Étude de la diffusion multiple cohérente de la lumière de résonance optique. Application au niveau 6 3P1 du mercure, III. Résultats expérimentaux

Jean-Pierre Barrat

► To cite this version:

Jean-Pierre Barrat. Étude de la diffusion multiple cohérente de la lumière de résonance optique. Application au niveau 6 3P1 du mercure, III. Résultats expérimentaux. J. Phys. Radium, 1959, 20 (7), pp.657-668. 10.1051/jphysrad:01959002007065700 . jpa-00236118

HAL Id: jpa-00236118

<https://hal.science/jpa-00236118>

Submitted on 1 Jan 1959

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.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE

ET

LE RADIUM

ÉTUDE DE LA DIFFUSION MULTIPLE COHÉRENTE DE LA LUMIÈRE DE RÉSONANCE OPTIQUE. APPLICATION AU NIVEAU 6^3P_1 DU MERCURE.

III. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX.

Par J. P. BARRAT,

Laboratoire de Physique de l'École Normale Supérieure.

Résumé. — Les résultats de la théorie développée dans deux publications précédentes ont été vérifiés expérimentalement dans le cas de la diffusion multiple des photons de la raie $2\,537\text{ Å}$ ($6^1S_0 - 6^3P_1$) par les atomes de mercure. En particulier, le taux de polarisation de la lumière de résonance optique et la durée de vie apparente ou durée de cohérence du niveau 6^3P_1 ont été mesurés, dans le cas de l'excitation sélective d'un isotope pair ou de l'un des niveaux hyperfins des isotopes impairs, en fonction du nombre d'atomes par cm^3 diffusant le rayonnement, pour des conditions géométriques déterminées. L'influence des conditions géométriques a été également étudiée, ainsi que la largeur et la forme des raies de résonance magnétique dans le cas de la diffusion double. Les résultats expérimentaux sont, en général, en bon accord avec les prévisions théoriques.

Abstract. — The results of the theory developed in two preceding papers have been checked experimentally, in the case of multiple scattering of $2\,537$ optical resonance radiation ($6^1S_0 - 6^3P_1$) by mercury atoms. In particular the degree of polarization of the resonance light and the apparent lifetime ("coherence time") of the 6^3P_1 level have been measured, in the case of selective excitation of an even isotope, or of one of the hyperfine levels of the odd isotopes, as functions of the number of atoms per c.c. which effectively scatter the radiation, for fixed geometrical conditions. Effects due to variation of geometrical conditions have also been studied, as well as the width and the shape of the magnetic resonance lines in the case of double scattering. Experimental results are generally in good agreement with theoretical expectations.

Dans les 2 premières parties [1, 2] désignées dans la suite par I et II, nous avons développé une étude théorique des effets de la diffusion multiple des photons de résonance optique. Des résultats expérimentaux partiels concernant la raie $6^1S_0 - 6^3P_1$ ($2\,537\text{ Å}$) des différents isotopes du mercure, ont déjà été publiés [3, 4, 5, 6, 7, 8, 9]. Le lecteur trouvera en particulier dans les références [4] et [9] un historique de la question et la description qualitative des effets observés, avec les arguments qui ont permis de les attribuer à la diffusion multiple cohérente des photons. Ce chapitre est destiné à récapituler les faits expérimentaux en les comparant aux prévisions de la théorie établie dans I et II.

1. Conditions des expériences dans le cas du mercure. — La structure hyperfine pour les isotopes impairs à spin nucléaire ^{199}Hg et ^{201}Hg , et le

déplacement isotopique des composantes dues aux isotopes pairs de la raie $6^1S_0 - 6^3P_1$, sont tous deux grands devant la largeur Doppler de chaque composante [10]. Par suite, conformément aux hypothèses faites dans les calculs de I et II, la diffusion multiple se produit indépendamment pour chaque composante de la raie [4, 9]. On peut aussi profiter de certaines coïncidences accidentelles entre une composante d'un isotope pair et une composante hyperfine d'un isotope impair pour exciter sélectivement un niveau hyperfin d'un isotope impair, grâce à l'emploi de mélanges isotopiques enrichis en l'un ou l'autre des divers isotopes. Les expériences ont porté :

a) sur les formes et les largeurs des raies de résonance magnétique, dans le cas des isotopes pairs (paragr. 2, 4, 5, 6) et de certains niveaux hyperfins des isotopes impairs (paragr. 7, 8, 9) ;

b) sur la mesure des taux de polarisation P_σ et P_π

de la lumière de résonance optique réémise à angle droit du champ magnétique statique H_0 , en excitation σ et π respectivement, dans le cas des isotopes pairs (paragr. 2) ;

c) sur la mesure de la durée de vie apparente du niveau 6^3P_1 par la méthode de dépolarisation

magnétique due à Hanle [11] dans le cas des isotopes pairs (paragr. 3) et de l'isotope ^{201}Hg (paragr. 10).

