pi}{4} \right)$$

V_3 oscille donc à la période 2π en fonction de q (cf. FIG 6). Un traitement analogue peut être effectué pour V_4 et donne un comportement en $\cos \left(\frac{q}{3} - \frac{\pi}{4} \right)$, donc à la période 6π en fonction de q .

IV-4-3) Comparaison aux résultats du calcul numérique

La comparaison des valeurs des coefficients Π^k donnés par les relations (27) aux résultats du calcul numérique pour les grandes valeurs de q fait apparaître que l'accord entre formes adiabatiques et calcul numérique est d'autant moins bon que τ est plus petit. Cette caractéristique avait été dégagée dans la référence (1)*.

* Note : L'origine en est la discontinuité existant pour $\Delta E = 0$ dans les formules de changement de base. De ce fait les formules (27) ne décrivent pas le cas où $\tau = 0$. Plus précisément, on peut dire que lorsque τ croît, la nature des solutions du système (8) évolue continûment de la forme que donne un potentiel dipôle-dipôle ($\Delta E = 0$) à la forme que donne un potentiel de Van der Waals en $1/R^6$ (cf. IV-5). La description de la région $\tau < 1$ pour les grandes valeurs de q sera meilleure en utilisant la forme de l'approximation adiabatique valable pour $\tau = 0$ (voir par exemple OMONT (3)) plutôt que la forme donnée par les formules (27). Les termes d'ordre supérieur au 1er ordre ont en effet dans ce dernier cas et pour les petites valeurs de τ des contributions non négligeables. L'utilisation des états adiabatiques valables pour $\tau=0$ conduirait pour les valeurs de $\tau < 1$ à une meilleure estimation des coefficients Π .

Nous nous bornerons à comparer les valeurs données par les relations (27) aux résultats du calcul numérique pour $\tau = 10$ et q de l'ordre de 100 (cf. FIG 8). En ce qui concerne les taux de relaxation de l'atome 1 ($\Pi^k(1)$ $k \neq 0$) l'accord est très satisfaisant (cf. FIG 8-a). Il est beaucoup moins bon lorsqu'il s'agit des quantités $\Pi^k(2)$ représentant le transfert d'observables lors de la collision (cf. FIG 8-b). Ces conclusions étaient ébauchées dans le cas du transfert de population dans la référence (1).

Les formules (27) permettent d'interpréter simplement le comportement oscillant des coefficients $\Pi_{\alpha\beta}^k(i)$ pour les grandes valeurs de q et τ de l'ordre de 10. (Remarquons (cf. FIG 2 et 4) que le spectre de Fourier des coefficients est très différent selon que τ vaut 1 ou 10). Nous avons en effet pour $\tau = 10$ $q \sim 100$ (cf. FIG 6).

$$|V_4| \gg |V_1|, |V_2|, |V_3| \quad (29)$$

Cette inégalité est évidemment liée à la position relative des niveaux d'énergie associés aux états $|\Sigma u\rangle$ et $|\Pi g\rangle$ ou $|\Sigma g\rangle$ et $|\Pi u\rangle$ (cf. FIG 5) qui coïncident aux grandes distances et qui restent de toute façon toujours proches l'un de l'autre. Il en résulte une probabilité de transition importante entre ces niveaux. (L'inégalité (29) n'est pas vérifiée aux petites valeurs de τ puisque l'invariance du hamiltonien dans l'échange des atomes étant approximativement vérifiée, des états de parités différentes ne peuvent être couplés, donc $V_4 \approx 0$).

L'interprétation des variations des coefficients de relaxation $\Pi_{\alpha\beta}^k(1)$ ($k \neq 0$) peut être donnée à l'aide de l'inégalité (29).

Compte tenu de

$$E_{\Pi} \sim \frac{q}{3r^3} \quad E_{\Sigma} \sim \frac{2q}{3r^3}$$

on obtient :

$$e e \Pi^1(1) \sim \frac{4}{3} - \frac{1}{3} V_4^2 \left(1 + \sin^2 \frac{q}{3}\right)$$

$$\begin{aligned}
{}_{ee}\Pi^2(1) &\sim \frac{4}{5} + \frac{V_4^2}{2} \left(1 + \frac{1}{5} \cos \frac{2q}{3}\right) \\
{}_{ef}\Pi^1(1) &\sim 1 - \frac{1}{6} V_4^2 \left(\cos \frac{2q}{3} + \cos \frac{4q}{3}\right) \\
&\quad - \frac{i}{6} V_4^2 \left(\sin \frac{2q}{3} + \sin \frac{4q}{3}\right)
\end{aligned}$$

Conformément aux résultats du calcul numérique, nous trouvons que ${}_{ee}\Pi^1(1)$ et ${}_{ee}\Pi^2(1)$ présentent une modulation en $2q/3$, et que ${}_{ef}\Pi^1(1)$ est modulé en $2q/3$ et en $4q/3$, la partie imaginaire représentant le shift de la raie optique étant en quadrature avec la partie réelle. (cf. FIG 8). En ce qui concerne ${}_{ee}\Pi^1(1)$ et ${}_{ee}\Pi^2(1)$, on constate que les valeurs limites $4/3$ et $4/5$ prévues par le calcul adiabatique sont effectivement atteintes. Ceci confirme une nouvelle fois que la nature des solutions du système (8) est très différente selon la valeur de τ . Pour $\tau = 10$ le terme de couplage rotationnel entre états $|\Sigma_u^g\rangle$ et $|\Pi_g^u\rangle$ suffit pour interpréter les variations des coefficients de relaxation aux grandes valeurs de q , alors que ce terme devient totalement négligeable dans les mêmes conditions pour $\tau \approx 0$. Dans ce dernier cas, c'est le terme V_3 provenant du couplage rotationnel entre états $|\Sigma_u\rangle$, $|\Pi_u\rangle$ et $|\Sigma_g\rangle$, $|\Pi_g\rangle$ qui est important.

En ce qui concerne les coefficients de transfert, la situation est beaucoup moins claire puisque V_4 n'intervient pas dans leurs expressions. On a cependant pour $\tau = 10$ et $q \sim 100$

$$|V_1| \gg |V_2| > |V_3| \quad (30)$$

ce qui signifie qu'aux grands écarts d'énergie le couplage rotationnel est moins efficace que le couplage radial pour produire des transferts d'excitation entre les deux atomes. (En effet - cf. Eq 28 - , $\dot{\psi}$ devient petit devant $\dot{\psi}_{\Pi,\Sigma}$ qui font intervenir les dérivées du potentiel, très grandes aux très petites distances).

Les équations (27) donnent alors :

$${}_{ee}\Pi^0(1) \sim \frac{2}{3} |v_1|^2$$

$${}_{ee}\Pi^1(2) \sim \frac{1}{3} |v_1|^2$$

$${}_{ee}\Pi^2(2) \sim -\frac{1}{15} |v_1|^2$$

$${}_{ef}\Pi^1(2) \sim -\frac{1}{3} v_2$$

Le comportement de ${}_{ee}\Pi^0(1) = -{}_{ee}\Pi^0(2)$ dépend donc essentiellement des transitions entre états moléculaires de même symétrie (Π et Π ; Σ et Σ) et donc du couplage radial, l'influence de la rotation du système (termes de Coriolis) étant négligeable. La modulation en $4q/3$ obtenue est en accord avec celle donnée par le calcul numérique quoique les résultats de celui-ci laissent penser que le spectre de Fourier est plus abondant. Il en va de même pour ${}_{ee}\Pi^1(2)$, tandis que le cas de ${}_{ee}\Pi^2(2)$ paraît plus difficile à interpréter.

On peut donc conclure pour ces coefficients de transfert aux grands écarts d'énergie (et aux petits paramètres d'impact) que les termes prépondérants proviennent des transitions entre états de même symétrie moléculaire (couplage radial) et que les termes de transition dûs à la rotation n'ont qu'une importance très réduite.

De plus les états $|\Pi g\rangle$ et $|\Pi u\rangle$ ou $|\Sigma g\rangle$ et $|\Sigma u\rangle$ ont toujours des énergies très différentes ce qui explique la petitesse des taux de transfert pour les grandes valeurs de τ .

Lorsque l'écart d'énergie est nul, les processus sont totalement différents. Les termes axiaux sont nuls et le transfert provient du couplage par rotation, d'autant plus important que les niveaux sont cette fois dégénérés à longue distance.

Pour les valeurs de τ comprises entre 0 et 10, les processus sont intermédiaires entre les deux situations décrites et fort complexes.

5 - Approximation du potentiel dipôle-dipôle pour les grandes valeurs de ΔE .

Lorsque l'on suppose vérifiée la relation (23)

$$\Delta E \gg p/R^3 \quad \eta \gg q/r^3$$

on peut traiter le potentiel dipôle-dipôle comme une perturbation dans l'équation (2), et l'on obtient l'équation (22) (cf. § IV-3)

$$i \frac{d}{dt} |A_1\rangle = \frac{p^2}{3R^6 \Delta E} (J_u - \frac{2J^2}{3}) |A_1\rangle$$

Le transfert à l'atome 2 lors de la collision devient négligeable du fait de la grande différence d'énergie existant entre les niveaux des deux atomes ; l'évolution de l'état excité de l'atome 1 s'effectue alors dans un potentiel en $1/R^6$ du type Van der Waals (¹¹). Il est intéressant de comparer les coefficients de relaxation $\alpha_{\beta} \Pi^k(1)$ ($k \neq 0$) obtenus par résolution numérique de l'équation (22) à ceux obtenus par la résolution numérique de l'équation exacte (8). Cette comparaison peut se faire pour $\tau = 10$ sur la figure 9.

On peut distinguer trois régions selon les valeurs de q . Pour les petites valeurs de q ($q < 5$), les coefficients $\alpha_{\beta} \Pi^k(1)$ calculés au moyen des deux expressions du potentiel coïncident exactement. Ceci n'est pas surprenant puisque, nous l'avons vu au § IV-3, l'équation (22) fournit les formes asymptotiques correctes pour $\tau > 5$, et que la condition (23) $\eta \gg q/r^3$ est vérifiée dans cette région.

Pour les valeurs de q intermédiaires, le comportement des coefficients diffère selon la méthode de calcul. (La condition (23) n'est plus tout à fait réalisée). En fait ce qui importe pour le calcul des sections efficaces est le comportement pour $q < 10$ (cf. § V). La figure 9 montre que l'accord sans être parfait est satisfaisant dans cette région pour le déplacement et l'élargissement optiques, mais que le comportement des coefficients de relaxation de l'alignement et de l'orientation est assez dif-

férent selon la méthode d'évaluation.

Pour les très grandes valeurs de q , les coefficients oscillent autour de la même valeur moyenne.

En conclusion, l'approximation du potentiel dipôle-dipôle par un potentiel en $1/R^6$ pour $\tau = 10$ ne paraît pas totalement justifié d'une part parce que les coefficients de transfert ne sont pas totalement négligeables et d'autre part parce que le comportement des coefficients n'est pas tout à fait identique aux valeurs intermédiaires du paramètre d'impact. Il est néanmoins hors de doute que les sections efficaces obtenues pour la relaxation des observables de l'atome 1 tendent asymptotiquement vers celles données par le potentiel en $1/R^6$ de l'équation (22) pour de plus grandes valeurs de τ . Il suffit pour cela que la condition (23) soit réalisée pour q de l'ordre de 10. (cf. § V).

V - TAUX DE RELAXATION - SOMMATIONS SUR LE PARAMETRE D'IMPACT

ET LA VITESSE RELATIVE

1 - Sommation sur le paramètre d'impact

La probabilité qu'une collision de paramètre d'impact b et de vitesse relative v se produise pendant le temps dt est $2\pi N_2 b v db dt$ où N_2 représente le nombre d'atomes perturbateurs (atomes 2) par unité de volume.

Les taux de relaxation pour une vitesse relative v fixée sont alors définis par :

$$\alpha_{\beta} g^k(i, \tau) = 2\pi N_2 v \int_0^{+\infty} \alpha_{\beta} \Pi^k(i) b db \quad (31)$$

Nous introduisons (3) le paramètre sans dimension

$$\alpha\beta K^k(i) = \frac{3\sqrt{3}}{2} \int_0^{+\infty} \alpha\beta \Pi^k(i) d(1/q) \quad (32)$$

soit

$$\alpha\beta g^k(i, \tau) = \frac{2}{3\sqrt{3}} p \pi N_2 \alpha\beta K^k(i) \quad (33)$$

où p a été défini précédemment (Eq. 3).

La sommation sur q a été effectuée en distinguant trois régions :

-a- valeurs de q inférieures à 0,1

Les formes asymptotiques sont alors en très bon accord avec les résultats du calcul numérique (cf. § IV-3).

Nous faisons l'approximation :

$$\alpha\beta \Pi^k(i) \sim \alpha\beta \Pi^k(i)^{as}$$

Les quantités à évaluer sont de la forme :

$$\int_0^{q_0} f_1(\eta) dq$$

et peuvent l'être analytiquement (9) (10)* .

$$\int_0^{q_0} f_1(\eta) dq = q_0 \cdot F_1(\eta_0) \quad (34)$$

$$F_1(\eta) = \frac{\eta^4}{4} [K_3(\eta) \cdot K_1(\eta) + 4K_2(\eta) \cdot K_0(\eta) - K_2(\eta)^2 - K_1(\eta)^2 - 3K_0(\eta)^2] \quad (35)$$

En pratique, cette contribution aux taux de relaxation est totalement négligeable dès que τ est supérieur à 2* .

* Note : Ceci n'est pas vrai en ce qui concerne la partie imaginaire de $e_f \Pi^1(1)$ (déplacement), qu'il faut calculer numériquement à partir des relations (21). De plus la contribution asymptotique n'est pas négligeable dans ce cas, quelle que soit la valeur de τ .

-b- Valeurs de q comprises entre 0,1 et 20

Dans cette région, seule la résolution numérique de l'équation de Schrödinger donne des résultats acceptables ⁽¹⁾ ⁽³⁾. Les méthodes numériques utilisées sont celles citées dans la référence (1). Cette région est très importante pour une évaluation correcte des sections efficaces, en particulier des sections de transfert pour les grandes valeurs de τ .

-c- Valeurs de q supérieures à 20

L'approximation adiabatique (cf. § IV-4) fournit dans cette région de collisions fortes des indications qualitatives intéressantes mais demeure cependant fort imprécise en ce qui concerne la prédiction de la valeur moyenne des divers coefficients aux grandes valeurs de q (surtout en ce qui concerne les coefficients de transfert). Nous ne l'avons donc pas utilisée pour calculer les sommations sur q pour q supérieur à 20. La méthode employée est basée sur l'étude numérique de la région $q = 100$, $q = 110$ qui couvre au moins une période des oscillations de chaque coefficient. On en déduit alors :

$$\int_{q_0}^{+\infty} \Pi(q) \frac{dq}{q^2} \sim \frac{\langle \Pi \rangle_{100}}{q_0}$$

Ceci suppose donc que sur l'intervalle considéré les oscillations de $\Pi(q)$ soient régulières et de plus que la valeur moyenne des coefficients sur une période soit une fonction très lentement variable de q , ce qui est bien vérifié pour τ de l'ordre de 1. La méthode employée n'est en fait critiquable que pour les coefficients de transfert aux grandes valeurs de τ pour lesquels la contribution de la région à la section efficace est notable ⁽¹⁾ ^{*}.

* NOTE : L'emploi d'une méthode numérique analogue à celle utilisée dans la référence 1 pour déterminer l'enveloppe aux grandes valeurs de q et pour chaque valeur de τ des coefficients de transfert aurait permis d'améliorer l'approximation, mais demanderait des temps de calcul trop importants.

-d- Résultats

Les coefficients ${}_{\alpha\beta}K^k(i,)$ sont donnés dans le tableau 1 et la figure 10. Lorsque l'écart d'énergie est nul ($\tau = 0$), nos valeurs sont conformes à celles données par OMONT et MEUNIER (3) si l'on excepte ${}_{ef}K^1(2)$ qui représente le déplacement de la raie optique de l'atome perturbateur dont la valeur est erronée dans la référence (3).

Lorsque l'écart d'énergie n'est plus nul, on constate de manière générale une diminution de la relaxation et du transfert par collision et l'apparition d'un déplacement de la raie optique de l'atome 1. Ces deux faits sont évidemment liés au caractère non résonnant de l'interaction. Il faut également noter que les taux de relaxation ou de transfert des observables sont en général maxima pour une valeur non nulle de l'écart d'énergie ce qui traduit probablement le fait que le spectre de Fourier de la perturbation est maximum pour une fréquence non nulle. L'effet de la collision sur l'état interne des atomes peut donc être plus important hors résonance.

-e- Limite des grandes valeurs de τ .

Lorsque la condition (23) est réalisée pour des valeurs de q de l'ordre de 10, l'évolution par collision du système des deux atomes est gouvernée par l'équation (22), l'atome 1 évoluant dans un potentiel de Van der Waals en R^{-6} et les taux de transfert à l'atome 2 devenant totalement négligeables.

Les taux de relaxation sont alors donnés par l'équation

$${}_{\alpha\beta}K^k(1) = \frac{3\sqrt{3}}{2\pi} \frac{\mu^{1/10}}{3^{2/5}} \frac{{}_{\alpha\beta}f(k)}{\tau^{2/5}} = \frac{{}_{\alpha\beta}A(k)}{\tau^{2/5}} \quad (36)$$

où les coefficients ${}_{\alpha\beta}f(k)$ obtenus par résolution numérique de l'équation (22) valent :

$${}_{ee}f(1) = 2,89$$

$${}_{ee}f(2) = 2,58$$

$${}_{ef}f(1) = (3,43 - i.2,56)$$

Les deux premières valeurs sont en accord avec celles données par FAROUX (11).

Il en résulte

$$\begin{aligned} e_e K^1(1) &= \frac{1,365}{\tau^{2/5}} & e_e K^2(1) &= \frac{1,22}{\tau^{2/5}} \\ e_f K^1(1) &= \frac{1,62}{\tau^{2/5}} - i \frac{1,21}{\tau^{2/5}} \end{aligned} \quad (37)$$

Ces valeurs ont été reportées sur la figure 10. Pour $\tau = 10$, l'accord est bon pour le dipôle optique (relaxation et déplacement), moins bon pour l'orientation et l'alignement. Ces conclusions sont en accord avec l'étude effectuée au paragraphe IV-5, qui montrait que la forme en $1/R^6$ du potentiel n'était pas totalement justifiée pour $\tau = 10$. Pour les valeurs de τ supérieures à 10, les taux de relaxation ${}_{\alpha\beta}K^k(1)$ tendront asymptotiquement vers les valeurs données par les expressions (37).

2 - Moyenne sur la vitesse relative des atomes

Dans le cas parfaitement résonnant ($\Delta E = 0$) (2) (3), les coefficients g^k donnés par la formule (33) sont indépendants de la vitesse relative des atomes. Ce résultat n'est valable que dans le cas d'un potentiel en $1/R^3$ lorsque le mouvement relatif des atomes est traité classiquement (12).

Lorsqu'au contraire, l'écart d'énergie est non nul, les coefficients ${}_{\alpha\beta}g^k(i, \tau)$ dépendent à la fois de cet écart d'énergie et de la vitesse relative, par l'intermédiaire de la variable τ (Eq. 6) :

$$\tau = \Delta E / \Delta E_a = \Delta E p^{1/2} \mu^{1/4} v^{-3/2}$$

Pour relier les coefficients ${}_{\alpha\beta}g^k(i, \tau)$ aux données physiques obtenues par exemple par effet Hanle sur une vapeur atomique, il est nécessaire d'effectuer une moyenne sur la vitesse relative des atomes contribuant au signal observé (3) (11), puisqu'il n'est pas possible en général de sélectionner dans de tels cas les atomes appartenant à une classe de vitesse donnée.

Soit $F(v)$ la distribution des vitesses relatives des atomes excités dans la phase vapeur. Nous définissons les taux de relaxation moyens en fonction de l'écart d'énergie ΔE par la relation :

$$\begin{aligned} \alpha\beta g^k(i) &= \int_0^{+\infty} F(v) g^k(i, \tau) dv \\ &= \frac{2}{3\sqrt{3}} p \pi N_2 \int_0^{+\infty} F(v) \alpha\beta K^k(i) dv \end{aligned} \quad (38)$$

Nous admettrons que la distribution des vitesses relatives des atomes est boltzmanienne, normalisée à un atome par unité de volume, soit :

$$F(v) = \frac{4\pi v^2}{(u\sqrt{\pi})^3} e^{-v^2/u^2} \quad (39)$$

avec :

$$u = \left(\frac{2kT}{m} \right)^{1/2}$$

où m est la masse réduite des atomes en collision.

Posant alors :

$$\begin{aligned} \Delta E_c &= u^{3/2} \cdot p^{-1/2} \cdot \mu^{-1/4} \\ \tau_c &= \Delta E / \Delta E_c \end{aligned} \quad (40)$$

il vient

$$\alpha\beta g^k(i) = \frac{2\pi}{3\sqrt{3}} p N_2 \alpha\beta H^k(i, \tau_c) \quad (41)$$

avec

$$\alpha\beta H^k(i, \tau_c) = \int_0^{+\infty} h(\tau) \cdot \alpha\beta K^k(i) d\tau \quad (42)$$

et *

$$\left\{ \begin{aligned} h(\tau) &= \frac{8\tau_c^2}{3\sqrt{\pi}} \frac{\exp -(\tau_c/\tau)^{4/3}}{\tau^3} \\ \int_0^{+\infty} h(\tau) d\tau &= 1 \end{aligned} \right. \quad (43)$$

★

NOTE : Pour $\tau_c = 0$ $h(\tau) = 2 \delta(\tau)$

Les coefficients $H^k(i, \tau_c)$ définis par l'équation (42) représentent la valeur des coefficients K^k après moyenne sur les vitesses. Ils ne dépendent que de la valeur de l'écart d'énergie ΔE , de la température T de la vapeur, et de la transition considérée par l'intermédiaire du paramètre τ_c .

Il est clair que l'obtention des valeurs de H^k pour les grandes valeurs de τ_c demande la connaissance des coefficients K^k pour les grandes valeurs de τ . Nous avons utilisé les valeurs obtenues dans l'hypothèse (23) d'un potentiel en $1/R^6$ pour l'atome 1 (relations (37)) pour τ supérieur à 10.

Pour les très grandes valeurs de τ_c , l'influence des petites valeurs de τ dans la sommation (42) va devenir totalement négligeable et l'expression des coefficients H^k va tendre vers celle obtenue avec un potentiel en $1/R^6$, soit :

$$\tau_c \gg 1 \quad \alpha_{\beta} H^k = \int_0^{+\infty} h(\tau) \alpha_{\beta} K^k d\tau \\ \approx \int_0^{+\infty} h(\tau) \frac{\alpha_{\beta} A(k)}{\tau^{2/5}} d\tau$$

soit

$$\alpha_{\beta} H^k = \frac{2\Gamma(9/5)}{\sqrt{\pi}} \frac{\alpha_{\beta} A(k)}{\tau_c^{2/5}} \quad (44)$$

La valeur des coefficients $\alpha_{\beta} A(k)$ est donnée dans l'équation (37). Les taux de transfert sont évidemment nuls dans ces conditions. Les résultats obtenus pour les coefficients H^k avec ces hypothèses sont présentés dans le tableau 2 et sur la figure 11 en fonction de τ_c . Ils ne diffèrent pas essentiellement des valeurs obtenues avant moyenne sur les vitesses. Pour τ_c de l'ordre de 20 les valeurs des coefficients de relaxation sont à une excellente approximation données par la formule (44) et la relaxation est bien décrite pour τ_c supérieur à 20 par le potentiel en $1/R^6$ de la formule (22). En ce qui concerne les taux de transfert, leurs variations aux grandes valeurs de τ_c sont exponentielles et leurs valeurs très petites.