Le dispositif expérimental comportait essentiellement une cellule en quartz dont le queusot, contenant la goutte de mercure, doit être soigneusement

FIG. III,1.

thermostaté. L'excitation optique était fournie soit par un arc basse pression alimenté en courant alternatif, soit par des lampes excitées par une décharge haute fréquence et contenant des mélanges isotopiques enrichis en un isotope de mercure. Les champs magnétiques utilisés étaient fournis par une paire de bobines en position d'Helmholtz. Un émetteur à quartz suivi d'un amplificateur débitant dans un circuit accordé fournissait le champ H. F. H_1 que l'on mesurait en valeur relative. Des photomultiplicateurs recevaient les signaux de résonance

optique. Le signal de résonance magnétique était étudié en général au moyen de la déviation d'un galvanomètre. Toutefois, dans certaines mesures, nous avons utilisé un dispositif électronique de modulation de la puissance de haute fréquence, et d'amplification sélective avec détection synchrone du signal de résonance magnétique. Les différentes parties de l'appareillage sont semblables à celles des appareillages utilisés par Brossel et Blamont et ont déjà été décrites [4, 5, 9, 12].

2. Résonance magnétique et taux de polarisation dans le cas de l'excitation sélective d'un isotope pair [4, 5, 8, 9]. — Dans le domaine de pression de vapeur qui correspond à un nombre N d'atomes

FIG. III,2.

FIG. III,3.

diffusants par cm^3 compris entre 10^{10} et $2 \cdot 10^{13}$ (1), les raies de résonance magnétique obtenues par excitation sélective d'un isotope pair dans un mélange isotopique quelconque ont la forme dite

(1) Ces mesures ont été effectuées par M^{lles} M. A. Guiochon et F. Boutron et ont constitué une partie de leurs Diplômes d'Études Supérieures [4, 5].

de Majorana-Brossel (formule II,27), ce qui est en accord avec les prévisions théoriques, et ceci à toutes les fréquences qui aient été utilisées. Plusieurs réseaux complets de courbes de résonance ont été tracés et comparés à des réseaux théoriques, la fréquence choisie étant 144 MHz. L'accord est excellent. Dans des conditions de géométrie iden-

tiques, la largeur des courbes en niveau de radio-fréquence nul permet de déterminer un paramètre T , durée de vie apparente du niveau ou « durée de cohérence » qui est une fonction seulement de N , indépendamment de la présence des autres isotopes. La courbe donnant T en fonction de N (fig. III, 1) comporte des points obtenus en excitant soit les isotopes ^{202}Hg et ^{198}Hg dans du mercure naturel, soit l'isotope ^{202}Hg dans une cellule contenant ce dernier presque pur. Ce résultat a été l'un des premiers arguments donnés en faveur de l'interprétation de l'affinement des raies par la diffusion multiple [4, 5].

La valeur limite de T pour N très faible, $1,18 \cdot 10^{-7}$ sec, est à interpréter comme la durée de vie vraie τ du niveau 6^3P_1 pour un atome isolé.

Pour comparer de façon plus précise les prévisions théoriques et les résultats, il est intéressant de tenter de déterminer le paramètre x en fonction de N , ce qui nécessite la fixation de la limite supérieure L (cf. II, paragr. 1, D). Les cellules utilisées étant des cubes de 2,5 cm d'arête environ, le calcul de x , puis de τ/T en fonction de N a été fait pour $L = 1$ cm ou $L = 0,8$ cm (cf. fig. III, 2). Les résultats encadrent les valeurs expérimentales et ne s'en écartent pas de plus de 20 %. L'accord nous semble satisfaisant étant donné les approximations faites dans la définition même de x et L .

Dans les conditions de nos mesures, les taux de polarisation P_σ et P_π sont aussi des fonctions bien déterminées de N . Il est remarquable toutefois que P_σ et P_π ne semblent pas atteindre leur limite théorique 100 aux très faibles valeurs de N . L'explication de ce phénomène n'a pas été trouvée de façon sûre. Il est dû peut-être au défaut de parallélisme des faisceaux lumineux, ou à la dépolarisation de la lumière par la traversée des fenêtres de la cellule ou par des réflexions et diffusions sur ces fenêtres. S'il s'agit d'un effet de dépolarisation par traversée de dioptries, les valeurs correctes doivent s'obtenir en effectuant sur les valeurs limites une affinité ramenant à 100 la limite pour N très faible. Ce sont ces valeurs ainsi corrigées qui sont comparées plus loin aux valeurs théoriques.