VI - DISCUSSION DES HYPOTHESES DU CALCUL

1 - Validité du potentiel en $1/R^3$

Nous avons implicitement supposé que, à longue distance, dans la zone $q \sim 1$ d'où provient l'essentiel des sections efficaces pour $\Delta E = 0$, le potentiel V_{12} en R^{-3} est plus grand que les autres termes de l'interaction entre les atomes. Ceci exclut donc le cas des transitions à faible force d'oscillateur (cas des niveaux 3P_1 du Cadmium et du Zinc par exemple).

Cependant, lorsque l'écart d'énergie ΔE augmente, une grande partie des sections efficaces (et en particulier des sections efficaces de transfert) provient des collisions rapprochées ; le fait que les autres termes du potentiel soient négligeables devant V_{12} à longue distance ne suffit alors pas à justifier qu'on les néglige partout puisqu'ils croissent avec R^{-1} beaucoup plus vite que le potentiel dipôle-dipôle.

Chaque situation expérimentale est donc un cas d'espèce qu'il faut examiner en soi, et la validité des résultats du §V sera fonction de l'élément et de la force d'oscillateur de la transition considérée.

On peut néanmoins ébaucher une étude en supposant que le potentiel de Van der Waals en R^{-6} représente la partie essentielle des termes de l'interaction que nous avons implicitement négligés en restreignant notre analyse à 6 niveaux (ceci sera vrai en général pour les éléments lourds, tandis que les termes d'échange pourront être prépondérants dans le cas des éléments légers).

Lorsque la force d'oscillateur de la transition considérée est faible (de l'ordre de 10^{-2}), le potentiel de Van der Waals V_6 peut être du même ordre de grandeur que le potentiel dipôle-dipôle dans des régions de paramètres d'impact, importantes pour l'évaluation de la section efficace dès que τ vaut quelques unités. Une estimation correcte des taux de relaxa-

xation et de transfert impose alors de reprendre le calcul entièrement en tenant compte à la fois du défaut de résonance, du potentiel dipôle-dipôle et du potentiel de Van der Waals (en supposant que les autres termes du potentiel soient négligeables devant celui-ci). Une telle étude est évidemment difficile bien que pouvant être notablement simplifiée par l'utilisation des propriétés de symétrie et une analyse analogue à celle du § IV-4 dans le cadre de l'approximation adiabatique. La possibilité de croisements de niveaux moléculaires n'est alors pas exclue et il n'est pas possible de prévoir à priori la forme des variations en fonction de τ des taux de destruction ou de transfert des observables au cours de la collision.

Par contre, pour les transitions à grandes forces d'oscillateur (de l'ordre de 1), le potentiel dipôle-dipôle reste supérieur à V_6 aux grandes valeurs de q . Il en résulte que pour les petites valeurs de τ , l'influence de V_6 sur les sections efficaces calculées précédemment sera certainement négligeable. Pour des valeurs de τ plus grandes (de l'ordre de 10) nous avons vu au § IV-5 que dans la région importante pour le calcul des sections efficaces de relaxation de l'atome 1, on peut remplacer en première approximation l'interaction avec l'atome 2 par le potentiel $V_{12}^2/\Delta E$ variant lui aussi en R^{-6} . On pourrait donc simplement lui ajouter V_6 sans compliquer les calculs, mais dans bien des cas V_6 est négligeable devant $V_{12}^2/\Delta E$. Le potentiel de Van der Waals est ainsi complètement négligeable pour le niveau 6^1P_1 du Mercure.

Le cas des valeurs de τ_c supérieures à 10 ne se présente pas en pratique pour les déplacements isotopiques (cf. § VII-3). Par contre, on peut rencontrer des valeurs de τ_c beaucoup plus grandes dans des problèmes analogues comme le transfert entre composantes Zeeman dans des champs magnétiques de l'ordre de 10 tesla ⁽⁸⁾, ou le transfert entre niveaux de structure fine des alcalins par exemple ⁽¹³⁾. Les effets des interactions à courte distance et en particulier les termes d'échange peuvent alors devenir prépondérants pour des sections efficaces de l'ordre de 10^{-14} cm² ou plus petites.

2 - Hypothèse de trajectoire classique rectiligne

Les déplacements isotopiques n'étant jamais très grands (cf. § VII-3), pour tous les éléments les sections efficaces de collisions quasi-résonnantes sont au moins de l'ordre de 10^{-13} cm² et de même de 10^{-12} cm² pour les transitions de forces d'oscillateurs de l'ordre de 1. Cela correspond à des moments cinétiques relatifs l de plusieurs dizaines ou même de plusieurs centaines pour les éléments lourds ; l'approximation de trajectoire rectiligne est donc toujours bonne sinon excellente. Ce serait évidemment à reconsidérer pour des valeurs de τ_c beaucoup plus grandes telles qu'on peut les rencontrer dans les transferts Zeeman ou de structure fine (¹⁴). Nous avons fait l'hypothèse que la valeur de ΔE est petite comparée à l'énergie thermique kT . Ceci nous permet de découpler le mouvement orbital relatif des atomes de l'évolution de leur état interne. L'hypothèse est en définitive vérifiée dans les situations expérimentales que nous discutons au § VI-3.

Il est difficile de prévoir a priori l'importance des modifications qu'apporterait à nos résultats un traitement rigoureux conservant l'énergie totale du système. Il est en effet évident que le couplage introduit entre les variables orbitales et les variables internes entraîne une extrême complexité du problème à résoudre. Nous nous bornerons à quelques remarques qualitatives.

Les relations de symétrie démontrées au § 2 ne seront valables qu'à la limite $\Delta E \ll kT$. Lorsque cette condition n'est pas vérifiée, on ne pourra passer de manière simple de la solution du problème pour (ΔE) à la solution pour $(-\Delta E)$. Cependant, les taux de relaxation obtenus dans ces deux situations vérifieront le principe de bilan détaillé puisque la relaxation reste isotrope et que le hamiltonien du problème est invariant par renversement du temps.

VII - COMPARAISON AUX VALEURS THEORIQUES ET EXPERIMENTALES EXISTANTES

1 - Comparaison aux résultats analytiques d'OMONT (9)

Utilisant la méthode de coupure d'ANDERSON et la théorie développée par TSAO et CURNUTTE (10), OMONT a proposé une méthode de résolution analytique du problème considéré. Le principe en a été exposé dans la référence (1) : pour les petites et moyennes valeurs de q , on utilise pour les probabilités de relaxation leurs valeurs asymptotiques ${}_{ee}^k(1)^{as}$ données au § IV-3 ; ceci pour $q \leq q_k$ où q_k est défini par :

$${}_{ee}^k(1)^{as} = \Pi_L^k \quad (45)$$

avec $\Pi_L^{k \neq 0} = 2\Pi_L^0 = 1$.

et pour $q \geq q_k$, on prend simplement ${}_{ee}^k(1)^{as} = \Pi_L^k$.

Tous calculs faits, on obtient (9) :

$$\alpha\beta g^k(\Delta E) = \Phi(\Delta E / \alpha\beta \Delta E_k(i)) \alpha\beta g^k(0)$$

où $g^k(0)$ désigne la valeur du taux de relaxation lorsque l'écart d'énergie est nul et

$$\alpha\beta \Delta E_k(i) = \left[\frac{v^3}{P \cdot \sqrt{\alpha\beta \mu^k(i)}} \right]^{1/2}$$

est une énergie caractéristique de la relaxation de chaque observable. La valeur des coefficients $\mu^k(i)$ adoptée est liée à la définition d'un rayon de coupure pour chaque observable (9).

$${}_{ee}^{\mu^1}(1) = {}_{ee}^{\mu^2}(1) = 8/27$$

$${}_{ee}^{\mu^0}(1) = \frac{16}{27} \quad \text{et} \quad {}_{ef}^{\mu^1}(1) = \frac{4}{27}$$

La fonction Φ est alors donnée par le système d'équations implicites :

$$\Phi(\Delta E/\Delta E_k) = \frac{1}{2} [(\eta_k/\tau_k)^2 + (\tau_k/\eta_k)^2 F_1(\eta_k)]$$

$$\tau_k = \Delta E/\Delta E_k = \eta_k [f_1(\eta_k)]^{-1/4}$$

avec

$$F_1(\eta) = \frac{\eta^4}{4} [K_3(\eta)K_1(\eta) + 4K_2(\eta)K_0(\eta) - K_2(\eta)^2 - K_1(\eta)^2 - 3K_0(\eta)^2]$$

$$f_1(\eta) = \frac{\eta^4}{4} [K_2(\eta)^2 + 4K_1(\eta)^2 + 3K_0(\eta)^2]$$

La tabulation de la fonction Φ est donnée dans le tableau 4. (Les valeurs tabulées dans la référence 9 sont erronées aux grandes valeurs de τ).

La figure 12 permet de comparer les résultats ainsi obtenus aux valeurs du tableau 1.

En ce qui concerne le transfert de la population ($k=0$), il existe un désaccord important provenant de la définition du rayon de coupure qui surestime la contribution au transfert des collisions à courte distance (cf. référence (1)). D'autre part, l'hypothèse $\Pi_0^L = 1/2$ d'équipartition de la population dans les collisions fortes n'est pas vérifiée pour les valeurs de $\tau > 0,5$ comme on peut le remarquer sur la figure 3. Il n'est donc pas surprenant que la méthode approchée précédente surestime de manière très importante les sections de transfert pour la population.

Dans le cas de la relaxation de l'orientation, de l'alignement, et du dipôle optique, l'accord est meilleur. Il faut cependant remarquer que pour τ de l'ordre ou supérieur à 5 les formes asymptotiques au second ordre (Eq. 21) avec lesquelles la méthode est établie ne sont plus valables. Ceci explique pourquoi aux fortes valeurs de τ , les valeurs obtenues avec l'approximation d'Anderson sous-estiment les taux de relaxation alors que

la situation inverse est la règle générale (Remarquons que des valeurs $\Pi_L^k \approx 1$ pour les collisions fortes sont justifiées dans ce cas - cf. FIG 3). On pourrait améliorer le traitement en utilisant pour $\tau > 5$ les formes asymptotiques données par les équations 24. Ce traitement analytique du problème est insuffisant en ce qui concerne la population dès que le transfert de l'excitation devient réellement non résonnant ($\Delta E \cdot T_c > \hbar$). La validité de sa généralisation à des cas compliqués telles les collisions moléculaires (¹⁵) (étude du transfert par collision entre niveaux de rotation) doit donc être examinée soigneusement. Il est clair cependant que le traitement de perturbation au second ordre auquel on ramène la résolution de l'équation de Schrödinger présente le grand avantage de la simplicité et permet la prise en compte d'un grand nombre de canaux de réaction, ce qui est difficile lors d'une résolution numérique précise. Néanmoins, la convergence du développement de perturbation devenant très lente lorsque ΔE est de l'ordre de T_c^{-1} , l'approximation de l'équation de Schrödinger par un développement réduit au second ordre peut être totalement injustifiée. En outre, l'approximation d'Anderson pour le traitement des collisions fortes dans de tels cas doit être employée avec précaution, surtout en ce qui concerne les taux de transfert par collision, nous venons de le voir dans le cas du transfert de la population vers un seul niveau.

Les valeurs théoriques des probabilités de transfert entre niveaux de rotation obtenues par RABITZ et GORDON (¹⁵) avec divers types de potentiel d'interaction (dipôle-dipôle, dipôle-quadrupôle) pourraient donc être entachées d'une erreur importante lorsque ΔE est grand comparé à T_c^{-1} (et $\Delta E \ll kT$).

Il paraît donc difficile après de telles approximations de pouvoir déduire d'une comparaison théorie-expériences, la forme de l'interaction responsable du transfert, quand bien même la précision des résultats expérimentaux le permettrait.

2 - Extension aux transitions de résonance $J_e = \frac{1}{2} \rightarrow J_f = \frac{1}{2}$
 et au cas des petites structures fines ou hyperfines.

VII-2-a) Cas des transitions $J_e = \frac{1}{2} \rightarrow J_f = \frac{1}{2}$

Dans le cas où le transfert de l'excitation durant la collision est résonnant ($\Delta E = 0$), CARRINGTON et al ont montré (référence (12)) que la connaissance de la matrice de collision pour des transitions $J = 1 \rightarrow J = 0$ permet sans nouvelle résolution numérique d'obtenir la solution du problème dans le cas de transitions $J_e = \frac{1}{2} \rightarrow J_f = \frac{1}{2}$. Cette propriété se généralise dans le cas présent où le défaut de résonance possède la symétrie sphérique.

Les taux de relaxation et de transfert pour des transitions $J_e = \frac{1}{2} \rightarrow J_f = \frac{1}{2}$ en fonction de ΔE peuvent donc être déduits des résultats des tableaux 1 et 2 par la méthode donnée dans la référence (2).

VII-2-b) Extension au cas des petites structures fines ou hyperfines

Lorsque l'énergie ΔE_{hfs} de structure fine ou hyperfine des niveaux des atomes considérés est telle que :

$$\Delta E_{\text{hfs}} \cdot T_c \ll 1$$

le spin électronique S ou nucléaire I selon les cas sont découplés pendant la collision (interaction purement orbitale). Dans cette hypothèse les résultats précédents se généralisent par un simple recouplage de moments angulaires (2a).

3 - Vérifications expérimentales possibles

Le choix des éléments susceptibles d'apporter une vérification expérimentale directe des résultats du tableau 2 est soumis aux conditions très restrictives suivantes :

- Transitions de résonance $J_e = 1$, $J_f = 0$ (ou $J_e = \frac{1}{2}$ $J_f = \frac{1}{2}$)
- Existence de déplacements isotopiques ΔE grands comparés à la largeur optique des raies (Doppler) mais néanmoins petits comparés à l'énergie de translation (6 000 GHz à $T = 300$ °K).
- Existence d'isotopes pairs de spin nucléaire nul à moins que la structure hyperfine magnétique soit petite comparée à l'inverse T_c^{-1} de la durée de collision (auquel cas on peut considérer que le spin nucléaire est découplé durant la collision - cf. § VII-2).

Enfin, la mise en évidence expérimentale des effets décrits ci-dessus exige que la valeur de τ_c soit au moins de l'ordre de 2 pour des valeurs de la température T correspondant aux conditions usuelles d'étude dans une cellule de l'élément considéré, ce qui impose une nouvelle condition sur la valeur du déplacement isotopique. En pratique, cela signifie que seuls les éléments légers ou les éléments lourds (déplacement de masse ou de volume) seront susceptibles de permettre une vérification expérimentale de nos calculs.

Plusieurs types d'études peuvent être envisagés :

- celle de la relaxation par collision des observables de l'atome 1, utilisant par exemple l'effet Hanle. On peut alors étudier l'isotope 1 en traces dans l'isotope 2 ce qui a l'avantage d'éliminer les effets de la diffusion multiple de la raie de résonance (cf. référence (3)).

- une étude du transfert des observables par collision ⁽⁵⁾ ⁽¹⁶⁾. Cette étude est beaucoup plus difficile que la précédente puisqu'elle exige des mesures précises d'intensités.

- une étude de l'élargissement et du shift de la raie de résonance de l'atome 1.

Le déplacement de la raie optique de l'atome 1 peut être relativement très important puisqu'il est comparable à l'élargissement pour τ_c de l'ordre de 5 et il devrait pouvoir être mis en évidence par une étude par balayage magnétique ⁽¹⁷⁾ du profil de la raie émise. Il faut noter que ce déplacement change de signe selon que l'on étudie l'isotope 1 en traces dans l'isotope 2 ou l'isotope 2 en traces dans l'isotope 1. Cette particularité doit per-

mettre de séparer l'effet cherché du déplacement causé par le reste du potentiel (Van der Waals, etc.).

Enfin, un autre type d'étude est possible en utilisant la dépendance de τ_c en fonction de la température de la vapeur. Une étude en vapeur sèche ⁽¹¹⁾ peut donner des renseignements sur le comportement des coefficients $H^k(\tau_c)$.

En pratique, il existe un très petit nombre d'éléments présentant un déplacement isotopique important sur une raie de résonance (1-0 ou à structure fine petite) ; ce sont : l'Hydrogène pour les éléments légers (le Lithium, le Bore et le Magnésium conduisent à des valeurs de τ_c inférieures à 0,1 à 900 °K), le Mercure et le Plomb pour les éléments lourds. En outre, dans la plupart des cas, les conditions d'étude en phase vapeur de ces éléments sont telles qu'aucun effet ne pourra être mis en évidence par les méthodes traditionnelles.

VII-3-a) Cas des collisions Hydrogène-Deutérium

Le déplacement isotopique de la raie Lyman α (1215 Å) est de 680 GHz. Il est donc très supérieur à la largeur Doppler des raies à 2600 °K (90 GHz pour l'Hydrogène ; 60 GHz pour le Deutérium). La raie présente une structure fine de 10 GHz. Celle-ci est très inférieure à l'inverse de la durée moyenne de la collision et à la largeur Doppler. On peut donc considérer que le spin électronique est découplé pendant la collision et les calculs précédents sont utilisables (Transition $L = 1 \rightarrow L = 0$). Le même raisonnement est valable pour le spin nucléaire. Ceci conduit à une valeur de τ_c de l'ordre de 0,4 à 2600 °K, ce qui est insuffisant pour obtenir des effets observables. Le cas du Lithium (Li^6 - Li^7) est peu intéressant puisque τ_c vaut 0,1 à 900 °K ; les effets isotopiques possibles seront donc très faibles. De plus, la théorie développée précédemment n'est pas applicable car le shift isotopique 10,5 GHz est de l'ordre de grandeur de la structure fine.

VII-3-b) Cas des éléments lourds

Nous ne discuterons que les cas du Mercure et du Plomb. L'étude théorique et expérimentale d'OMONT (3) sur le niveau 6^3P_1 du Mercure a mis en évidence que les effets du défaut de résonance y sont certainement peu importants. Ceci est en accord avec les résultats théoriques puisqu'au maximum la valeur de τ_c atteint 0,76 pour le couple 198-204. Donc (cf. FIG 11) les effets de l'écart d'énergie sont faibles et inférieurs à l'incertitude expérimentale de l'ordre de 10% dans les expériences d'effet Hanle. Il n'est cependant pas exclu de mettre en évidence l'existence du shift de la raie optique puisqu'il prend des valeurs notables pour ces petites valeurs de τ_c (cf. FIG 11a).

Bien que les conditions expérimentales soient plus défavorables (6), la raie de résonance du Mercure (1849 Å) est beaucoup plus intéressante pour la vérification de la théorie précédente. La force du potentiel dipôle-dipôle y est près de 30 fois supérieure à celle que l'on obtient avec la raie d'intercombinaison, de sorte que la durée moyenne de la collision est beaucoup plus grande. La structure isotopique est de l'ordre de 15 GHz (18) (16 GHz pour la raie 2537 Å) de sorte que τ_c peut valoir de l'ordre de 4. (cf. tableau 3) (l'énergie caractéristique ΔE_c vaut 3,50 GHz à $T = 300$ °K). Les effets du caractère non résonnant du transfert de l'excitation doivent donc apparaître nettement (par exemple le transfert et la relaxation doivent être très importants pour des collisions 198* - 198 ou 198* - 200 mais beaucoup plus faibles pour des collisions 198* - 204). La même étude avec les isotopes impairs demande un traitement théorique plus élaboré (la structure hyperfine peut ne pas être découplée pendant la collision. Elle vaut environ 20 GHz pour Hg^{199}).

L'étude par effet Hanle de ces phénomènes sur le niveau 6^1P_1 du Mercure est actuellement en cours (6).

On peut également envisager l'étude du déplacement de la raie 1849 Å, selon la nature de l'isotope perturbateur, avec la méthode de balayage magnétique mentionnée ci-dessus.

Dans le cas de la raie de résonance du plomb ($2833 \overset{\circ}{\text{Å}}$) les effets décrits doivent être faibles puisque pour les collisions $\text{Pb}^{208} - \text{Pb}^{206}$ la valeur de τ_c est de l'ordre de 0,30 à 900 °K et de l'ordre de 1 pour les collisions $\text{Pb}^{204} - \text{Pb}^{208}$.

Nous avons exclu de la discussion précédente le cas des transitions de grandes forces d'oscillateur ($\tau \approx 10^{-9}$ s) se produisant entre des niveaux excités des atomes et pouvant présenter dans certains cas une structure isotopique telle que la valeur de τ_c associée soit grande (He par exemple). Le problème essentiel dans ce cas est évidemment de peupler les niveaux inférieurs des transitions considérées.

Nous avons également omis les éléments dont les raies de résonance présentent une structure fine ou hyperfine grande comparée à l'inverse de la durée moyenne de la collision. (Le spin électronique ou nucléaire n'est pas découplé pendant la collision). Notre traitement limité au cas de transitions 1-0 ne s'applique évidemment pas à de telles situations et l'on doit refaire une étude complète du problème. Néanmoins, le paramètre τ_c défini précédemment permet encore de caractériser les effets possibles. Par exemple, dans le cas de la structure hyperfine de Pb^{207} on trouve que τ_c vaut de l'ordre de 2 à 900 °K et donc que le transfert de l'excitation entre les niveaux de structures hyperfines $F = \frac{1}{2}$ et $F = \frac{3}{2}$ ne sera pas résonnant. Il en est de même dans le cas du Thallium (⁴) (structure isotopique de l'ordre de la largeur Doppler) pour lequel la structure hyperfine de la raie $3775 \overset{\circ}{\text{Å}}$ peut valoir 33 GHz ce qui correspond à une valeur de τ_c de l'ordre de 3 à 900 °K. Ces deux situations peuvent donc être intéressantes tant du point de vue théorique qu'expérimental. Pour des valeurs de τ_c de l'ordre ou inférieure à 10 telles qu'on les obtient dans ces deux cas, il est de plus probable que le potentiel dipôle-dipôle suffira à rendre compte des sections efficaces de transfert obtenues expérimentalement. Ce n'est plus le cas pour le transfert entre niveaux de structure fine du Sodium. La valeur de τ_c est alors de l'ordre de 50, et l'interaction d'échange à courte distance (¹³) doit être essentielle pour évaluer les sections efficaces de transfert dans les collisions $\text{Na}-\text{Na}$.