Étant donné les approximations faites dans la définition même du paramètre x , on peut penser que les faibles désaccords entre les résultats théoriques et expérimentaux (cf. fig. III, 2) seront moins importants si on élimine x entre les diverses formules démontrées en II et que l'on essaie de comparer la relation théorique obtenue aux valeurs expérimentales. La courbe de la figure III, 3 donne les valeurs théoriques de τ/T en fonction de P_σ , les points représentant le résultat des mesures ; à une valeur de τ/T déterminée à partir du montage en pont utilisant 2 bancs d'optique (cf. références 4, 5, 9, 12) sont associées 2 valeurs de P_σ mesurées à la même valeur de N sur chacun des 2 bancs d'optique. D'où 2 séries de points expé-

rimementaux. La différence entre ces 2 valeurs de P_σ résulte assurément du fait qu'ils ne visaient pas la même région de la cellule (influence de la géométrie ; cf. paragr. 4) ; on conçoit que les 2 séries de points expérimentaux encadrent presque partout la courbe théorique. Lorsque T a été mesuré en n'utilisant qu'un seul banc d'optique, le point représentant la valeur de τ/T obtenue et la valeur de P_σ correspondante est beaucoup plus près de la courbe théorique.

Aux pressions de vapeur plus élevées, les mesures devenaient beaucoup plus difficiles : le taux de polarisation devient en effet très faible et le signal de résonance magnétique n'est plus qu'une faible fraction du signal de résonance optique ; le rapport signal sur bruit devient très médiocre et il est nécessaire d'utiliser un dispositif électronique. Seules des mesures de T ont été effectuées, à la fréquence de 14,48 MHz, les mesures de P_σ étant trop imprécises. Nous n'avons opéré que sur une cellule contenant l'isotope ^{202}Hg presque pur ; la précision des mesures était très médiocre, il est difficile de décider si les désaccords observés entre les réseaux de courbes de résonance expérimentales et la formule II, 27 de Majorana-Brossel étaient réels ou seulement dus aux erreurs accidentelles. En tout cas, la largeur limite permettait de déduire une valeur de T et de τ/T . Les quelques mesures faites ont montré que T ne dépassait pas la valeur maximum $(10/3) \tau$ donnée par la théorie. Pour $N > 3 \cdot 10^{13}$, T décroît très rapidement quand N croît, c'est-à-dire que les raies s'élargissent. Nous n'avons pas cherché à étudier en détail ce phénomène. Il est possible que l'effet soit dû encore à la diffusion multiple ; la validité des approximations faites dans la théorie de l'effet est beaucoup moins sûre dans cette zone de pressions de vapeur (en particulier R n'est plus très supérieur à Λ). Si au contraire on attribue cet effet à des collisions entre atomes excités et atomes dans l'état fondamental, on peut admettre en première approximation que la largeur limite est la somme des largeurs $(3/10) (1/\tau)$ due à la diffusion multiple et $1/\tau_c$ due aux collisions, (τ_c était le temps moyen entre collisions). De τ_c on peut déduire le libre parcours moyen et la section efficace σ^2 que l'on trouve de l'ordre de $8 \cdot 10^{-13}$ cm². Cette valeur est 8 fois plus grande que celle donnée par Holstein pour les collisions $^{198}\text{Hg} - ^{199}\text{Hg}$ [13]. Cet ordre de grandeur semble donc raisonnable. Des investigations ultérieures dans ce domaine de pressions de vapeur seraient souhaitables ; en particulier des mesures faites en excitant ^{202}Hg dans le mercure naturel permettraient d'étudier le rôle des collisions entre isotopes différents.

3. Résonance magnétique et dépolarisation magnétique dans le cas des isotopes pairs [6, 8, 9]. — En utilisant 2 cellules identiques, les mêmes que

dans les expériences décrites ci-dessus, contenant l'une du mercure naturel et l'autre un mélange enrichi en ^{202}Hg , nous avons effectué des mesures comparées de T en fonction de N par les 2 méthodes de résonance magnétique et de dépolarisation magnétique (cf. II, paragr. 3). Le taux de polarisation P en fonction du champ H_0 satisfait bien aux diverses valeurs de N à une loi du type

$$P = \frac{P_0}{1 + 4\omega_0^2 T^2} \quad (\text{III},1) \quad \text{avec} \quad \omega_0 = \gamma H_0.$$