VIII - CONCLUSION

Peu d'éléments se prêtent donc à une vérification expérimentale directe des calculs et résultats théoriques présentés précédemment. Ceux-ci ont néanmoins l'intérêt de donner dans un cas simple des valeurs des taux de transfert et de relaxation pour diverses valeurs du défaut de résonance obtenues avec un minimum d'approximation, et donc permettant de comparer valablement théorie et expérience, théorie et formulation approchée. Ceci nous permet en particulier de conclure que l'approximation de Born au second ordre de perturbation utilisée conjointement avec la méthode d'Anderson (9) (10) est inacceptable pour prédire le transfert de la population au cours de la collision. (Dans le cas simple où le transfert s'effectue vers un seul niveau électronique). L'extension de ce type de traitement à l'étude du transfert entre niveaux de rotation des molécules doit donc être faite avec précautions. On peut également penser que les progrès réalisés ces dernières années en spectroscopie moléculaire vont permettre d'effectuer des études expérimentales précises du transfert par collision entre niveaux de rotation des molécules et que l'étude théorique de ces problèmes permettra de dégager malgré leurs complexités, quelques hypothèses simplificatrices justifiées.

Outre l'extension mentionnée ci-dessus à l'étude du transfert entre niveaux de structures fines ou hyperfines dans le cas où cette structure est grande comparée à l'inverse de la durée de la collision, on peut étendre l'étude de ces processus de transfert par collision à des situations beaucoup plus favorables où l'on fait varier continûment l'écart d'énergie ΔE et donc le défaut de résonance (19). Par exemple en étudiant le transfert entre sous-niveaux Zeeman par collisions en champ magnétique très élevé. On s'affranchit ainsi des limitations liées au déplacement isotopique ou aux structures fines ou hyperfines, faibles dans la plupart des cas comparées à l'inverse de la durée de la collision. Mais le problème théorique à résoudre est aussi beaucoup plus compliqué (8). Une étude expérimentale de ce type est en cours dans des champs magnétiques de 80 kg sur le niveau 6^3P_1 du Mercure et sur le Sodium.

REMERCIEMENTS

Je remercie Monsieur A. OMONT pour les nombreuses discussions que nous avons eues et son constant intérêt, Monsieur R. CHAMPEAU, pour la partie de ce travail concernant les déplacements isotopiques et Monsieur J.P. DESCUBES pour sa lecture critique du manuscrit.



LEGENDES DES FIGURES

Figure 1 - Niveaux d'énergie des atomes considérés. L'atome A est l'atome initialement excité. L'énergie de la transition de résonance $J = 1 \rightarrow J = 0$ diffère de A à B de la quantité ΔE . (La position des niveaux d'énergie de A et de B est purement indicative).

Figure 2 - Probabilités de relaxation des observables de l'atome 1 en fonction de q proportionnel à l'inverse du carré du paramètre d'impact, pour deux valeurs caractéristiques 1 et 10 de τ (représentant l'écart d'énergie ΔE à vitesse relative fixée).

- a) ${}_{ee}\Pi^1(1)$
- b) ${}_{ee}\Pi^2(1)$
- c) $\mathcal{R}({}_{ef}\Pi^1(1))$
- d) $\mathcal{I}m({}_{ef}\Pi^1(1))$ (shift optique)

On remarquera le comportement oscillant très différent pour $\tau = 1$ et $\tau = 10$, ainsi que le déplacement dans les cas a), b), c) du premier maximum vers les grandes valeurs de q .

Figure 3 - Variations en fonction de τ des valeurs moyennes des coefficients ${}_{\alpha\beta}\Pi^k(i)$ pour des valeurs de q de l'ordre de 100.

- a) ${}_{ee}\Pi^1(1)$ relaxation de l'orientation de l'atome 1
- b) $\mathcal{R}({}_{ef}\Pi^1(1))$ élargissement de la raie de l'atome 1
- c) ${}_{ee}\Pi^2(1)$ relaxation de l'alignement de l'atome 1
- d) ${}_{ee}\Pi^0(1) = - {}_{ee}\Pi^0(2)$ relaxation et transfert de la population
- e) ${}_{ee}\Pi^1(2)$ transfert de l'orientation à l'atome 2
- f) ${}_{ee}\Pi^2(2)$ transfert de l'alignement à l'atome 2.

Les valeurs moyennes du déplacement des raies optiques (${}_{ef}\Pi^1(2)$ et $\mathcal{I}m({}_{ef}\Pi^1(1))$) sont nulles pour ces valeurs de q . Les valeurs moyennes des coefficients de relaxation des observables de l'état excité de l'atome 1 varient en fonction de τ des valeurs $\frac{7}{6}$ (orientation) et $\frac{9}{10}$ (alignement) obtenues pour $\tau = 0$ et carac-

téristiques du potentiel en $\frac{1}{R^3}$ aux valeurs $\frac{4}{3}$ (orientation) et $\frac{4}{5}$ (alignement) atteintes pour τ de l'ordre de 10 et caractéristiques du potentiel en $\frac{1}{R^6}$. La valeur moyenne des coefficients de transfert décroît sensiblement exponentiellement en fonction de τ . En particulier, on obtient pour le transfert de la population $\langle {}_{ee}\Pi^0(2) \rangle \sim -\frac{1}{2}$ pour $\tau = 0$, ce qui justifie l'hypothèse d'équipartition de la population pour les collisions fortes dans le cas résonnant, mais il apparaît que cette hypothèse est rapidement injustifiée.

Figure 4 - Probabilités de transfert des observables de l'atome 1 à l'atome 2 au cours de la collision en fonction de q . (pour $\tau = 1$ et $\tau = 10$)

- a) population ${}_{ee}\Pi^0(1) = - {}_{ee}\Pi^0(2)$
- b) orientation ${}_{ee}\Pi^1(2)$
- c) alignement ${}_{ee}\Pi^2(2)$
- d) déplacement de la raie optique de l'atome 2 ${}_{ef}\Pi^1(2)$

Les valeurs des coefficients Π représentés pour $\tau = 10$ ont été multipliées par 50 dans le cas de la population et de l'orientation et par 20 dans le cas de l'alignement. Deux caractéristiques importantes se dégagent de la comparaison des courbes pour $\tau = 1$ et 10. D'une part la petitesse des probabilités de transfert pour $\tau = 10$ et $q < 10$, ce qui explique la décroissance rapide des sections de transfert avec τ . D'autre part la croissance avec q pour τ fixé de l'amplitude des oscillations (particulièrement claire pour $\tau = 10$).

Figure 5 - Niveaux d'énergie du système en collision en fonction de la variable $x = \frac{vt}{b}$ (seuls les niveaux d'énergie associés au système différentiel (II) ont été représentés). (Pour $\tau = 10$ et $q = 100$). Les états propres associés sont définis par :

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_R |\Pi \begin{smallmatrix} g \\ u \end{smallmatrix} \rangle &= \pm E_\Pi |\Pi \begin{smallmatrix} g \\ u \end{smallmatrix} \rangle \\ \mathcal{H}_R |\Sigma \begin{smallmatrix} g \\ u \end{smallmatrix} \rangle &= \pm E_\Sigma |\Sigma \begin{smallmatrix} g \\ u \end{smallmatrix} \rangle \end{aligned}$$

Les termes de couplage entre ces niveaux sont pour le couplage

radial $p = \dot{\varphi}_{\Pi} / 2$ et $q = \dot{\varphi}_{\Sigma} / 2$ (couplage entre états de même symétrie moléculaire) et pour le couplage de Coriolis $r = \psi \sin \xi$ et $s = \psi \cos \xi$ (couplage entre états moléculaires de symétries différentes). Le terme de couplage représenté par s est important pour la description de la relaxation, et le terme p pour la description du transfert dans l'approximation adiabatique.

Figure 6 - Variations en fonction de q des amplitudes de probabilité de transition dans l'approximation adiabatique au 1er ordre de perturbation ($\tau = 10$ $q \sim 100$).

Les échelles sont différentes :

- a) $V_1 \times 5$
- b) $V_2 \times 5$
- c) $V_3 \times 100$
- d) V_4

V_4 est donc prépondérant pour $\tau = 10$ et $q \sim 100$.

Figure 7 - Variations de la force du potentiel et de la "pseudo énergie" $s_{\Sigma}(\psi)$ des niveaux en représentation adiabatique ($\psi = \text{Arc tg } x$). $G_{\Sigma}^{\Pi}(\psi)$ sont localisés dans la région des minima de $s_{\Sigma}(\psi)$.

Figure 8 - Comparaison aux valeurs exactes (courbes en trait plein) pour $\tau = 10$ et $q \sim 100$ des coefficients ${}_{\alpha\beta}^{\Pi^k}(i)$ obtenus à l'aide de l'approximation adiabatique. (°)

a- Coefficients de relaxation ${}_{\alpha\beta}^{\Pi^k}(1)$ ($k \neq 0$). L'accord est dans ce cas excellent

- a) ${}_{ee}^{\Pi^1}(1)$
- b) ${}_{ee}^{\Pi^2}(1)$
- c) $\mathcal{R}({}_{ef}^{\Pi^1}(1))$
- d) $\mathcal{I}({}_{ef}^{\Pi^1}(1))$

b- Coefficients de transfert à l'atome 2.

- a) population ${}_{ee}^{\Pi^0}(1)$; b) orientation ${}_{ee}^{\Pi^1}(2)$; c) alignement ${}_{ee}^{\Pi^2}(2)$; d) déplacement optique ${}_{ef}^{\Pi^1}(2)$

L'accord est dans ce cas beaucoup moins bon mais l'approximation adiabatique permet de justifier la période des oscillations.

Figure 9 - Comparaison aux valeurs exactes (courbes en pointillés ----) pour $\tau = 10$ des variations des coefficients $\alpha\beta \Pi^k(1)$ obtenus numériquement à partir de l'équation approchée de la formule (22) (courbes en traits pleins).

a) orientation (—) ; b) alignement (●●●) ; c) élargissement de la raie (****) ; d) déplacement de la raie (—).

L'accord est bon pour $q < 10$ excepté en ce qui concerne l'alignement et l'orientation pour lesquels les valeurs obtenues à partir du potentiel en R^{-6} de l'équation (22) diffèrent notablement des valeurs exactes pour $q > 5$, de sorte que les sections efficaces obtenues à l'aide de cette approximation surestiment (alignement) ou sous-estiment (orientation) les sections efficaces exactes.

Figure 10 - Variations des coefficients $\alpha\beta K^k(i)$ en fonction de τ proportionnel à ΔE (à vitesse relative fixée).

a- Coefficients K relatifs à l'atome 1. Population $e_e K^0(1)$ (a) ; orientation (b) ; alignement (c) ; élargissement optique (d) ; déplacement optique (e).

On a porté pour τ de l'ordre de 10 les valeurs (eq. 37) obtenues à partir de l'équation approchée (22) où la relaxation de l'atome 1 est décrite par un potentiel en R^{-6} . **** (élargissement optique) ●●● (orientation) ☆☆☆ (déplacement) ○○○○ (alignement). L'accord est bon pour le déplacement et l'élargissement optique, mais les conditions de la validité de l'approximation (22) ne sont pas encore réalisées pour $\tau \sim 10$ dans le cas de l'alignement et de l'orientation (cf Figure 9).

b- Taux de transfert des observables. Population (a) ; orientation (b) ; alignement (c) ; déplacement de la raie optique (d).

Figure 11 - Variations en fonction de τc des coefficients $\alpha\beta H^k(\tau c)$ liés aux taux de relaxation après moyenne sur les vitesses par l'équation (41).

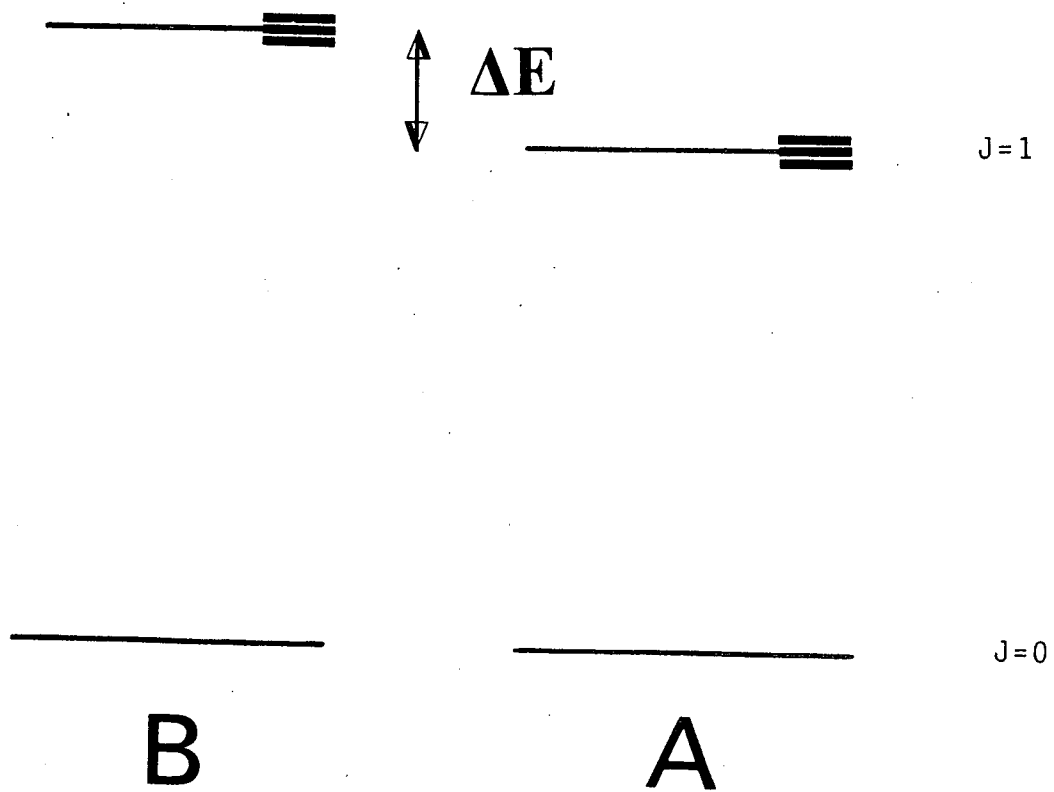
a- Coefficients $\alpha\beta H^k(1)$ pour l'atome 1
a) population ; b) orientation ; c) alignement ; d) élargissement optique ; e) déplacement optique.

b- Coefficients $\alpha\beta H^k(2)$ liés au transfert à l'atome 2
 population (a) ; orientation (b) ; alignement (c) ; déplacement optique (d).

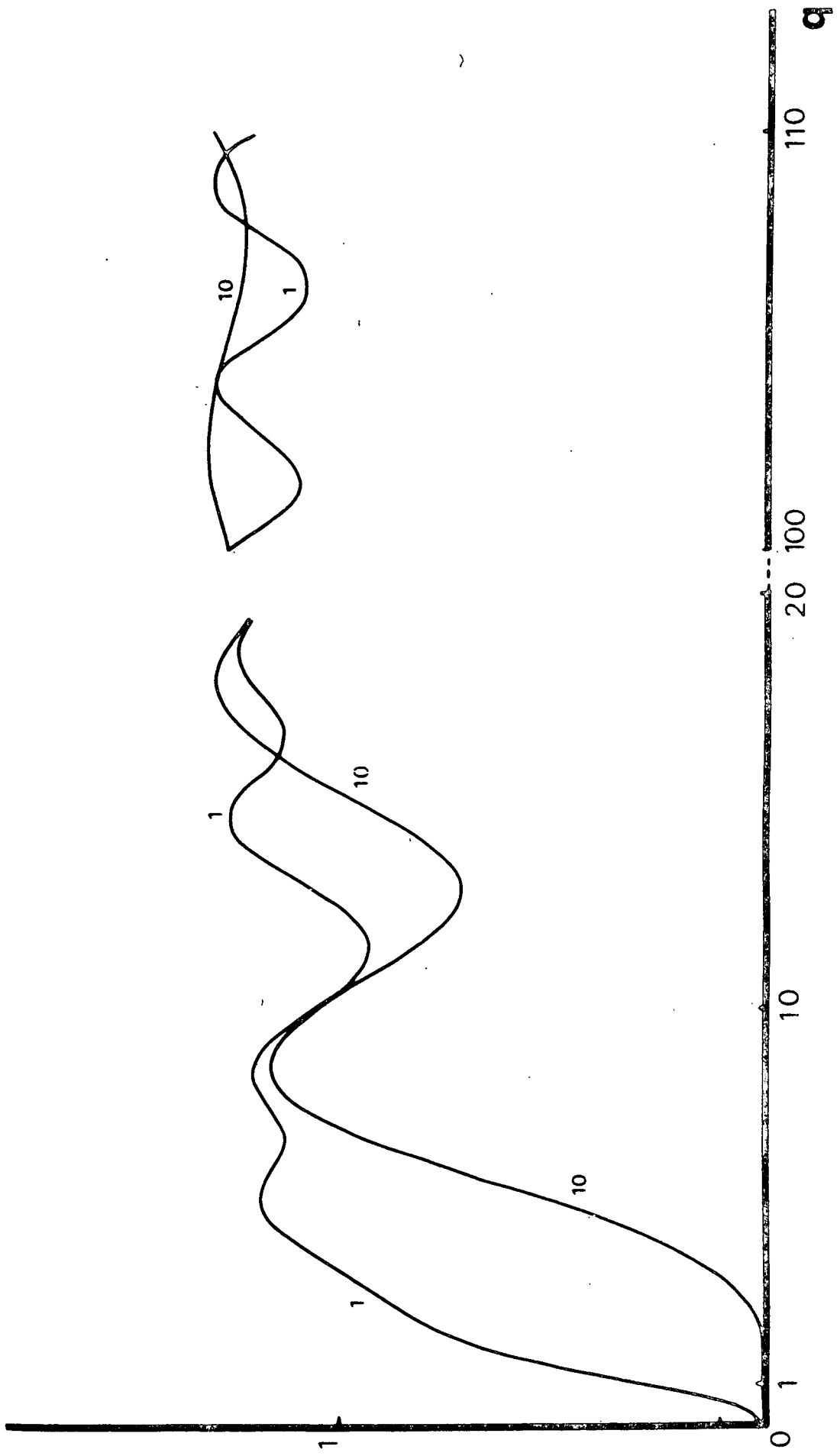
Ces coefficients sont représentés en coordonnées semi-logarithmiques. La décroissance des taux de transfert en fonction de l'écart d'énergie est donc sensiblement exponentielle.

Figure 12 - Comparaison des variations des coefficients $\alpha\beta H^k(1)$ réduits à leurs valeurs en $\tau = 0$, à celles obtenues dans la référence (9).
 valeurs exactes (courbe en traits pleins) ; orientation (a) ; alignement (b) ; élargissement optique (c) ; population (d) ; valeurs de la référence (9) (courbes en pointillés) ; alignement et orientation (f) ; élargissement optique (h) ; population (e).

Cette approximation est donc mauvaise dans le cas de la population.

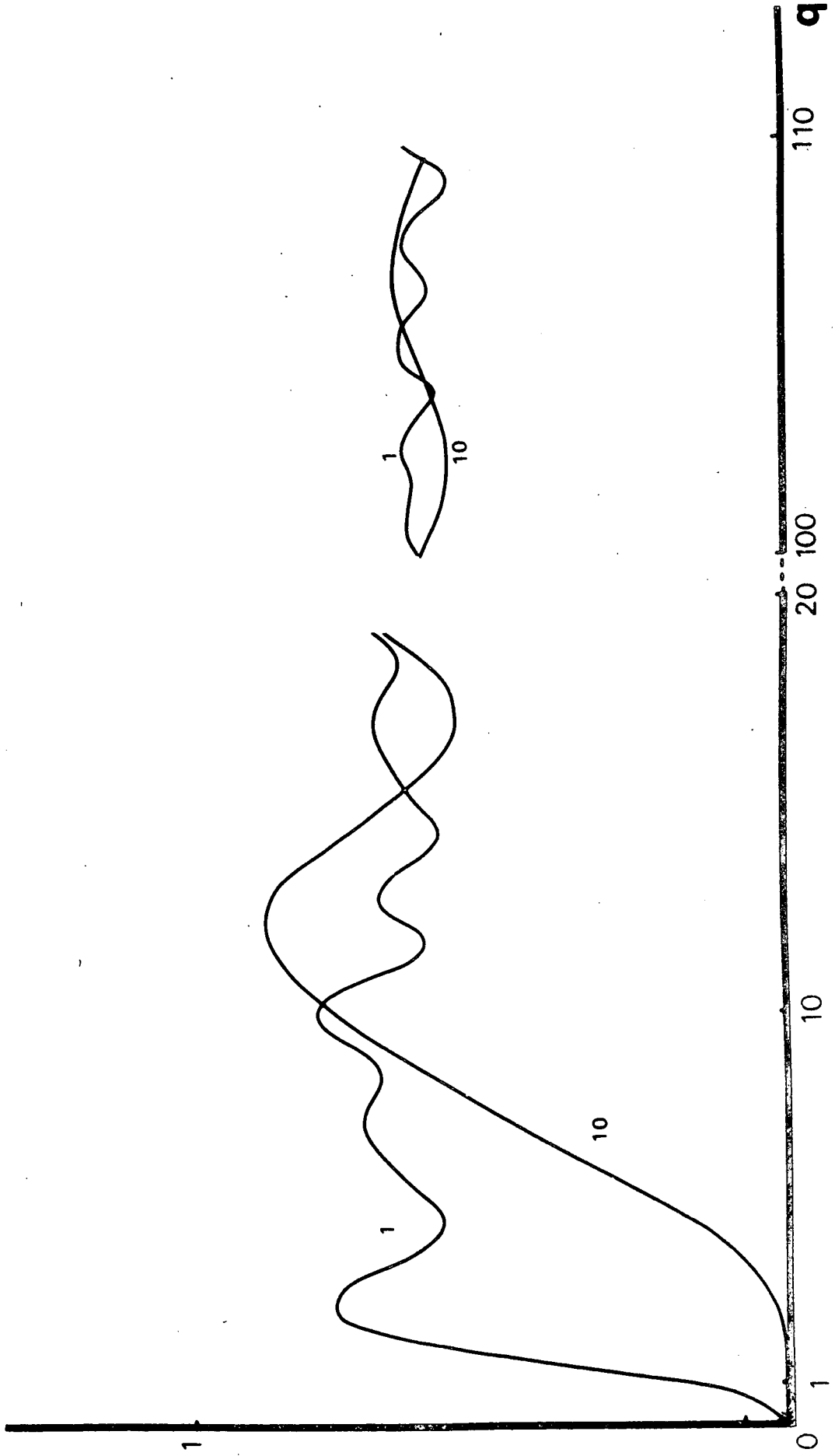


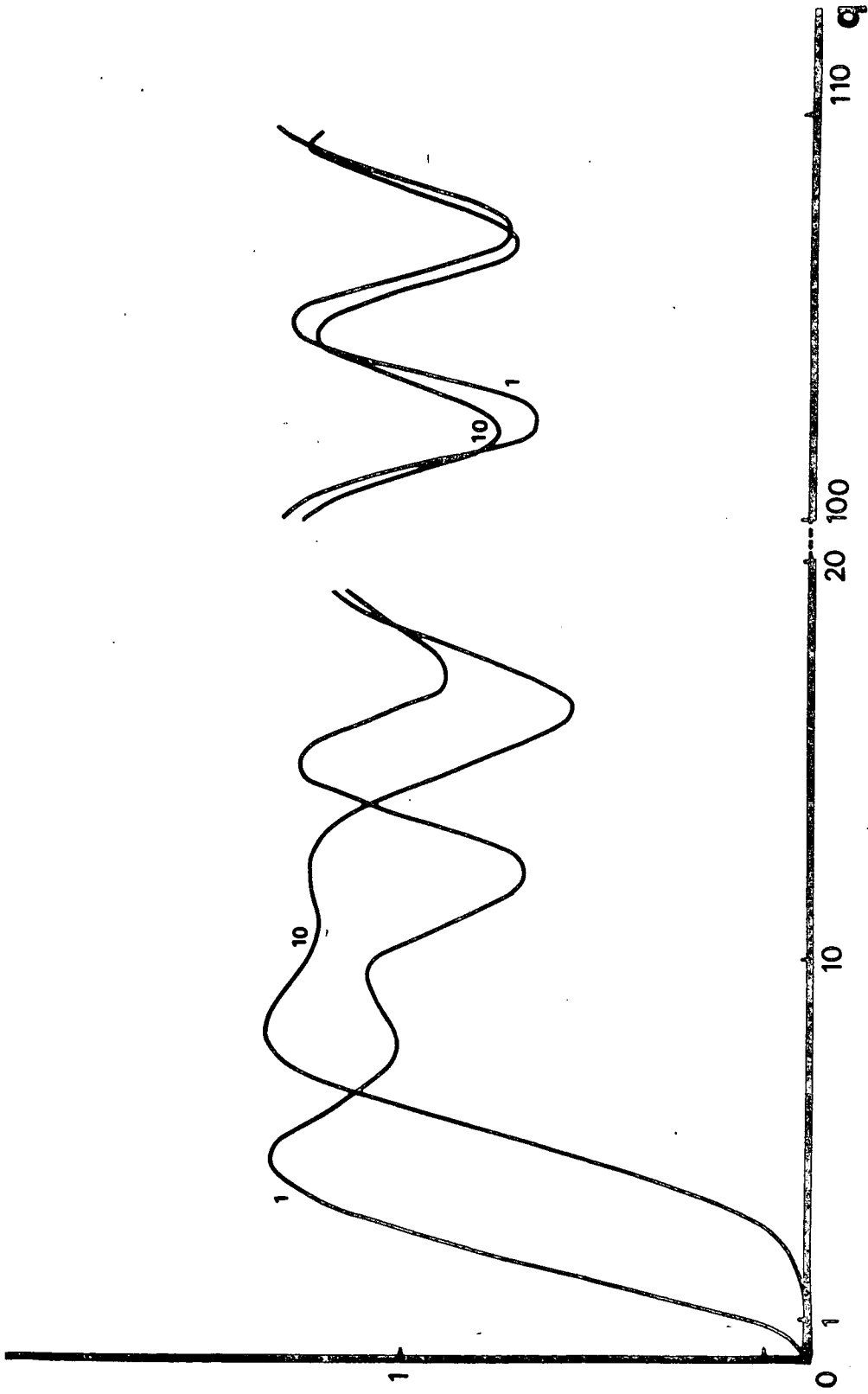
V/FIG 1



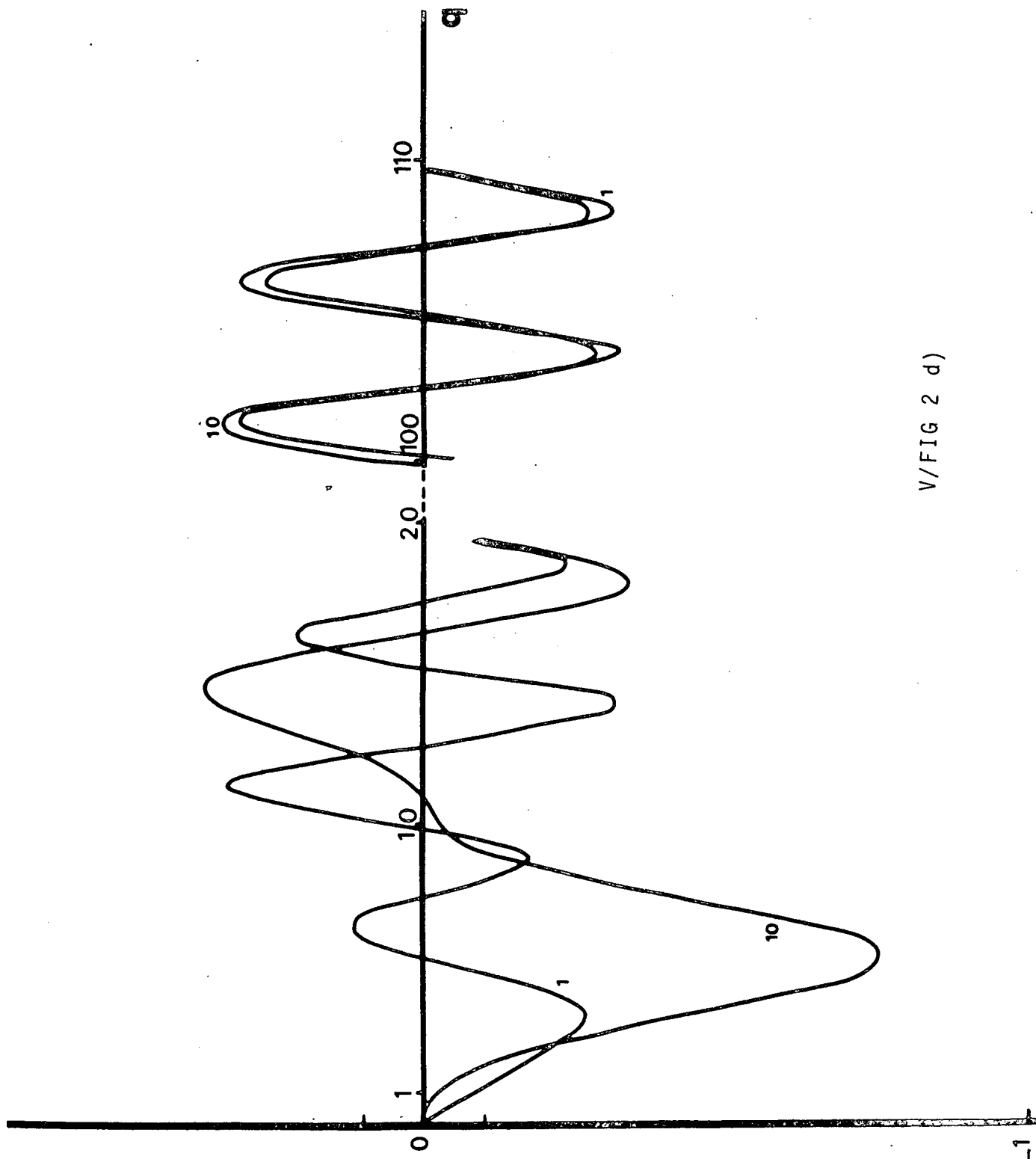
V/FIG2 a)

V/FIG 2 b)

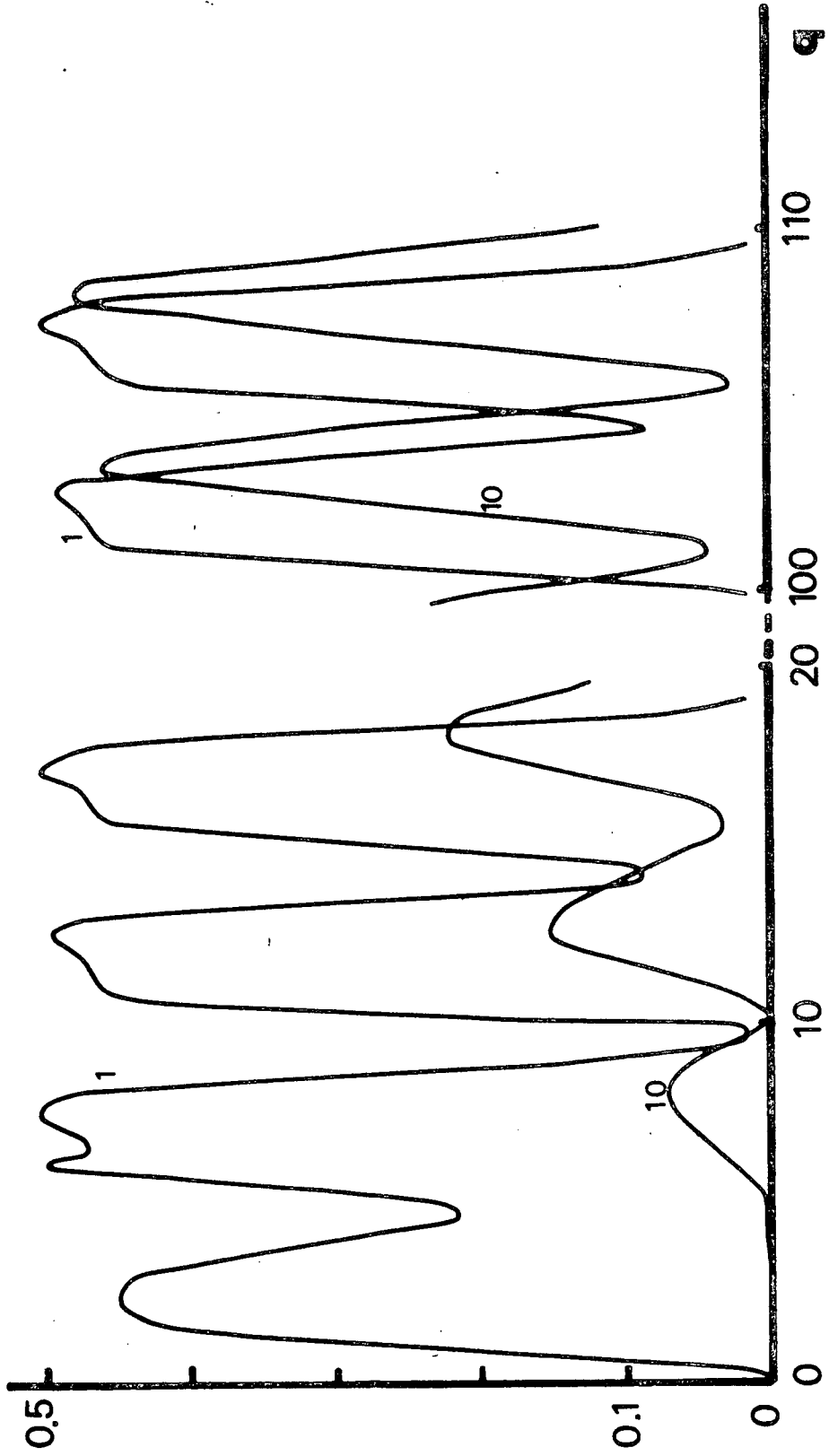




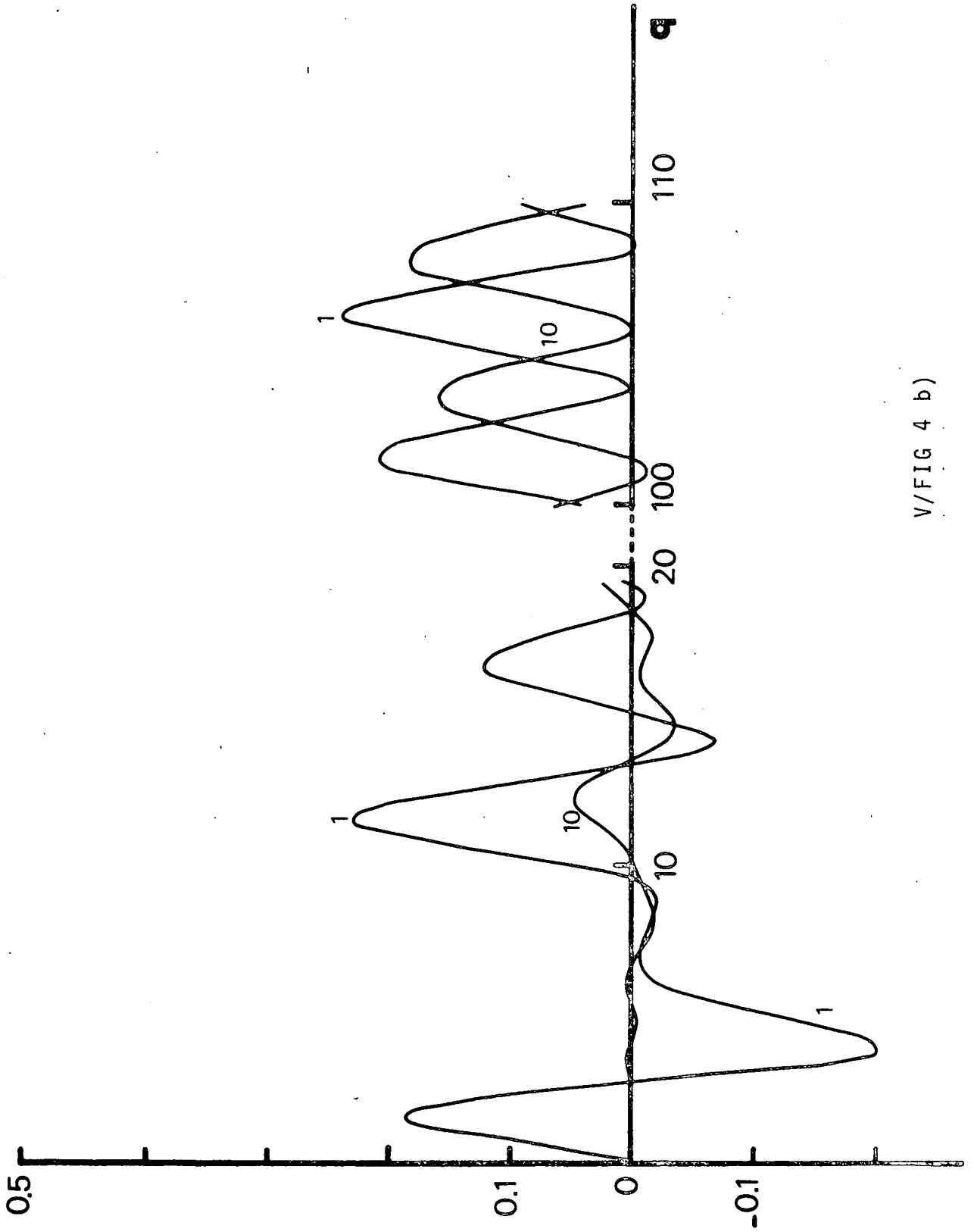
V/FIG 2 c)



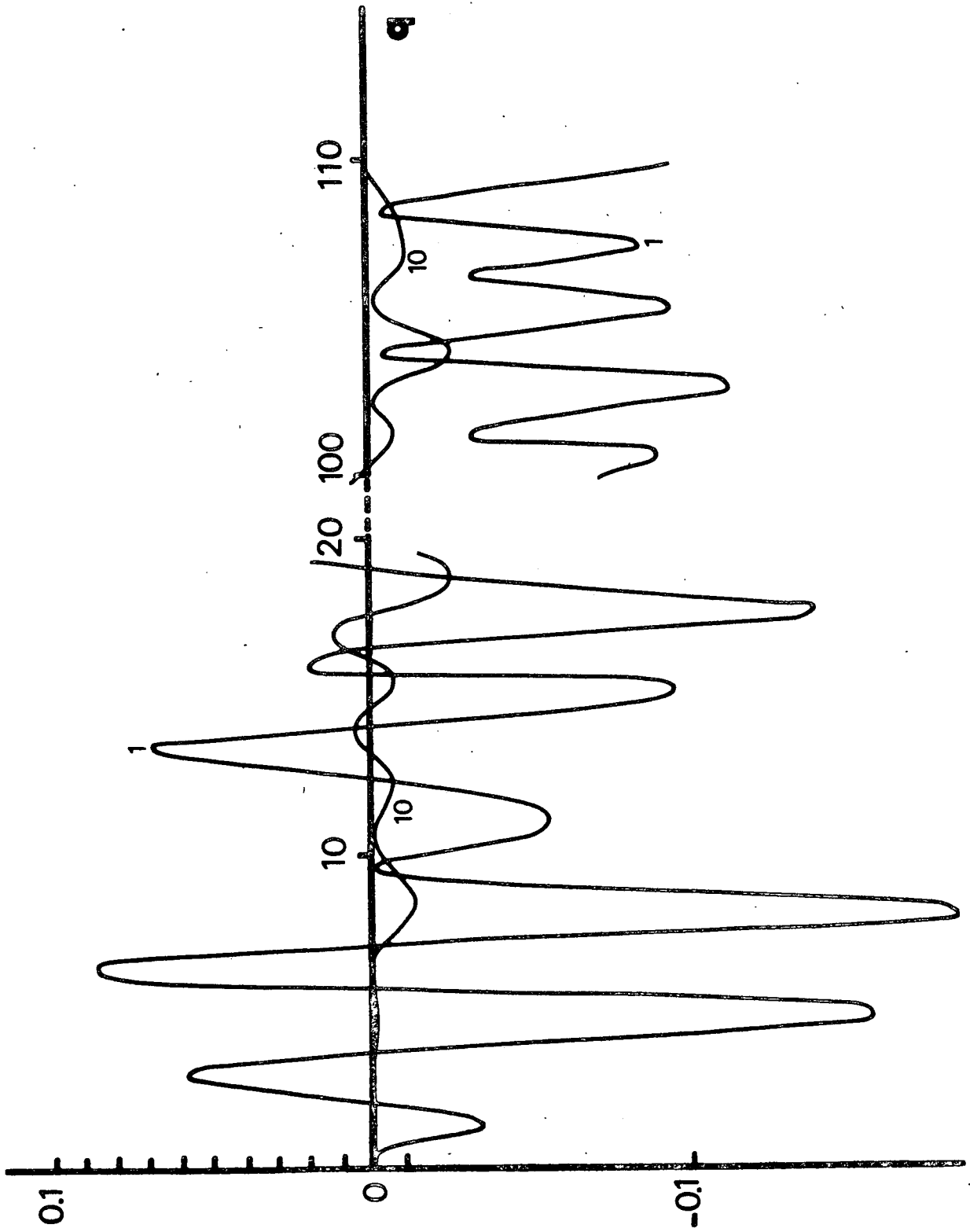
V/FIG 2 d)



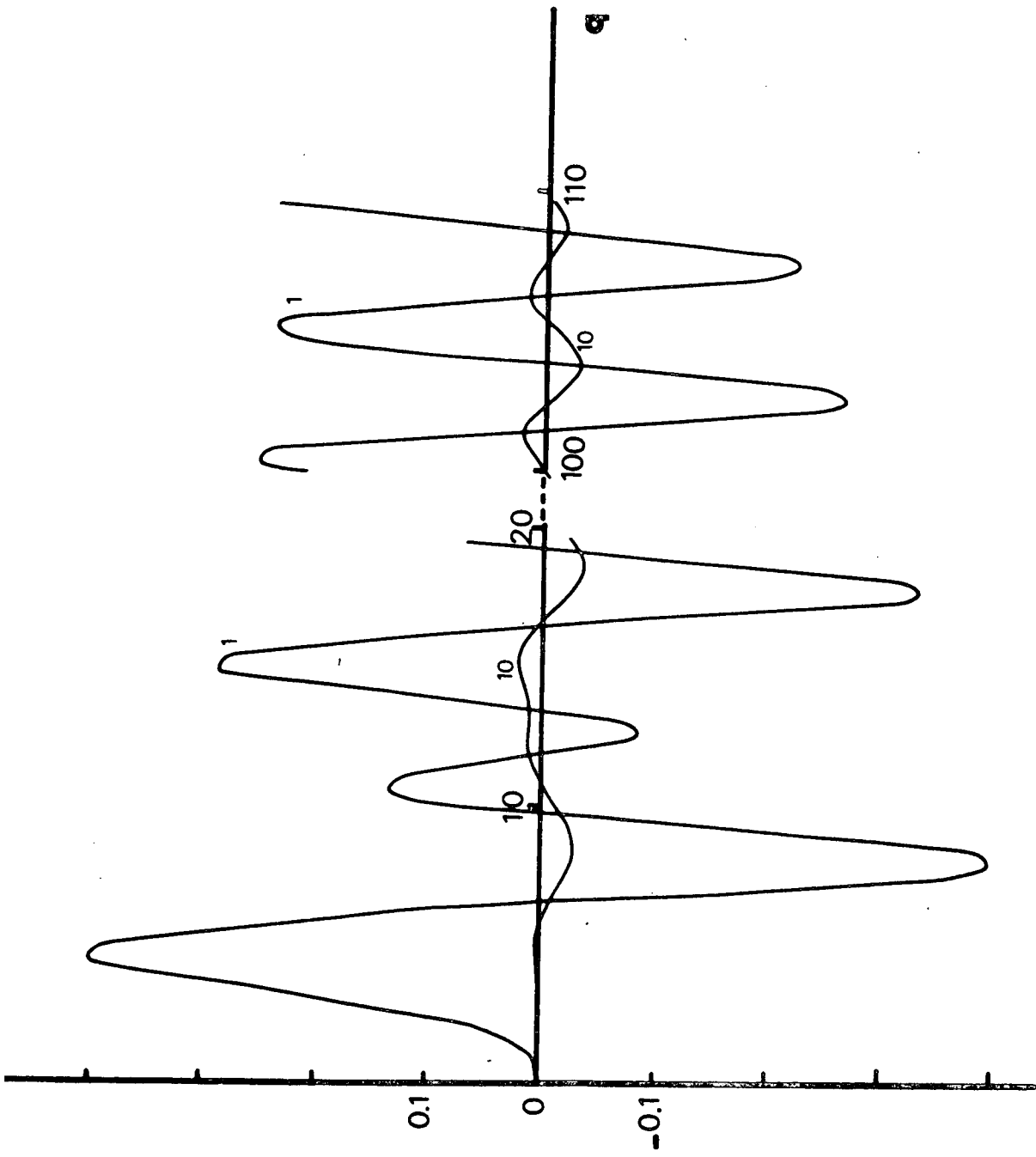
V/FIG 4 a)



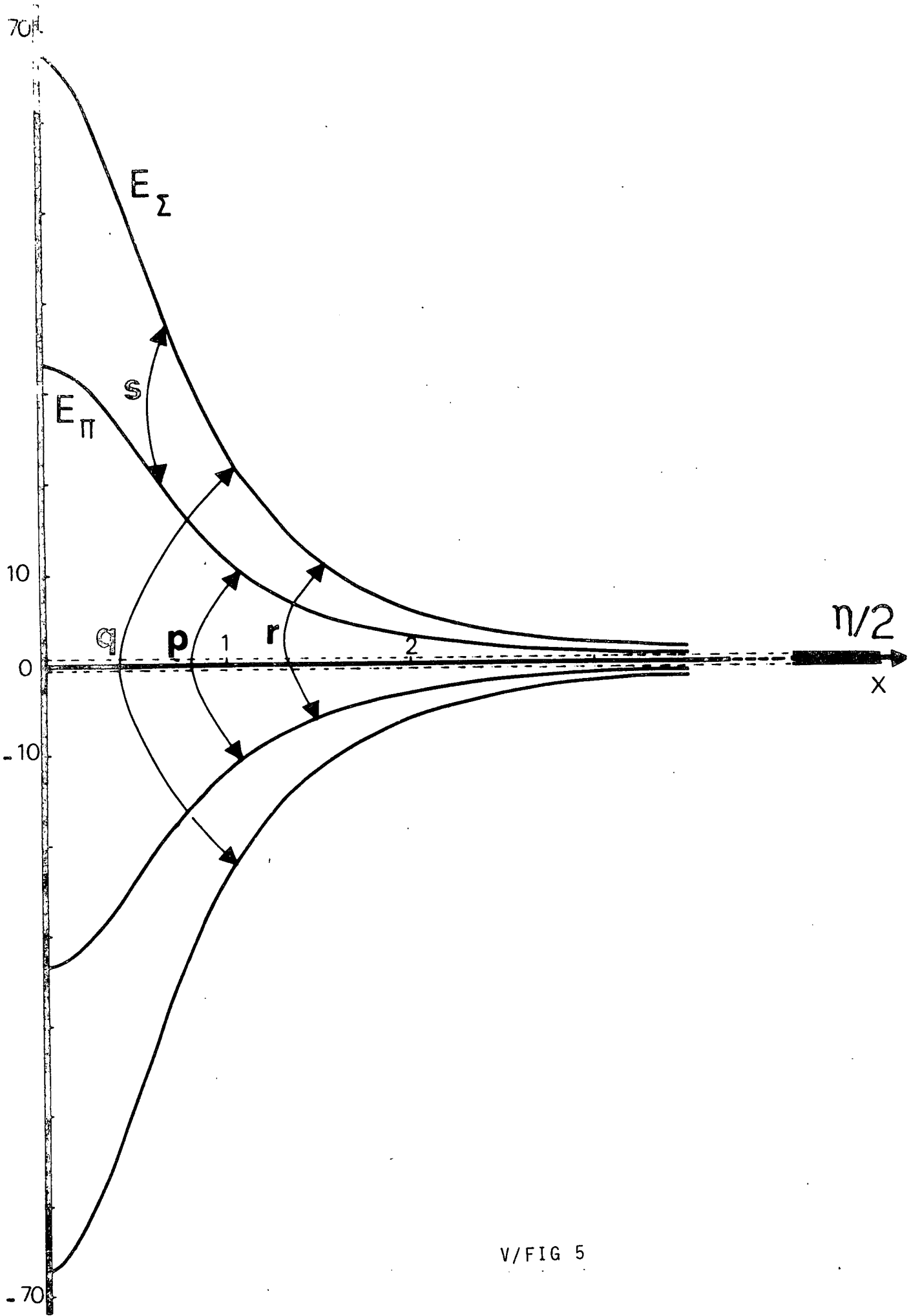
V/FIG 4 b)



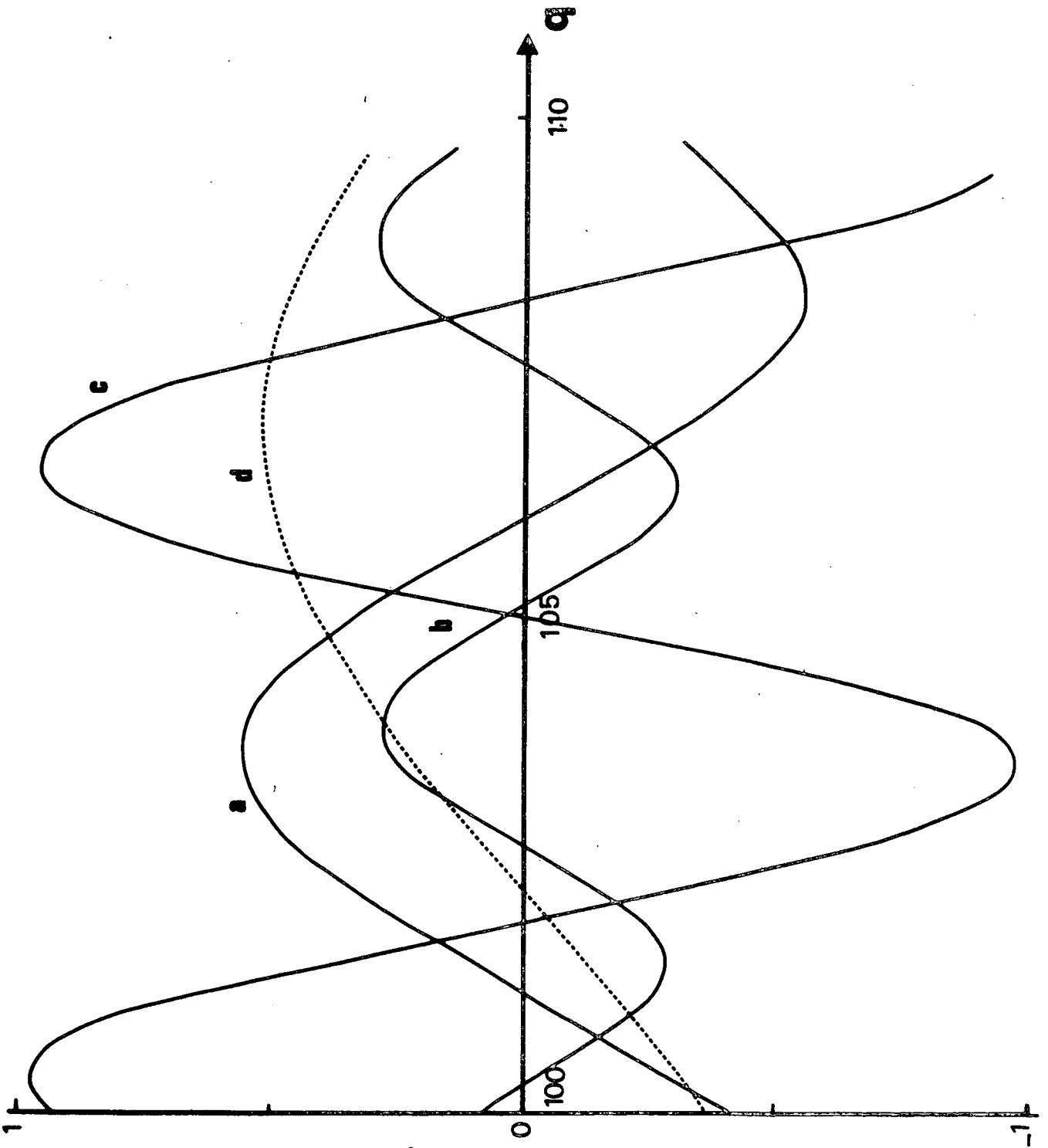
V/FIG 4 c)



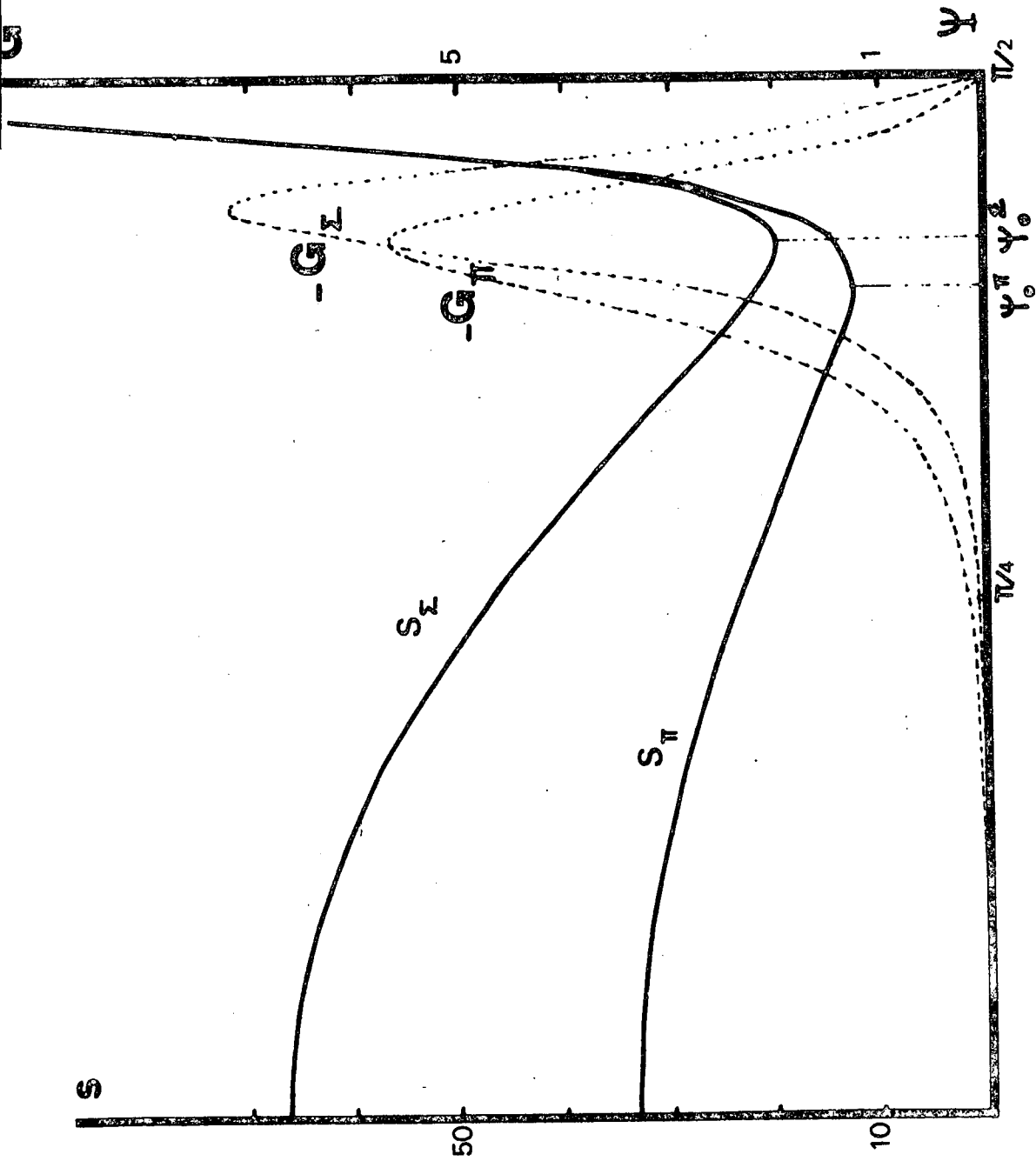
V/FIG 4 d)



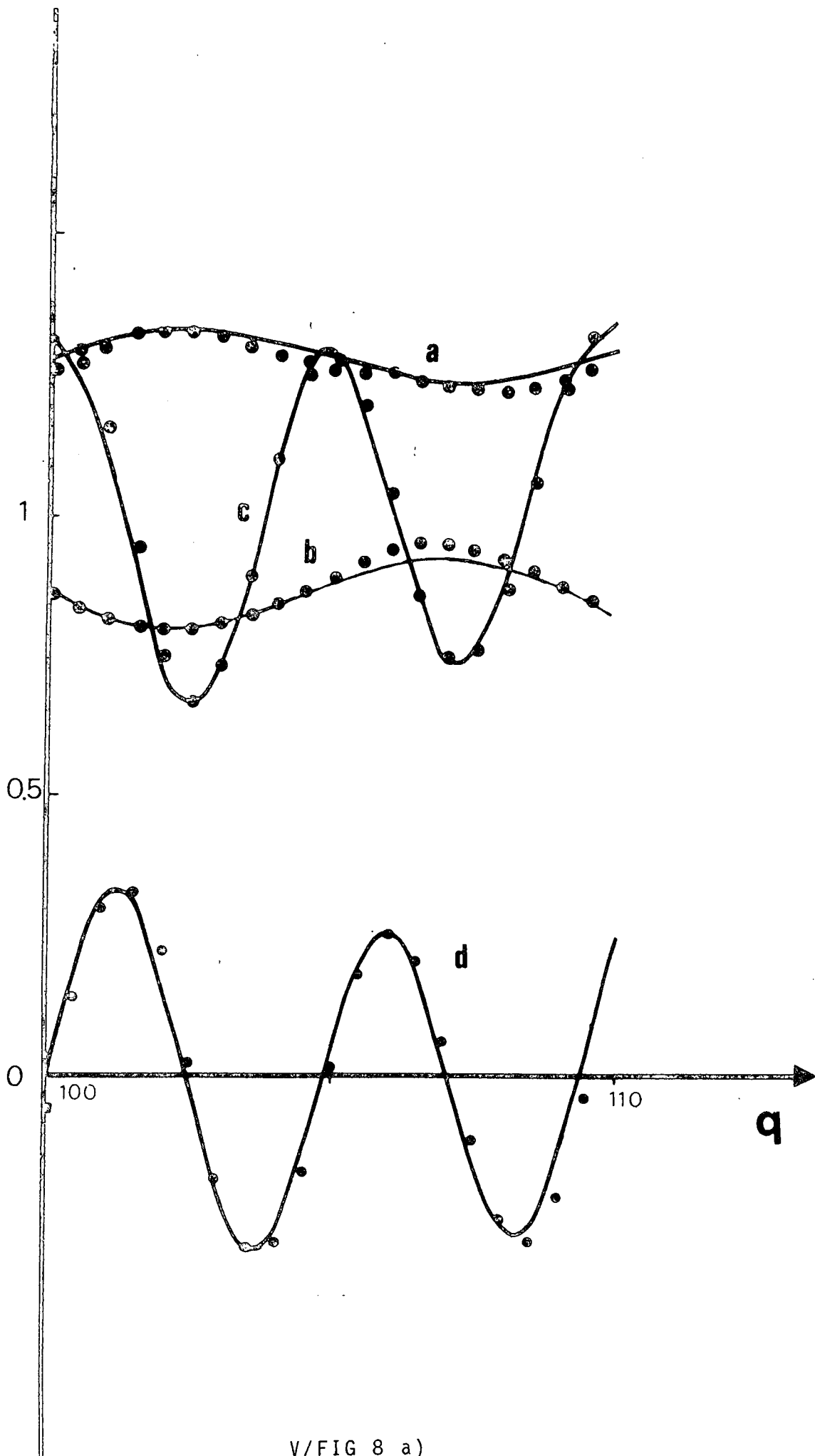
V/FIG 5



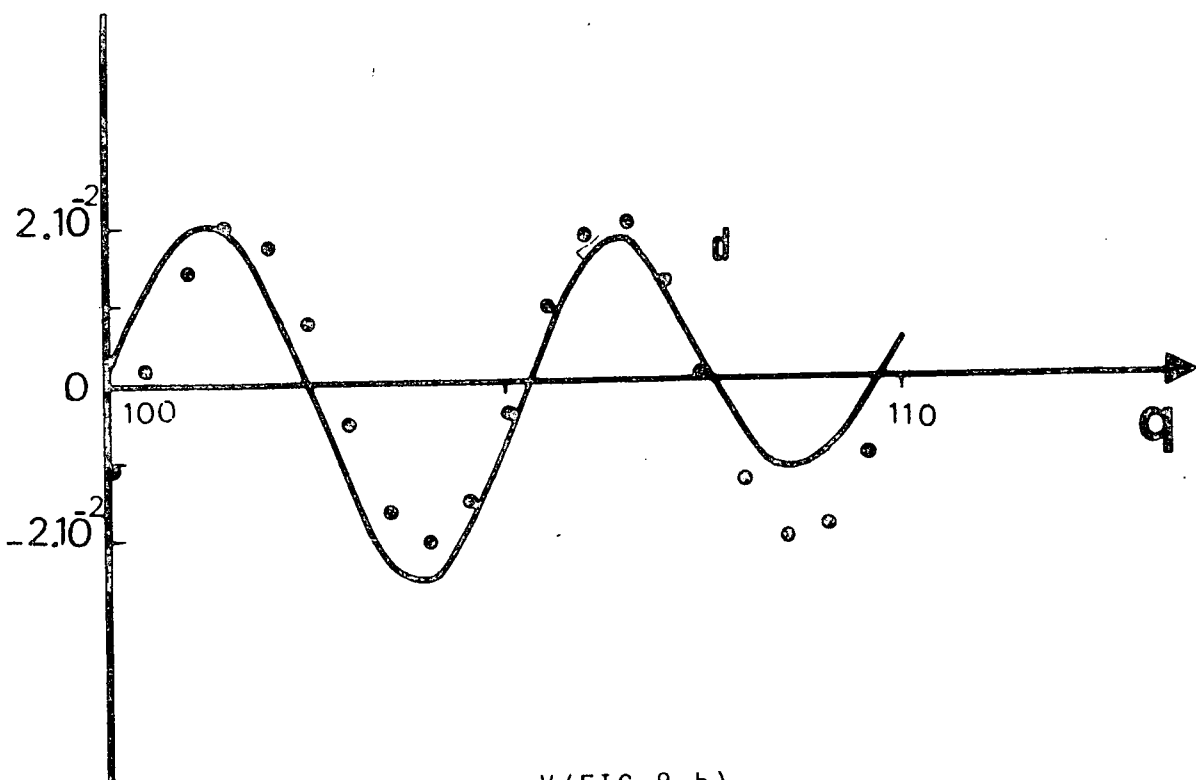
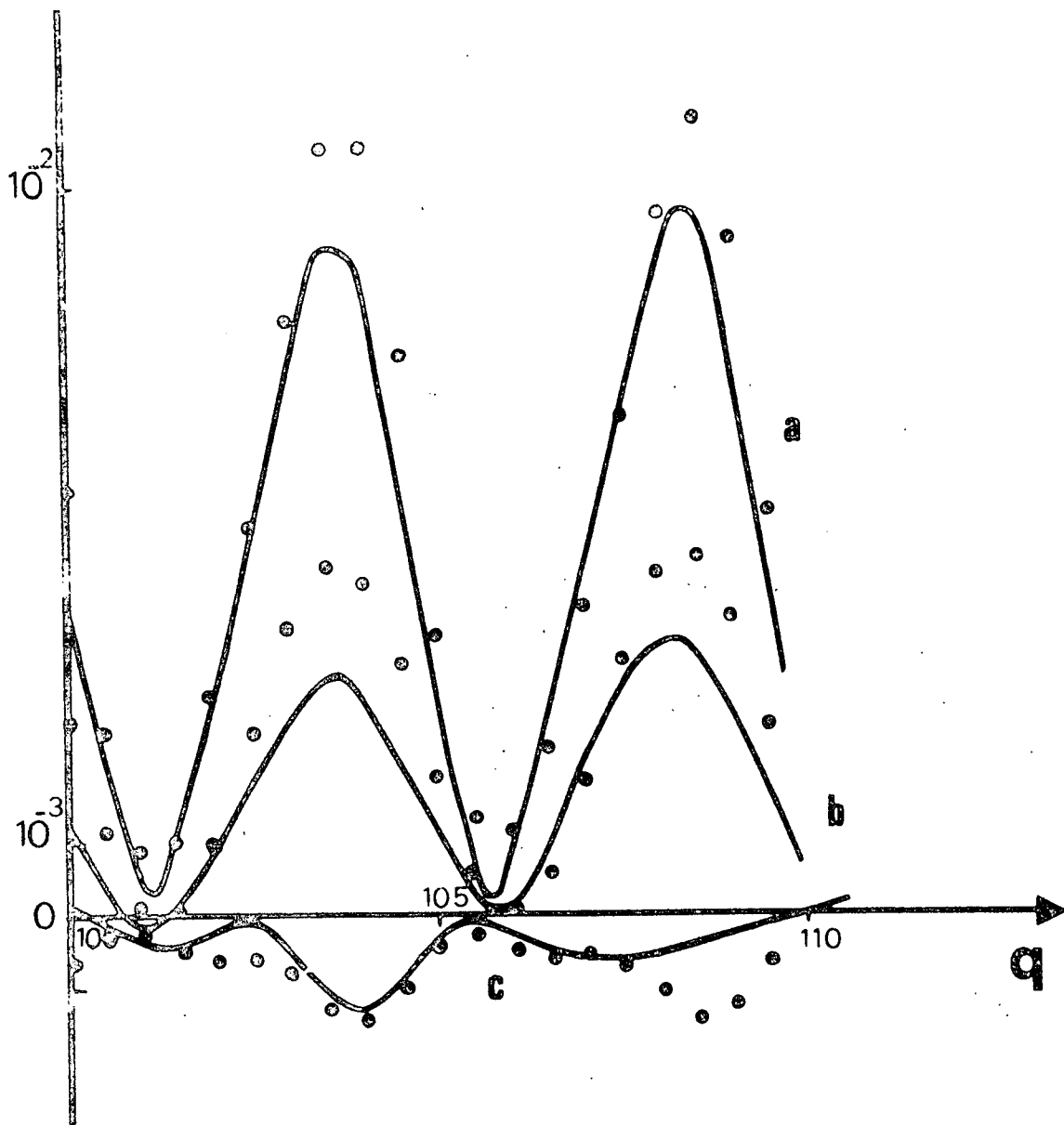
V/FIG 6



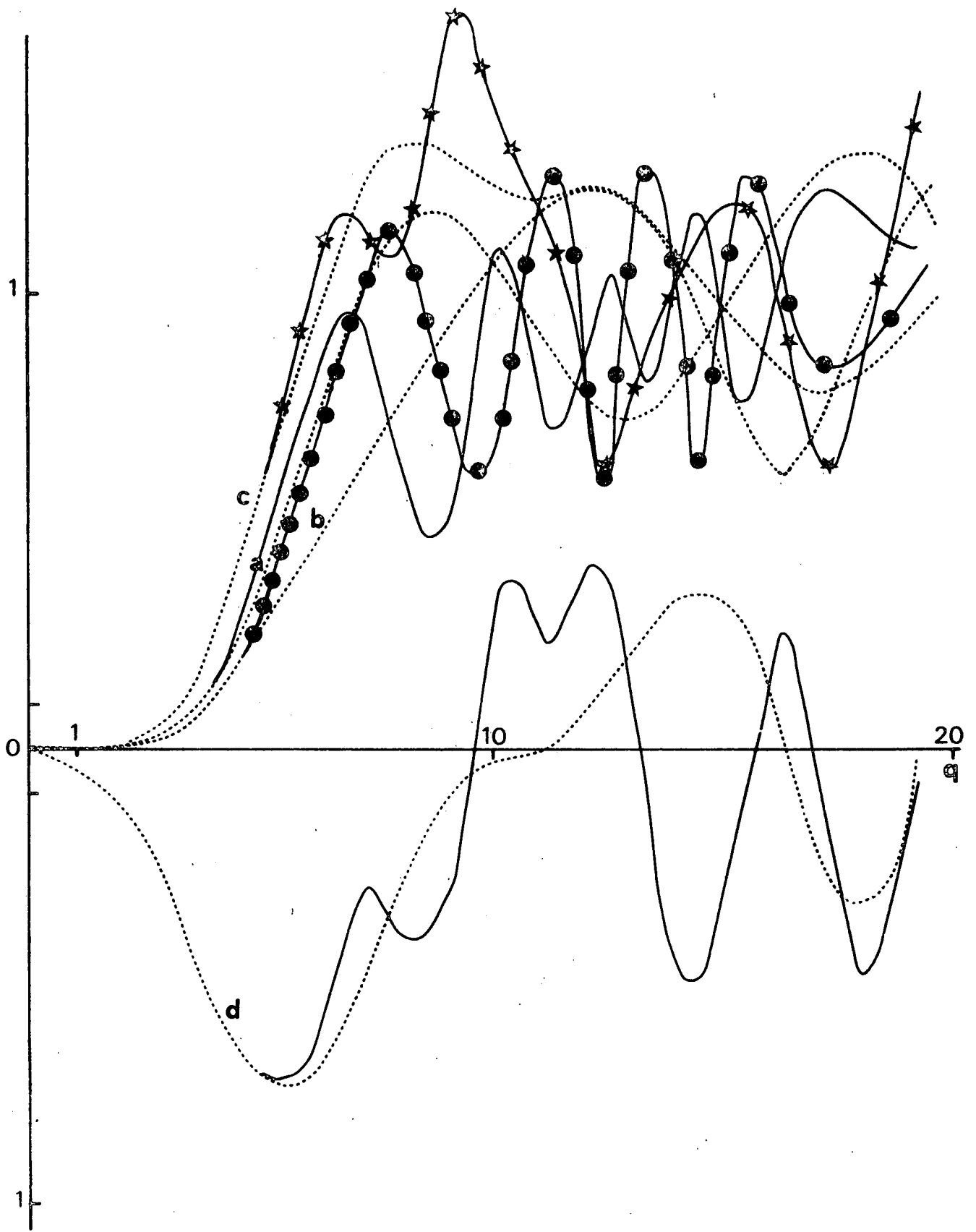
V/FIG 7



V/FIG 8 a)

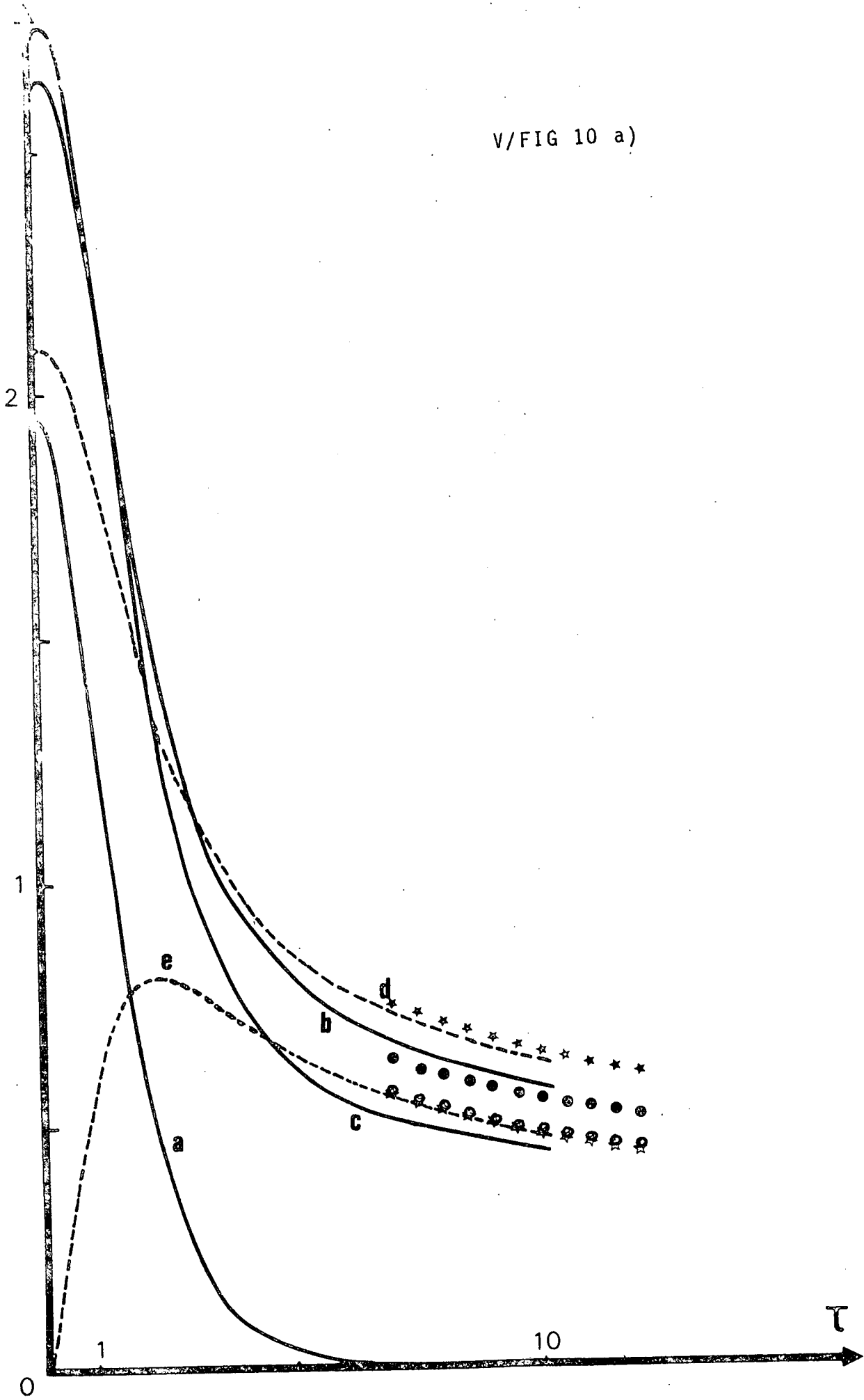


V/FIG 8 b)

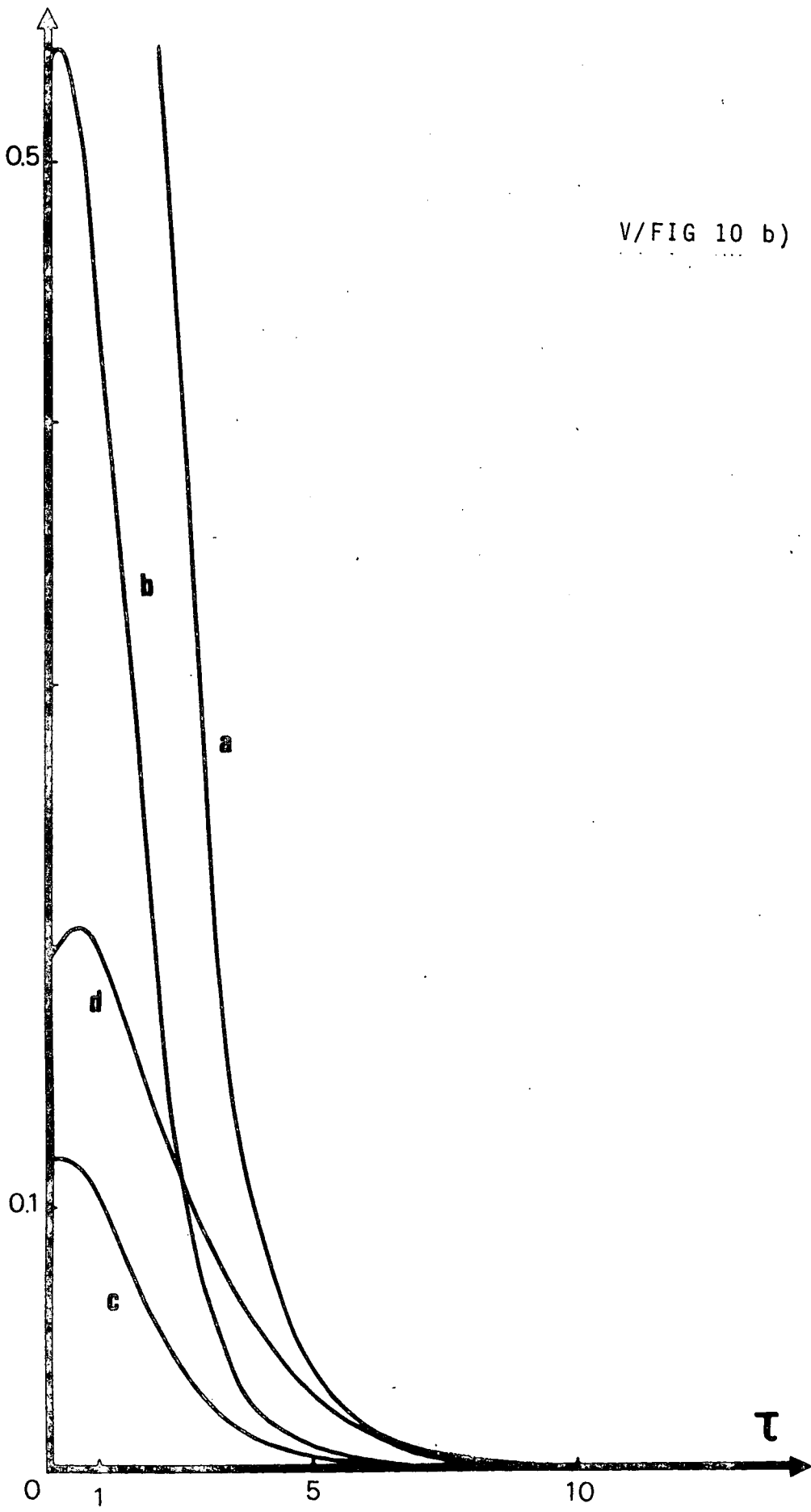


V/FIG 9

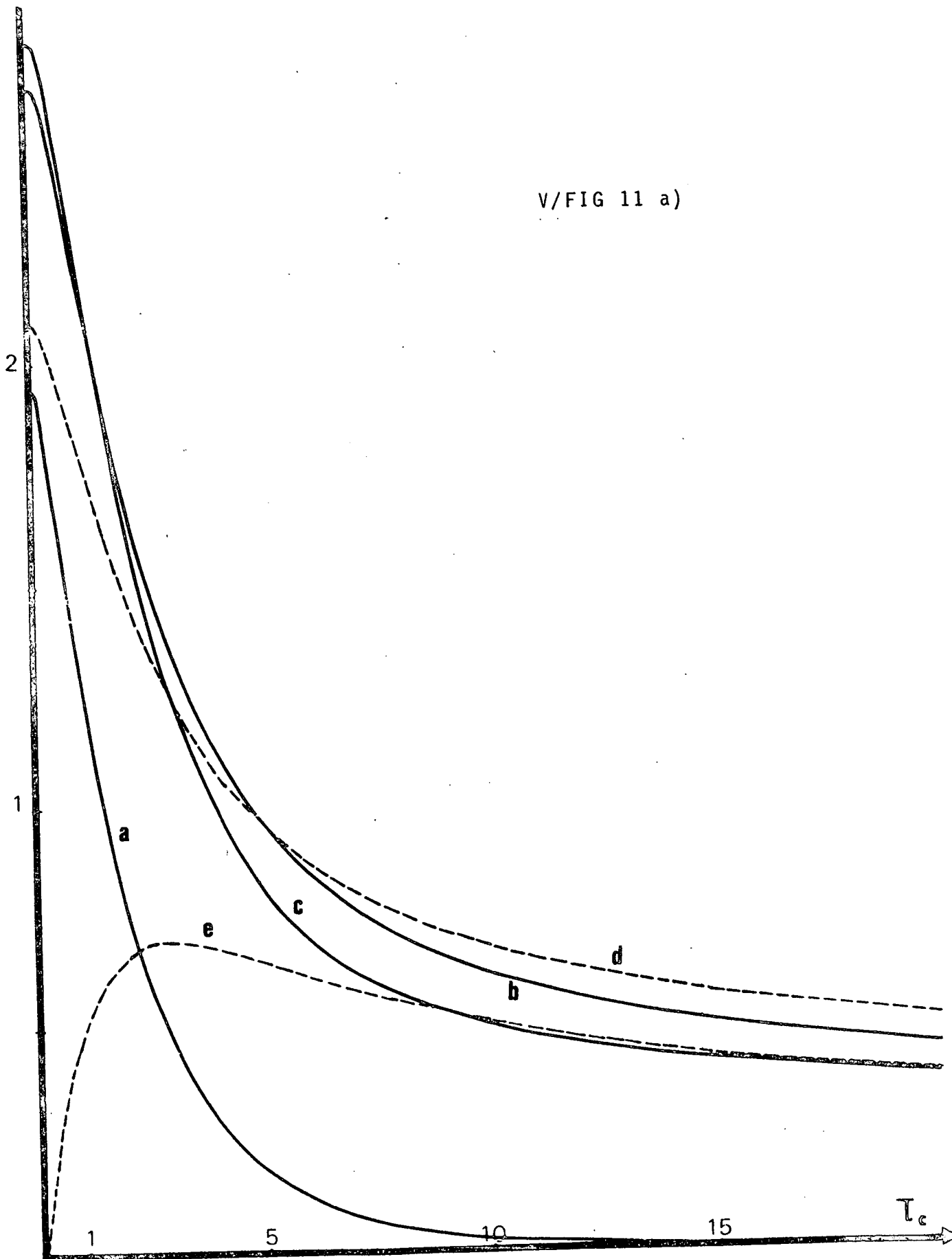
V/FIG 10 a)



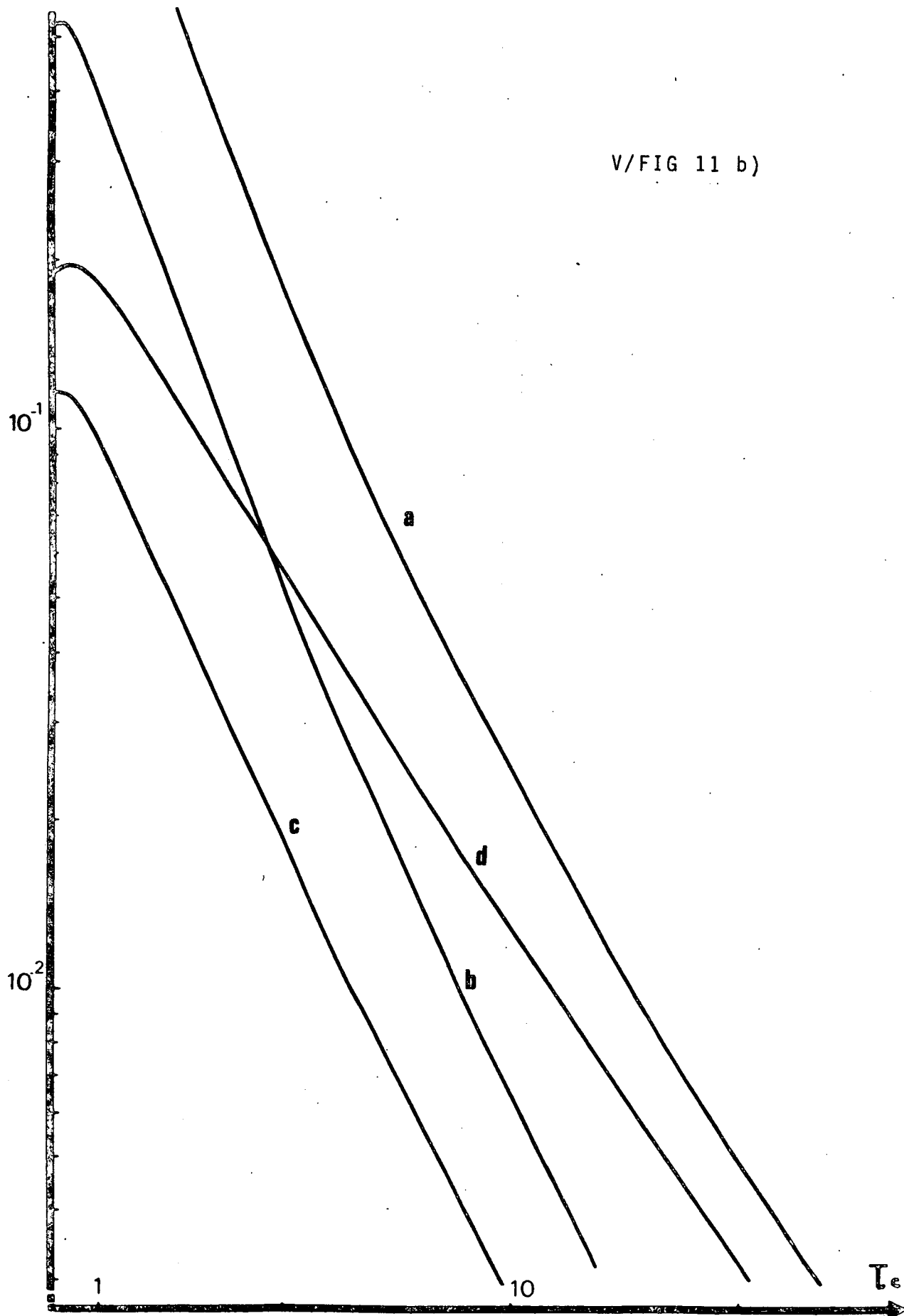
V/FIG 10 b)

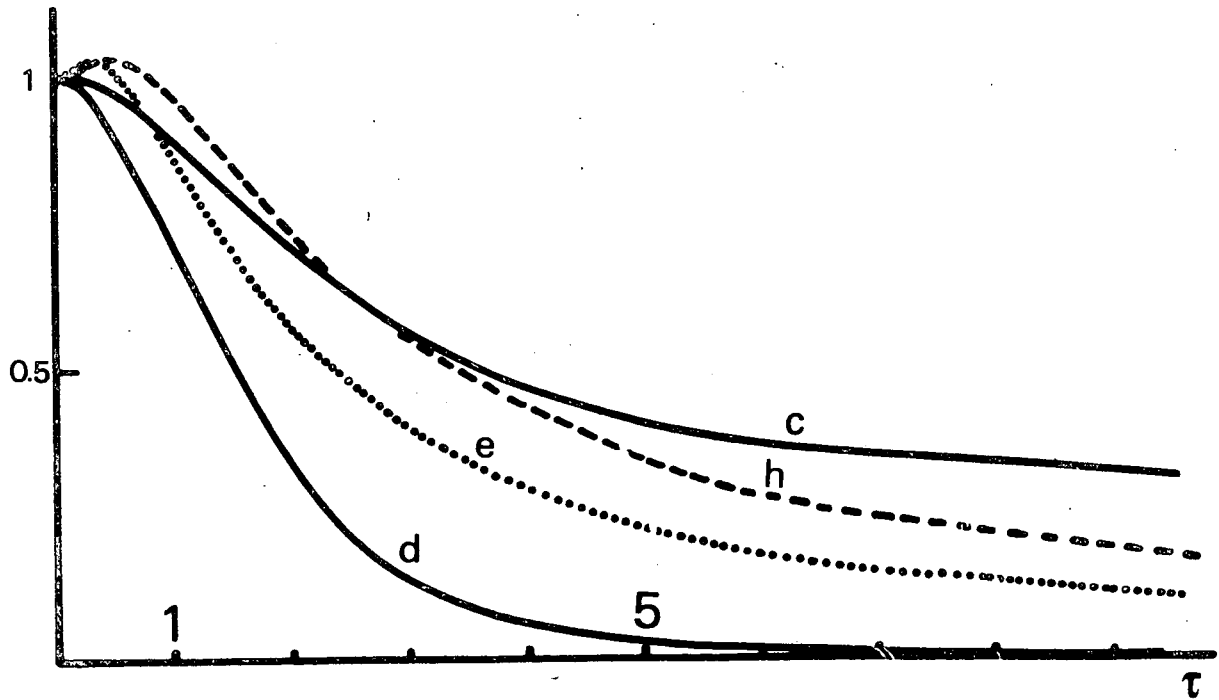
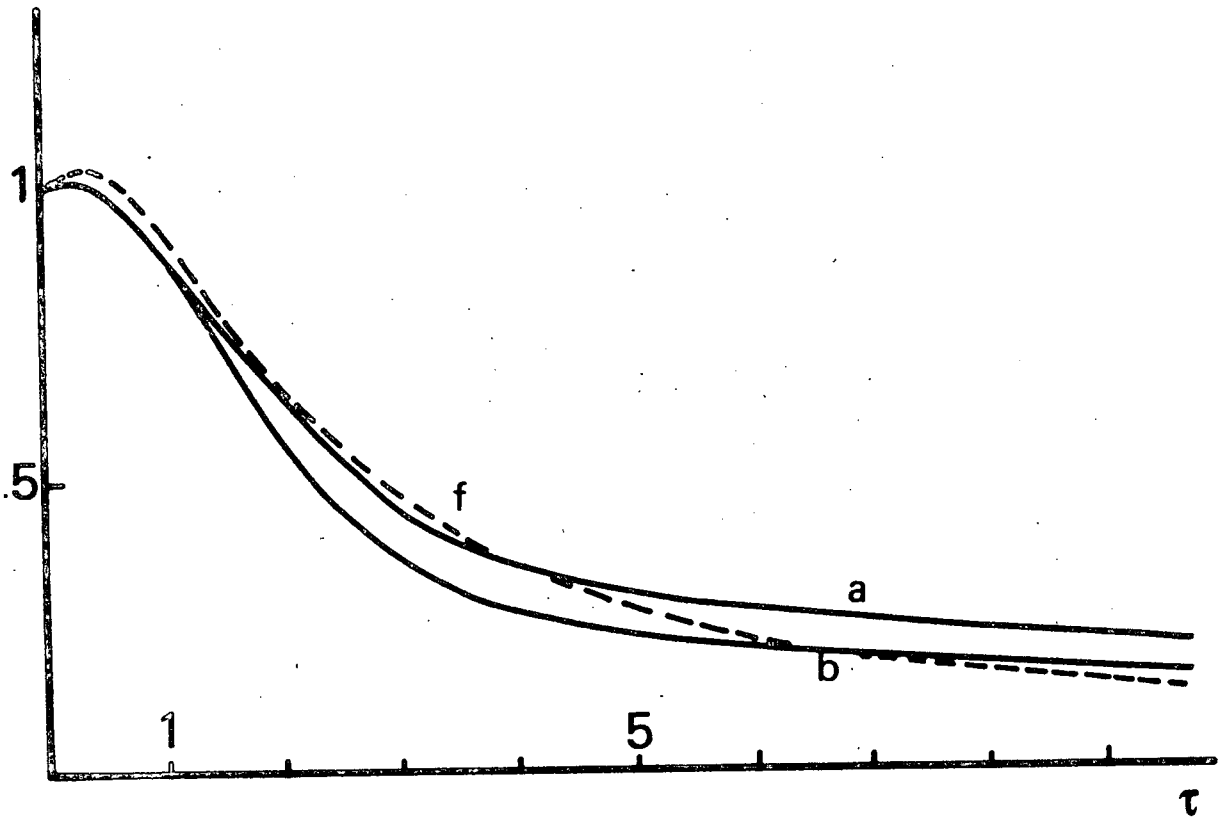


V/FIG 11 a)



V/FIG 11 b)





V/FIG 12

LEGENDE DES TABLEAUX

- Tableau 1* - Valeurs des coefficients $_{\alpha\beta}K^k(i)$ proportionnels aux taux de relaxation $_{\alpha\beta}g^k(i)$ (Eq. 33) en fonction de τ proportionnel à l'écart d'énergie ΔE à vitesse relative fixée. La précision du calcul étant de l'ordre de 10^{-3} un certain nombre de valeurs concernant les taux de transfert ne sont données qu'à titre indicatif (pour $\tau > 7$ en particulier).
- Tableau 2* - Valeurs en fonction de τ_c des coefficients $_{\alpha\beta}H^k(i)$ proportionnels aux taux de relaxation moyennés sur les vitesses (Eq. 41). τ_c est directement proportionnel à l'écart d'énergie ΔE et dépend de la température de la vapeur par l'intermédiaire de la vitesse relative la plus probable u . Les valeurs des coefficients de transfert pour τ_c supérieur à 7 ne sont données qu'à titre indicatif car notre modèle suppose que pour τ supérieur à 10 ces coefficients sont nuls ce qui n'est vrai qu'à quelques 10^{-4} près.
- Tableau 3* - Valeurs de τ_c pour les transitions $2537 \overset{\circ}{\text{Å}}$ et $1849 \overset{\circ}{\text{Å}}$ du Mercure. La première colonne donne les couples d'isotopes considérés, les deuxième et quatrième colonnes, la valeur des déplacements isotopiques pour chaque raie, les troisième et cinquième colonnes les valeurs de τ_c correspondantes ($T = 300 \text{ }^\circ\text{K}$).
- Tableau 4* - Tabulation de la fonction $\Phi(\tau)$ définie par la formule (45) (d'après OMONT).

TABLEAU 1

$eeK^0(1)$	$eeK^1(1)$	$eeK^2(1)$	$R_{(efK^1(1))}$	$J_m(efK^1(1))$	$eeK^1(2)$	$eeK^2(2)$	$efK^1(2)$	$\tau = \Delta E / \Delta E_a$
1.940	2.614	2.712	2.086	0	0.528	-0.116	0.190	0
1.934	2.650	2.752	2.095	-0.113	0.545	-0.119	0.199	0.2
1.839	2.626	2.728	2.073	-0.239	0.532	-0.119	0.206	0.4
1.705	2.584	2.655	2.032	-0.358	0.506	-0.116	0.208	0.6
1.549	2.468	2.535	1.973	-0.466	0.471	-0.112	0.205	0.8
1.381	2.350	2.307	1.902	-0.561	0.428	-0.106	0.198	1
0.959	1.977	1.939	1.683	-0.727	0.300	-0.083	0.173	1.5
0.628	1.630	1.527	1.469	-0.794	0.190	-0.059	0.143	2
0.389	1.369	1.223	1.297	-0.802	0.116	-0.040	0.115	2.5
0.241	1.170	0.987	1.157	-0.781	0.069	-0.027	0.090	3
0.148	1.022	0.832	1.048	-0.756	0.041	-0.018	0.069	3.5
0.092	0.927	0.733	0.971	-0.721	0.024	-0.011	0.052	4
0.036	0.805	0.616	0.859	-0.648	0.008	-0.005	0.028	5
0.015	0.721	0.541	0.781	-0.597	0.003	-0.002	0.016	6
0.007	0.673	0.507	0.731	-0.555	0.001	-0.001	0.007	7
0.004	0.526	0.470	0.684	-0.520			0.002	8
0.001	0.572	0.435	0.625	-0.473				10

TABLEAU 2

$ee^H(1)$	$ee^H(1)$	$ee^H(1)$	$\mathcal{G}(ef^H(1))$	$\mathcal{I}_m(ef^H(1))$	$ee^H(2)$	$ee^H(2)$	$ef^H(2)$	$\tau_c = \Delta E / \Delta E_c$
1.940	2.614	2.712	2.086	0.	0.528	-0.116	0.190	0.
1.877	2.613	2.708	2.072	-0.146	0.530	-0.117	0.196	0.2
1.736	2.533	2.615	2.018	-0.269	0.501	-0.113	0.198	0.4
1.583	2.429	2.491	1.950	-0.368	0.465	-0.108	0.194	0.6
1.434	2.315	2.356	1.878	-0.447	0.427	-0.101	0.187	0.8
1.295	2.200	2.219	1.805	-0.509	0.389	-0.094	0.180	1
1.000	1.929	1.90	1.632	-0.611	0.304	-0.078	0.158	1.5
0.770	1.697	1.63	1.481	-0.664	0.236	-0.064	0.137	2
0.463	1.347	1.234	1.246	-0.692	0.141	-0.042	0.101	3
0.285	1.115	0.979	1.080	-0.676	0.086	-0.027	0.074	4
0.180	0.956	0.813	0.962	-0.647	0.053	-0.018	0.055	5
0.117	0.845	0.702	0.874	-0.614	0.034	-0.012	0.041	6
0.077	0.765	0.625	0.808	-0.583	0.022	-0.008	0.030	7
0.052	0.704	0.571	0.756	-0.555	0.014	-0.006	0.023	8
0.036	0.656	0.531	0.715	-0.530	0.010	-0.004	0.017	9
0.025	0.618	0.500	0.681	-0.508	0.007	-0.003	0.013	10
	0.435	0.374	0.506	-0.379				20

TABLEAU 3

A* - B	$\Delta E(^3P_1)$ Ghz	$\tau_c \ 6^3P_1$		$\Delta E(^1P_1)$ Ghz	$\tau_c \ 6^1P_1$
198-200	4,7	0,23		4,3	1,23
198-202	10,2	0,50		9,3	2,64
198-204	15,6	0,76		14	4
200-202	5,5	0,27		5	1,43
200-204	10,9	0,53		9,7	2,77
202-204	5,4	0,26		4,7	1,34

TABLEAU 4

$x \cdot [f_1(x)]^{-1/4}$	x	$f_1(x)$	$F_1(x)$	$\Phi(\tau)$
0	0	0	1	1
0,1	0,1	1,01	1,02	1,010
0,199	0,2	1,02	1,05	1,025
0,296	0,3	1,05	1,07	1,034
0,393	0,4	1,07	1,08	1,039
0,488	0,5	1,10	1,07	1,035
0,582	0,6	1,13	1,05	1,025
0,676	0,7	1,15	1,02	1,012
0,771	0,8	1,16	0,974	0,991
0,867	0,9	1,16	0,924	0,967
0,964	1	1,16	0,869	0,942
1,065	1,1	1,14	0,811	0,914
1,169	1,2	1,11	0,750	0,883
1,275	1,3	1,08	0,690	0,852
1,386	1,4	1,04	0,631	0,819
1,502	1,5	0,994	0,574	0,786
1,623	1,6	0,945	0,519	0,753
1,749	1,7	0,892	0,467	0,719
1,882	1,8	0,837	0,419	0,686
2,020	1,9	0,782	0,374	0,654
2,167	2	0,726	0,333	0,621
2,319	2,1	0,672	0,296	0,590
2,481	2,2	0,618	0,262	0,560
2,651	2,3	0,567	0,231	0,530
2,829	2,4	0,518	0,203	0,501
3,018	2,5	0,471	0,178	0,473
3,216	2,6	0,427	0,156	0,446
3,425	2,7	0,386	0,136	0,420
3,646	2,8	0,348	0,119	0,396
3,877	2,9	0,313	0,103	0,372
4,120	3,0	0,281	0,0898	0,350
4,380	3,1	0,251	0,0780	0,328
4,641	3,2	0,224	0,0675	0,308
4,941	3,3	0,199	0,0584	0,289
5,242	3,4	0,177	0,0504	0,270
5,560	3,5	0,157	0,0434	0,253
5,896	3,6	0,139	0,0374	0,237
6,261	3,7	0,122	0,0374	0,221
6,629	3,8	0,108	0,026	0,206
7,030	3,9	0,0947	0,0237	0,192
7,448	4,0	0,0832	0,0203	0,179

7,888	4,1	0,073	0,0174	0,167
8,350	4,2	0,064	0,0149	0,156
8,847	4,3	0,0558	0,0127	0,145
9,366	4,4	0,0487	0,0109	0,135
9,911	4,5	0,0425	0,00927	0,126
10,488	4,6	0,0370	0,0079	0,117
11,095	4,7	0,0322	0,00673	0,108
11,745	4,8	0,0279	0,00573	0,101
12,423	4,9	0,0242	0,00487	0,093
13,135	5	0,0210	0,00414	0,087
17,34	5,5	$1,013 \cdot 10^{-2}$	$1,819 \cdot 10^{-3}$	0,0594
22,83	6	$4,772 \cdot 10^{-3}$	$7,872 \cdot 10^{-4}$	0,040
28,86	6,43	$2,465 \cdot 10^{-3}$	$3,8 \cdot 10^{-4}$	0,029

REFERENCES

- (¹) GAY J.C. et OMONT A. - J. Physique, 35, (1974) 9
- (²) 2a) OMONT A. - J. Physique, 26, (1965) 26
 2b) DIAKONOV M.I. et PEREL V.I. - JETP, 21, (1965) 227
 WATANABE T. - Phys. Rev., 138, (1965) A 1573
 VDOVIN Y.A. et GALITSKII - JETP, 25, (1967) 5
 BERMAN P.R. et LAMB W.E. - Phys. Rev., 187, (1969) 221
 CARRINGTON C.G., STACEY D.N. and COOPER J. - J. Phys., B 6, (1973) 417
- (³) OMONT A. - Thèse (Paris, 1967)
 OMONT A. et MEUNIER J. - Phys. Rev., 169, (1968) 92
- (⁴) OMONT A., HSIEH J.C. et BAIRD J.C. - Phys. Rev., 6, (1972) 152
- (⁵) CHERON B. et SAINTOUT L. - J. Physique, 32, (1971) 751
- (⁶) MEUNIER G. - Thèse 3e Cycle (Paris, 1975)
- (⁷) GAY J.C. - Abstracts of the VIIIth Intern. Conference on the Physics of Electronic and Atomic Collisions (BELGRADE, 1973)
- (⁸) GAY J.C. - en préparation
- (⁹) OMONT A. - Thèse (Paris, 1967) et communication privée
- (¹⁰) TSAO C.J. et CURNUTTE B. - JQRST, 2, (1962) 41
- (¹¹) FAROUX J.P. - Thèse (Paris, 1969)
- (¹²) ZAIDI H.R. - Can. J. Phys., 50, (1972) 1175
- (¹³) DASHEVSKAYA E.I., VORONIN A.I. and NIKITIN E.E. - Can. J. Phys., 47, (1969) 1237

- (14) DASHEVSKAYA E.I. - Chem. Phys. Letters, 11, (1971) 184
- (15) RABITZ H.A. et GORDON R.G. - J. Chem. Phys., 53, (1970) 1815 et 1831
- (16) DODSWORTH B.M. et OMONT A. - Phys. Rev. Letters, 24, (1970) 198
- (17) BUTAUX J. - Thèse (Paris, 1972)
- (18) LECLER D. - Thèse (Caen, 1969)
- (19) OMONT A. - Thèse 3e Cycle (Paris, 1961)

CONCLUSION

Les principaux résultats obtenus dans cette étude, et les extensions et prolongements possibles ont été dégagés dans les conclusions partielles à chacune des parties. Nous nous bornerons donc à rappeler les points les plus importants.

★ Sur le plan théorique

- Exploitation systématique des propriétés de symétrie de la matrice de collision et de la matrice de relaxation. Mise en évidence de l'anisotropie de la relaxation dans les collisions en champ magnétique intense.

- Traitement semi-classique à trajectoires rectilignes des collisions résonnantes en champ intense pour une transition $J = 1 \rightarrow J = 0$ (potentiel dipôle-dipôle en R^{-3}). Symétries générales de la relaxation. L'ensemble des coefficients de transfert de la population entre les sous-niveaux Zeeman des deux atomes, l'élargissement et le déplacement des raies optiques et de résonance magnétique ont été calculés en fonction de la valeur du champ.

- Traitement semi-classique à trajectoires rectilignes des collisions atome-perturbateur sans structure en champ intense (potentiel en R^{-6}). Les taux de transfert entre les sous-niveaux Zeeman $m = 0$ et $m = \pm 1$ sont différents ce qui offre une méthode de détermination des caractéristiques de la partie anisotrope du potentiel.

- Traitement exact semi-classique des collisions quasi-résonnantes entre deux isotopes pour une transition $J = 1 \rightarrow J = 0$. On met en évidence l'insuffisance des traitements asymptotiques souvent utilisés dans le traitement des collisions moléculaires pour prévoir le transfert de population.

- Traitement asymptotique des collisions résonnantes en champ intense dans le cas du Sodium ($3^2S_{1/2} - 3^2P_{1/2}, 3^2P_{3/2}$). On met

en évidence, dans ce cas où la structure fine de l'état excité est comparable au Hamiltonien Zeeman, deux types de dépendance des taux de transfert en fonction du champ : celle provenant de la différence d'énergie entre les niveaux et celle provenant du découplage de \vec{L} et \vec{S} sous l'action du champ.

★ Sur le plan expérimental

- Les champs magnétiques intenses produits par une bobine supraconductrice (80 kG) ou les bobines de Bitter (200 kG) du Service National des Champs Intenses (Grenoble) ont permis de vérifier une partie de nos prévisions théoriques.

- Dans le cas des collisions résonnantes Hg-Hg[★], l'étude expérimentale a permis de mettre en évidence la décroissance d'un facteur 3 entre 0 et 80 kG des taux de transfert entre les sous-niveaux Zeeman $m = 0$ et $m = \pm 1$. L'accord avec les prévisions de notre étude théorique est excellent. Ceci permet de confirmer la validité du potentiel dipôle-dipôle en R^{-3} pour les collisions résonnantes dans le niveau 6^3P_1 .

- Confirmation dans les collisions Hg[★]-gaz rares de l'existence de taux de transfert différents entre les sous-niveaux Zeeman $m = 0$ et $m = \pm 1$ et confirmation du caractère anisotrope de la relaxation. La moyenne de ces deux taux de transfert ne décroît que très lentement avec le champ. Détermination du signe de l'anisotropie du potentiel dans les collisions avec les différents gaz rares. Discussion dans les différents cas de la validité de l'approximation en R^{-6} du potentiel dans une gamme de champs de 200 kG.

- Extension dans le cas du sodium des études précédentes et mesure d'un grand nombre de paramètres nouveaux dont le taux de transfert entre les sous-niveaux Zeeman $m = -3/2$ et $m = 3/2$ pour les différents gaz rares.

Les études théoriques et expérimentales que nous avons effectuées des processus de transfert faiblement inélastiques ($\Delta E \ll kT$)

en phase vapeur ont donc permis de dégager un certain nombre d'idées importantes :

◦ L'intérêt des champs magnétiques intenses pour l'étude du transfert par collisions entre les sous-niveaux Zeeman d'un niveau excité atomique perturbé par les collisions avec des atomes de même espèce ou d'espèces différentes. Leur emploi permet de faire varier continûment l'écart d'énergie entre les sous-niveaux. Ceci offre la possibilité d'une large comparaison des résultats expérimentaux et des prévisions théoriques et permet donc un test sensible des hypothèses du modèle théorique ce qui n'est pas toujours possible dans les autres expériences réalisées en phase vapeur.

◦ L'utilisation de champs magnétiques intenses permet en outre de briser la symétrie sphérique de la relaxation en phase vapeur. L'existence d'effets d'anisotropie a été mis en évidence dans le cas des collisions Mercure-gaz rares et se manifeste par des taux de transfert différents entre les sous-niveaux $m = 0$ et $m = \pm 1$. Mais l'anisotropie doit se manifester aussi dans d'autres cas comme par exemple l'élargissement et le déplacement des composantes de la raie optique. Il serait intéressant de vérifier ce point expérimentalement.

◦ Nos études théoriques et expérimentales ont permis d'illustrer de manière générale l'importance de la notion de durée T_c de collision pour décrire le transfert de l'excitation entre deux niveaux atomiques séparés par la différence d'énergie ΔE . Lorsque $\Delta E \cdot T_c \ll 1$ domaine de validité de l'approximation soudaine, l'écart d'énergie est négligeable devant la perturbation du système provoquée par la collision. Le transfert de l'excitation s'effectue alors de manière quasi-résonnante. Lorsqu'au contraire $\Delta E \cdot T_c \gg 1$, le problème est beaucoup plus complexe. Généralement, les taux de transfert décroissent mais on a observé expérimentalement dans quelques cas particuliers ($\text{Hg}^* - \text{Ne}$; $\text{Hg}^* - \text{He}$) une croissance importante de certains taux de transfert. L'interprétation de ce comportement ne sera possible que lorsqu'on connaîtra les courbes de potentiel interatomiques pour ces systèmes.

Parmi les nombreuses extensions possibles de ce travail, on peut citer :

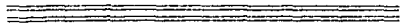
- Dans le cas du Sodium la poursuite et l'exploitation systématique des mesures de la dépendance en fonction du champ des taux de transfert - extension de l'étude des collisions aux croisements à 164 et 250 kG des sous-niveaux $m = \pm 1/2$ et $m = - 3/2$.

- Dans le cas des collisions Mercure-gaz rare - étude des variations des taux de transfert en fonction du champ et de la température ce qui doit permettre de préciser un modèle de potentiel pour ces collisions. Développement parallèle d'une étude théorique plus approfondie avec un potentiel de type Lennard-Jones.

- Extension des études à d'autres niveaux du Mercure, et d'autres perturbateurs (H_2 , N_2 , O_2 , CH_4). Extension à d'autres éléments (par exemple Cd (1P_1 , 3P_1), alcalins lourds pour lesquels la situation sera plus claire que celle offerte par le Sodium).

- Extensions et développement de la méthode expérimentale aux états atomiques très excités pour lesquels de faibles valeurs des champs magnétiques seront suffisantes en général.

APPENDICES GENERAUX



APPENDICE 1

Expression de l'intensité des signaux de fluorescence

Le calcul des intensités de fluorescence comporte deux phases. On évalue d'abord la population des sous-niveaux Zeeman des atomes dans l'état excité $J=1$ en régime stationnaire, lorsqu'ils sont soumis à une excitation extérieure continue. Moyennant un certain nombre d'hypothèses on en déduit les expressions des intensités réémises. On supposera qu'il n'existe aucune cohérence dans l'état excité.

L'équation pilote pour l'état excité $J=1$ des atomes peut s'écrire :

$$\dot{\rho} = -i [\mathcal{H}, \rho] - \Gamma \rho - \langle M \rangle_c \cdot \rho + D\rho + \left(\frac{d\rho}{dt} \right)_p \quad (1)$$

où \mathcal{H} est le hamiltonien Zeeman, $\langle M \rangle_c \cdot \rho$ et $D\rho$ décrivent respectivement l'évolution par collision et l'emprisonnement dans la vapeur, $\left(\frac{d\rho}{dt} \right)_p$ représente le terme de pompage.

Cette expression suppose que la matrice densité décrivant le système est indépendante de \vec{r} et \vec{v} (position et vitesse de l'atome), que l'opérateur D de diffusion multiple a une expression locale et que le couplage entre la diffusion multiple et les collisions est négligeable. A la limite des faibles pressions, $D\rho$ tend vers 0.

La population du sous-niveau Zeeman m est notée ρ_m . On suppose que l'écart d'énergie entre les sous-niveaux Zeeman est supérieur à la largeur Doppler des raies. Dans ces conditions de "champ fort", l'emprisonnement s'effectue de manière indépendante dans la vapeur pour chaque classe de photons. La diffusion multiple ne dépolarise pas le rayonnement et la matrice D décrivant le phénomène est diagonale dans l'espace de Liouville (cf. IV et OMONT-1961). On définit ainsi les temps d'emprisonnements $(\Gamma^m)^{-1}$ associés à la classe de photons issus du sous-niveau m par la relation :

$$(D - \Gamma) |m \rangle \langle m| = -\Gamma^m |m \rangle \langle m| \quad (2)$$

avec $\Gamma^1 = \Gamma^{-1} = \Gamma^\sigma \quad \Gamma^0 = \Gamma^\pi$

L'opérateur $\langle M \rangle_c$ sur l'espace de Liouville décrivant l'effet des collisions possède l'invariance de rotation dans la direction du champ. On supposera suivant les cas particuliers envisagés l'existence de symétries plus étendues lorsque ce sera nécessaire. Le taux de transfert $g^{(mm)(pp)}$ de p vers m sera noté g^{mp} . On obtient :

$$\langle M \rangle_c |p \rangle \langle p| = \sum_m g^{mp} |m \rangle \langle m| \quad (3)$$

avec la relation de conservation de la population :

$$\sum_m g^{mp} = 0$$

La projection de l'équation pilote sur la base dyadique $|J=1, m \rangle \langle J=1, p|$ permet d'écrire :

$$\dot{\rho}_m = 0 = -(\Gamma^m + g^{mm}) \rho_m + \sum_{p \neq m} |g^{mp}| \rho_p + A_m \quad (4)$$

où A_m est le terme source pour le niveau m . Nous conviendrons dans la suite et cela est conforme aux notations employées dans les parties I-C et II-C que les coefficients g^{mp} sont pris en valeur absolue.

Dans le cas où l'on excite le sous-niveau $m=0$, $A_m = \delta_{0m} A_0$ et l'on obtient explicitement :

$$\begin{aligned} \rho_1 &= (A_0/\Delta) [g^{10}(\Gamma^\sigma + g^{1-1} + g^{0-1}) + g^{-10} g^{1-1}] \\ \rho_0 &= (A_0/\Delta) [(\Gamma^\sigma + g^{01} + g^{-11})(\Gamma^\sigma + g^{1-1} + g^{0-1}) - g^{-11} g^{1-1}] \quad (5) \\ \rho_{-1} &= (A_0/\Delta) [g^{-10}(\Gamma^\sigma + g^{01} + g^{-11}) + g^{10} g^{-11}] \end{aligned}$$

avec $\Delta = [(\Gamma^\sigma + g^{1-1} + g^{-11})(\Gamma^\pi + g^{10} + g^{-10})\Gamma^\sigma + (g^{0-1} g^{10} + g^{01} g^{-10})\Gamma^\sigma + \Gamma^\pi(g^{01} g^{0-1} + g^{01} g^{1-1} + g^{-11} g^{0-1}) + \Gamma^\sigma \Gamma^\pi(g^{01} + g^{0-1})]$

L'expression de la valeur des populations en régime stationnaire est donc relativement compliquée lorsque l'on suppose seulement l'invariance de rotation dans la direction du champ. Les expressions précédentes supposent en outre que les processus de collision et d'emprisonnement sont indépendants et que la matrice densité décrivant le système ne dépend ni de la position ni de la vitesse des atomes.

L'hypothèse la plus simple pour obtenir l'expression des intensités de fluorescence consiste à admettre qu'elles sont proportionnelles aux populations moyennes des sous-niveaux Zeeman (cf. § IV-A) :

$$I_m = \lambda_m \rho_m \quad (6)$$

L'évaluation de λ_m peut être effectuée selon la méthode (OMONT 1961) rappelée dans la partie IV. En première approximation on peut admettre que $\lambda_{-1} = \lambda_1 = \lambda_\sigma$ et $\lambda_0 = \lambda_\pi \neq \lambda_\sigma$. En définitive seul $\lambda(N) = \lambda_\sigma / \lambda_\pi$ intervient dans l'expression du rapport des intensités.

Cas limites de l'expression des intensités dans le cas de l'excitation du sous-niveau $m = 0$.

- Limite des faibles pressions - $\Gamma^\sigma, \pi \gg g$

On suppose que les taux de transfert par collision sont petits comparés à la probabilité d'emprisonnement. Cela signifie en particulier que les termes quadratiques en g (termes de retour par collisions) sont négligeables. Pendant le temps d'emprisonnement, il y a en moyenne une seule interaction qui transfère l'excitation du sous-niveau $m = 0$ vers $m = 1$ ou $m = -1$. Dans ces conditions, l'expression des intensités de fluorescence est linéaire par rapport aux termes de transfert par collision. On obtient :

$$\begin{aligned} \rho_1 &\approx (A_0/\Delta) g^{10} \Gamma^\sigma \\ \rho_{-1} &\approx (A_0/\Delta) g^{-10} \Gamma^\sigma \quad \text{avec} \quad \Delta \sim (\Gamma^\sigma)^2 \Gamma^\pi \\ \rho_0 &\approx (A_0/\Delta) (\Gamma^\sigma)^2 \end{aligned}$$

$$\text{soit } \rho_{-1}/\rho_1 = I_{\sigma^-}/I_{\sigma^+} = g^{-10}/g^{10} \quad I_{\sigma^-}/I_{\pi} = \lambda_{\sigma^0\sigma^0}/\lambda_{\pi^0\pi^0} = \lambda(N) \frac{g^{-10} + g^{10}}{2\Gamma^{\sigma}}$$

- Limite des fortes pressions ou $\Gamma^{\sigma, \pi} \ll g$

C'est le cas où il existe pendant le temps d'emprisonnement, un grand nombre de transferts par collisions entre les sous-niveaux Zeeman des atomes. On s'attend donc à obtenir des intensités de fluorescence du même ordre de grandeur dans la mesure où la population des sous-niveaux Zeeman a subi une redistribution totale. Les conditions sont donc proches de celles de l'équilibre thermodynamique. On obtient explicitement :

$$\frac{I_{\sigma^-}}{I_{\pi}} \approx \frac{\lambda(N)}{2} \frac{(g^{1-1} + g^{-11})(g^{10} + g^{-10}) + g^{10} g^{0-1} + g^{-10} g^{01}}{g^{01} g^{1-1} + g^{01} g^{0-1} + g^{-11} g^{0-1}}$$

$$\frac{I_{\sigma^-}}{I_{\sigma^+}} \approx \frac{g^{-11} (g^{10} + g^{-10}) + g^{-10} g^{01}}{g^{1-1} (g^{10} + g^{-10}) + g^{10} g^{0-1}}$$

Les valeurs des rapports des intensités sont alors de l'ordre de 1. Si l'on admet que les taux de transferts par collisions satisfont de plus à une relation de bilan détaillé (cf. § I-B et II-B - Annexes 4 et 5)

$$g^{mp} = e^{-(m-p)\hbar\omega/kT} g^{pm}$$

on obtient

$$I_{\sigma^-}/I_{\sigma^+} = e^{2\hbar\omega/kT}$$

et

$$I_{\sigma^-}/I_{\pi} \approx \lambda(N) \text{ch } \hbar\omega/kT$$

relations qui expriment que les populations des sous-niveaux Zeeman satisfont à la loi de Boltzmann.

- Expressions approchées dans le cas des champs "faibles"

Lorsque $\hbar\omega/kT$ est de l'ordre de quelques pourcents, on peut négliger la petite différence entre g^{01} et g^{10} dans le domaine des champs où l'on travaille. Les relations de symétrie du § I-B sont valables et l'on peut écrire :

$$g^{1-1} = g^{-11}$$

$$g^{01} = g^{10} = g^{-10} = g^{0-1}$$

Les intensités de fluorescence se mettent alors sous une forme simple :

$$I_{\pi} = \lambda_{\pi} \frac{(\Gamma^{\sigma} + g^{10})}{\Gamma^{\pi} \Gamma^{\sigma} + g^{10} (2\Gamma^{\sigma} + \Gamma^{\pi})}$$

$$I_{\sigma-} = I_{\sigma+} = \lambda(N) \frac{g^{10}}{\Gamma^{\sigma} + g^{10}} I_{\pi}$$

$$I_{\sigma}/I_{\pi} = \lambda(N) \frac{g^{10}}{\Gamma^{\sigma} + g^{10}} \quad \text{qui est l'expression que}$$

nous avons utilisé pour l'interprétation des résultats de la partie I-C.

A la limite où le temps d'emprisonnement est long comparé à l'inverse du taux de transfert par collision, on obtient :

$$I_{\pi} \sim \frac{\lambda_{\pi}}{2\Gamma^{\sigma} + \Gamma^{\pi}}$$

$$I_{\sigma} \sim \frac{\lambda_{\sigma}}{2\Gamma^{\sigma} + \Gamma^{\pi}}$$

$$I_{\sigma}/I_{\pi} \approx \lambda(N) = \text{constante}$$

Le rapport I_{σ}/I_{π} est alors indépendant des taux de transfert par collision. Il en est de même des intensités qui ne dépendent que de Γ^{σ} et de Γ^{π} .

APPENDICE 2

*Structure fine de la configuration (6s,6p) du Mercure**Découplage de \vec{L} et \vec{S} et modification de la durée de vie
des niveaux en champ intense (isotope pair)*

Nous étudions dans cet appendice les effets du champ magnétique sur les énergies et les fonctions d'onde des états de la configuration (6s,6p) du Mercure. Ceci a été traité par ailleurs (par exemple THADDEUS et al. - 1964 ; D. VIENNE et al. - 1972).

Le calcul des niveaux d'énergie en fonction du champ est effectué dans l'approximation d'un couplage $\vec{L} \cdot \vec{S}$ pur. Ceci n'est pas tout à fait le cas pour la configuration (6s,6p) du Mercure mais cela permet d'obtenir l'allure générale des niveaux en fonction du champ.

Le calcul de la perturbation des fonctions d'onde dont le but est d'évaluer la modification des durées de vie des différents sous-niveaux sous l'effet du hamiltonien magnétique est effectué en tenant compte de l'effet essentiel du mélange entre les fonctions d'onde des niveaux 1P_1 et 3P_1 . Nous avons supposé dans ce cas le champ assez petit pour qu'un calcul de perturbation soit valable. Un traitement plus rigoureux du problème ne s'impose pas puisque le calcul montre que dans des champs de 200 kG, les modifications de la durée de vie des niveaux restent très faibles. Cependant la durée de vie des niveaux 3P_0 et 3P_2 n'est plus infinie.

1 - HYPOTHESE D'UN COUPLAGE $\vec{L} \cdot \vec{S}$ PUR

L'effet du champ magnétique sur les termes de la configuration (6s,6p) est alors très simple. D'une part, le niveau 1P_1 subit un effet Zeeman normal quelle que soit la valeur du champ. D'autre part, l'effet du champ sur les états de triplet entraîne un mélange des termes 3P_2 , 3P_1 , 3P_0 . J_z commutant

avec le Hamiltonien Zeeman, m_J reste un bon nombre quantique.

Le Hamiltonien pour le triplet P s'écrit :

$$\mathcal{H} = A \vec{L} \cdot \vec{S} + \mu_B \vec{B} \cdot (\vec{L} + 2\vec{S})$$

Les états propres associés seront notés $|\widetilde{J} M_J\rangle$ où la phase est choisie de telle sorte que $|\widetilde{J} M_J\rangle$ tende en champ nul vers l'état propre $|L S J M_J\rangle$ de structure fine.

Les niveaux d'énergie sont donnés sur la FIGURE ci-contre en fonction de la variable $x = \omega/A$ (où $\omega = \mu_B \cdot B$). Les expressions analytiques obtenues pour les valeurs de M_J égales à ± 1 et ± 2 sont :

$$E(J=2, M_J=\pm 2) = A \pm 3\omega$$

$$E(\widetilde{J}=1, M_J=\pm 1) = \pm \frac{3\omega}{2} - (A^2 + \frac{\omega^2}{4})^{1/2}$$

$$E(\widetilde{J}=2, M_J=\pm 1) = \pm \frac{3\omega}{2} + (A^2 + \frac{\omega^2}{4})^{1/2}$$

L'équation caractéristique pour $M_J = 0$ est du 3ème ordre et n'a pas de solution évidente : elle s'écrit :

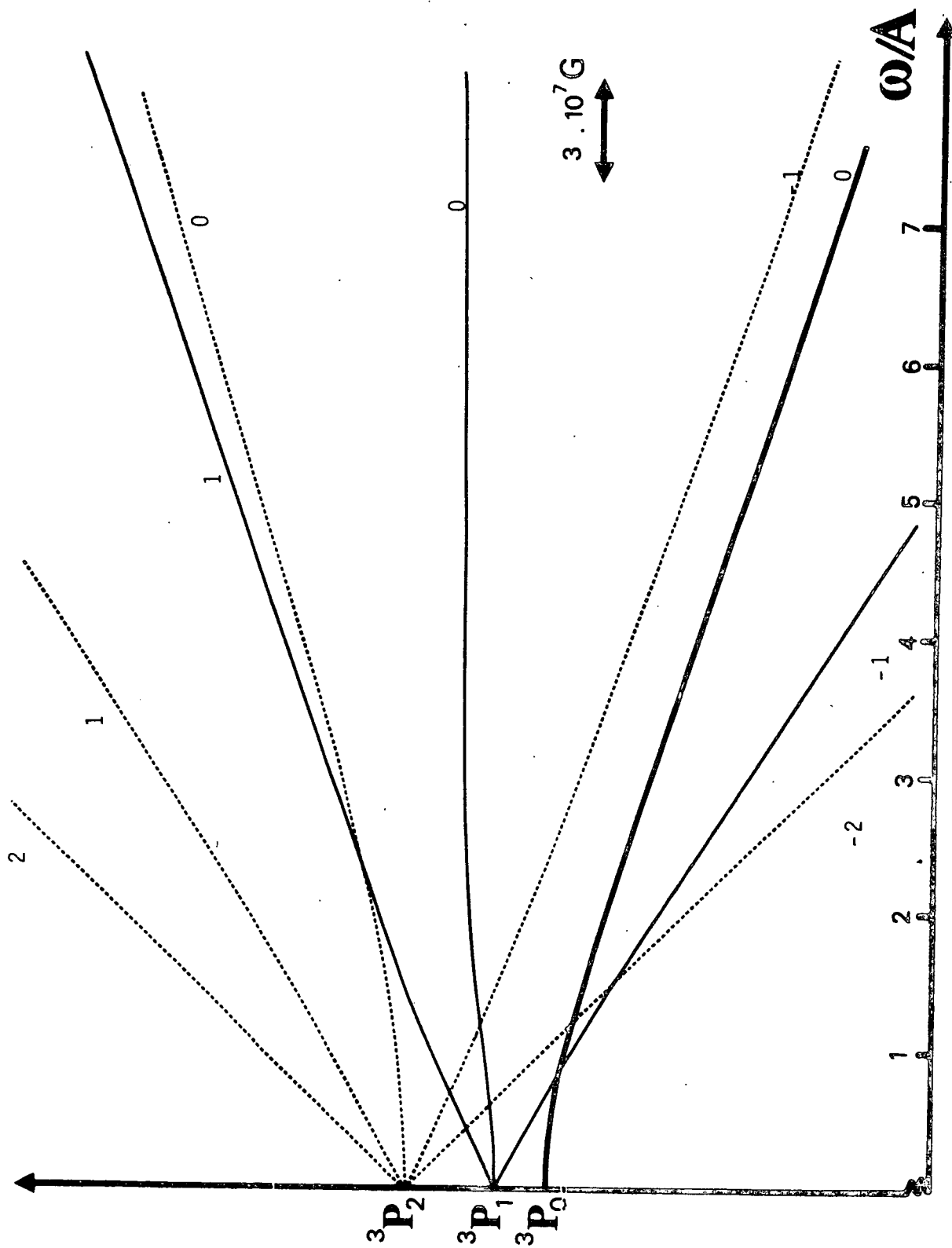
$$-s^3 - 2As^2 + s(A^2 + \omega^2) + 2A^3 = 0$$

Ordres de grandeurs. La constante A de structure fine vaut de l'ordre de $6 \cdot 10^4$ GHz. Pour la valeur 200 kG du champ, x vaut donc $4,5 \cdot 10^{-3}$. Les champs magnétiques continus disponibles actuellement ne peuvent donc produire qu'un très petit découplage de la structure fine du triplet P du Mercure. La valeur $x \approx 1$ correspond à des champs de $4,4 \cdot 10^4$ kG.

Dans les conditions de notre étude où les champs utilisés sont inférieurs à 200 kG, il est suffisant de représenter les niveaux d'énergie par un développement de perturbation au second ordre. On obtient :

$$\begin{cases} E(3P_2, \pm 2) = A (1 \pm 3x) \\ E(3P_2, \pm 1) = A (1 \pm \frac{3}{2}x + \frac{x^2}{8}) \\ E(3P_2, 0) = A (1 + \frac{x^2}{6}) \end{cases}$$

APPENDICE II



Niveaux d'énergie en fonction du champ à l'approximation du couplage L.S

$$|{}^3\tilde{P}_2, M=\pm 2\rangle = |J=2, M=\pm 2\rangle$$

$$|{}^3\tilde{P}_2, M=\pm 1\rangle = \left(1 - \frac{x^2}{32}\right) |J=2, M=\pm 1\rangle - \frac{x}{4} |J=1, M=\pm 1\rangle$$

$$|{}^3\tilde{P}_2, M=0\rangle = \left(1 - \frac{x^2}{24}\right) |J=2, M=0\rangle - \frac{x\sqrt{3}}{6} |J=1, M=0\rangle$$

$$E({}^3P_1, \pm 1) = A \left(-1 \pm \frac{3}{2}x - \frac{x^2}{8}\right)$$

$$E({}^3P_1, 0) = A \left(-1 + \frac{x^2}{2}\right)$$

$$|{}^3\tilde{P}_1, M=\pm 1\rangle = -\frac{x}{4} |J=2, M=\pm 1\rangle + \left(1 - \frac{x^2}{32}\right) |J=1, M=\pm 1\rangle$$

$$|{}^3\tilde{P}_1, M=0\rangle = -\frac{x}{2\sqrt{3}} |J=2, M=0\rangle + \left(1 - \frac{3x^2}{8}\right) |J=1, M=0\rangle$$

$$+ x\sqrt{\frac{2}{3}} |J=0, 0\rangle$$

$$E({}^3\tilde{P}_0, 0) = -2A \left(1 + \frac{x^2}{3}\right)$$

$$|{}^3\tilde{P}_0, M=0\rangle = -\sqrt{\frac{2}{3}}x |J=1, M=0\rangle + \left(1 - \frac{x^2}{3}\right) |J=0, M=0\rangle$$

En ce qui concerne le niveau 3P_1 , les effets du découplage sur l'énergie des sous-niveaux dans des champs inférieurs ou égaux à 200 kG sont les suivants :

Le sous-niveau $M=0$ est déplacé de la quantité $\omega^2/2A$, de l'ordre de 0,1 GHz à 80 kG et de 0,7 GHz à 200 kG (l'introduction du mélange avec le niveau 1P_1 conduit à une valeur de 0,8 GHz). L'écart aux énergies Zeeman pour les niveaux $M = \pm 1$ est du même ordre de grandeur (4 fois plus petit). Les écarts d'énergie entre les niveaux perturbés ($M_J = 1, M_J = 0$) et ($M_J = 0, M_J = -1$) sont égaux à $2 \cdot 10^{-3}$ près en valeur relative pour un champ de 200 kG.

Il n'y a donc, en ce qui concerne les niveaux d'énergie, aucune perturbation importante pour des champs inférieurs à 200 kG. Notons néanmoins que dans un champ de 200 kG le déplacement du niveau $M = 0$ est de l'ordre de grandeur de la largeur Doppler.

2 - EFFETS DU DECOUPLAGE SUR LA DUREE DE VIE

Le traitement précédent montre que dans le cas de champs magnétiques inférieurs à 200 kG, un traitement de perturbation au second ordre en ω suffit pour tenir compte des effets de découplage.

Nous allons reprendre le traitement dans le cas où on ne néglige pas le mélange des fonctions d'ondes des niveaux 1P_1 et 3P_1 . Cela est évidemment nécessaire dans la mesure où le couplage LS n'est pas pur et où la durée de vie finie du niveau 3P_1 provient en majeure partie de ce mélange (cf. LUC E. 1974).

Les états propres en champ nul sont décrits dans la base $\{|L S J M_J \rangle\}$ Ils sont de la forme :

$$|\psi(^3P_1)\rangle = \alpha |1 1 1 M\rangle - \gamma |1 0 1 M\rangle$$

$$|^3P_2\rangle = |1 1 2 M\rangle$$

$$|^3P_0\rangle = |1 1 0 0\rangle$$

$$|\psi(^1P_1)\rangle = \gamma |1 1 1 M\rangle + \alpha |1 0 1 M\rangle$$

Les énergies des niveaux 1P_1 , 3P_2 , 3P_1 , 3P_0 sont notées respectivement E^1 , E^2 , E^3 , E^4 . Le traitement de perturbation au second ordre pour les énergies, au premier ordre pour les états propres conduit aux expressions suivantes : (les fonctions d'onde perturbées sont notées $\tilde{\psi}$).

$$\left[\begin{array}{l} |\tilde{\psi}(^1P_1), M=\pm 1\rangle = |\psi(^1P_1), M=\pm 1\rangle - \frac{\gamma\omega}{2(E^1-E^2)} |^3P_2\rangle \pm \frac{\omega}{2} \frac{\alpha\gamma}{E^1-E^3} |\psi(^3P_1)\rangle \\ E(^1P_1, M=\pm 1) = E^1 \pm \omega \left(1 + \frac{\gamma^2}{2}\right) + \frac{\omega^2\gamma^2}{4} \left[\frac{1}{E^1-E^2} + \frac{\alpha^2}{E^1-E^3} \right] \\ |\tilde{\psi}(^1P_1), M=0\rangle = |\psi(^1P_1), M=0\rangle - \frac{\gamma\omega\sqrt{1/3}}{E^1-E^2} |^3P_2\rangle - \frac{\gamma\omega\sqrt{2/3}}{E^1-E^4} |^3P_0\rangle \\ E(^1P_1, M=0) = E^1 + \frac{\gamma^2\omega^2}{3(E^1-E^2)} + \frac{2}{3} \frac{\gamma^2\omega^2}{E^1-E^4} \end{array} \right.$$

$$\begin{aligned}
& |\widetilde{\psi}(^3P_2), M = \pm 2 \rangle = |^3P_2, M = \pm 2 \rangle \\
& E(^3P_2, M = \pm 2) = E^2 \pm 3\omega \\
& |\widetilde{\psi}(^3P_2), M = \pm 1 \rangle = |^3P_2, M = \pm 1 \rangle - \frac{\omega\gamma}{2(E^2-E^1)} |\psi(^1P_1), M = \pm 1 \rangle - \frac{\alpha\omega}{2(E^2-E^3)} |\psi(^3P_1), M = \pm 1 \rangle \\
& E(^3P_2, M = \pm 1) = E^2 \pm \frac{3\omega}{2} + \frac{\omega^2}{4} \left(\frac{\gamma^2}{E^2-E^1} + \frac{\alpha^2}{E^2-E^3} \right) \\
& |\widetilde{\psi}(^3P_2), M=0 \rangle = |^3P_2, M=0 \rangle - \frac{\gamma\omega\sqrt{1/3}}{E^2-E^1} |\psi(^1P_1), M=0 \rangle - \frac{\alpha\omega\sqrt{1/3}}{E^2-E^3} |\psi(^3P_1), M=0 \rangle \\
& E(^3P_2, M=0) = E^2 + \frac{1}{3} \frac{\gamma^2\omega^2}{E^2-E^1} + \frac{1}{3} \frac{\alpha^2\omega^2}{E^2-E^3} \\
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& |\widetilde{\psi}(^3P_1), M = \pm 1 \rangle = |\psi(^3P_1), M = \pm 1 \rangle - \frac{\alpha\omega}{2(E^3-E^2)} |\psi(^0P_2), M = \pm 1 \rangle \pm \frac{\omega}{2} \frac{\alpha\gamma}{E^3-E^1} |\psi(^1P_1), M = \pm 1 \rangle \\
& E(^3P_1, M = \pm 1) = E^3 \pm \omega \left(1 + \frac{\alpha^2}{2} \right) + \frac{\alpha^2\omega^2}{4} \left(\frac{\gamma^2}{E^3-E^1} + \frac{1}{E^3-E^2} \right) \\
& |\widetilde{\psi}(^3P_1), M=0 \rangle = |\psi(^3P_1), M=0 \rangle - \frac{\alpha\omega\sqrt{1/3}}{E^3-E^2} |^3P_2, M=0 \rangle - \frac{\omega(\sqrt{2/3})\alpha}{E^3-E^4} |^3P_0, M=0 \rangle \\
& E(^3P_1, M=0) = E^3 + \frac{\alpha^2\omega^2}{E^3-E^2} \frac{1}{3} + \frac{\alpha^2\omega^2}{E^3-E^4} \frac{2}{3} \\
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& |\widetilde{\psi}(^3P_0), M=0 \rangle = |^3P_0, M=0 \rangle - \frac{\omega\gamma\sqrt{2/3}}{E^4-E^1} |\psi(^1P_1), M=0 \rangle - \frac{\omega(\sqrt{2/3})\alpha}{E^4-E^3} |\psi(^3P_1), M=0 \rangle \\
& E(^3P_0, M=0) = E^4 + \frac{2}{3} \frac{\gamma^2\omega^2}{E^4-E^1} + \frac{2}{3} \frac{\omega^2\alpha^2}{E^4-E^3}
\end{aligned}$$

On remarque à cet ordre du calcul de perturbation que la durée de vie des niveaux 3P_0 et 3P_2 n'est plus nulle pour un isotope pair, en raison du mélange avec les fonctions d'ondes des niveaux 1P_1 et 3P_1 , et que la durée de vie des sous-niveaux Zeeman issus d'un même niveau n'est plus la même.

Ordres de grandeur de la modification des durées de vie.

La durée de vie associée au sous-niveau Zeeman M décrit par la fonction d'onde perturbée $|\widetilde{\psi}(M)\rangle$ est inversement proportionnelle à

$$|\langle 6^1S_0 | \vec{P} | \tilde{\varphi}(M) \rangle|^2$$

Dans le cas de la configuration (6s,6p) du Mercure, la valeur des paramètres de mélange est (LURIO-1963) $\alpha = 0,985$ et $\gamma = 0,171$. La modification de la durée de vie du sous-niveau $M = 1$ du niveau 6^3P_1 provenant de l'effet du champ magnétique vaut donc de l'ordre de $\omega\alpha^2/(E^3-E^1)$ en valeur relative par rapport à la durée de vie en champ nul. Cette correction linéaire en champ vaut $6 \cdot 10^{-4}$ à 200 kG. Elle est de signes opposés pour les sous-niveaux $M = \pm 1$. Par contre, la durée de vie du sous-niveau $M = 0$ n'est pas modifiée par le champ à cet ordre du calcul.

La durée de vie des niveaux $|^3P_{2,M = \pm 2} \rangle$ reste infinie à tous les ordres à l'approximation dipolaire électrique. Les autres sous-niveaux Zeeman acquièrent par contre une durée de vie finie proportionnelle à H^2 de l'ordre de 10^{-2} s au maximum pour des champs de 200 kG. Ces ordres de grandeur sont également valables pour le niveau 6^3P_0 . (D. VIENNE et al. - 1972).

★●★●★●★●

Références

LUC-KOENIG E. : J. Phys. B 7 1052 (1974)

KOHLER R. et THADDEUS P. : Phys. Rev. 134, A 1204 (1964)

VIENNE D., BIGEON M.C. et BARRAT J.P. : Optics Com. 6, 261 (1972)