Les mesures de T par la résonance magnétique ont été effectuées à la fréquence de 144 MHz. (Les

conditions géométriques étaient aussi voisines que possibles, dans les 2 types de mesures, de celles des expériences décrites au paragr. 2.) La figure III,4 représente en fonction de N les diverses valeurs de T obtenues. Tous les points se groupent bien autour d'une même courbe, conformément au résultat théorique (d'après lequel les 2 méthodes doivent fournir la même valeur de T). L'accord entre la théorie et l'expérience est ici excellent. Notons toutefois les points de désaccord suivant :

a) P_0 , valeur en P en champ H_0 nul, est calculable théoriquement à partir de x , lui-même déterminé par le rapport τ/T ; or là encore, les valeurs

FIG. III,4.

expérimentales sont plus faibles que les valeurs théoriques et ne tendent pas vers 100 pour N très faible ; en outre il est ici impossible de concilier les résultats théoriques et expérimentaux en faisant subir à ces derniers une correction analogue à celle du paragr. 2 (multiplication par un facteur constant). La raison de ce désaccord n'est pas comprise. Par contre, conformément aux prévisions, P_π et P_0 ont la même valeur pour une valeur de N donnée.

b) A forte concentration ($N = 2.10^{13}$ atomes/cm³), la résonance magnétique donne $T = 3,40.10^{-7}$ sec et la dépolarisation magnétique $T < 3.10^{-7}$ sec. Il est difficile de préciser s'il s'agit d'un désaccord réel ou si les mesures dans cette zone de pressions sont fortement erronées

(P_0 étant faible, les mesures de T par mesure de P sont peu sûres). C'est pourquoi les mesures n'ont pas été poursuivies aux pressions de vapeur plus élevées.

4) Étude d'effets dépendant de la géométrie. —

Quelques effets dépendant de la géométrie du montage ont été étudiés en utilisant une cellule de dimensions plus grandes que les cellules usuelles (cube de 4,2 cm d'arête) contenant du mercure naturel dans lequel on excitait sélectivement l'isotope ^{202}Hg . Au lieu d'utiliser un faisceau d'excitation parallèle, on formait l'image de la lampe à l'intérieur de la cellule, soit au niveau des diaphragmes de détection (position I de la lampe), soit dans une autre région bien déterminée de la cellule (position II de la lampe) de telle sorte que le fais-

ceau excitateur ne passe pas au niveau de ces diaphragmes. En principe, lorsque la lampe était en position II, les photomultiplicateurs n'auraient pas dû recevoir de photons résultant d'un phénomène de résonance optique simple (diffusion simple), mais uniquement des photons ayant été diffusés 2 fois au moins. En pratique, il y a toujours réflexion et diffusion par les parois de la cellule de la lumière incidente et de la lumière de résonance optique simple ; celle-ci arrivait donc malgré tout aux photomultiplicateurs, mais son intensité était considérablement réduite. Grossièrement, on pouvait prévoir des raies de résonance magnétique résultant de la différence de 2 raies de Majorana-Brossel, l'une correspondant à la superposition de tous les ordres de diffusion multiple, l'autre (avec la largeur naturelle $1/\tau$) à la diffusion simple, dont les amplitudes relatives étaient *a priori* inconnues. Dans ces conditions, aucune vérification quantitative de la forme de raie n'a été entreprise. Nous nous sommes contentés de mesurer en fonction de N les largeurs limites pour H_1 nul des réseaux obtenus avec la lampe en position I et II ; on en déduisait des paramètres T_I et T_{II} et on constate

FIG. III,5.

que $T_{II} > T_I$ à la même valeur de N (fig. III,5). En outre, les réseaux de type II ne peuvent absolument pas être représentés par une formule de Majorana-Brossel. Ces résultats sont qualitativement conformes aux prévisions ; il semble impossible de comprendre autrement que par la diffusion multiple (par exemple par l'intervention de collisions) ces effets qui dépendent uniquement de la géométrie du montage.

5. Expériences de diffusion double [7, 8, 9]. —

Pour confirmer de façon particulièrement frappante l'interprétation donnée, nous avons étudié les formes des raies de résonance magnétique dans le cas où tous les photons de résonance optique ont été diffusés 2 fois par les atomes soumis à la résonance magnétique. Dans cette expérience nous utilisons 2 cellules cubiques de 2,4 cm d'arête, juxtaposées ; la droite joignant leurs centres est perpendiculaire au champ magnétique statique H_0 . Les cellules sont remplies de mercure naturel dans lequel on excite l'isotope ^{202}Hg . Des diaphragmes permettent de n'exciter optiquement que la cellule I, mais de n'observer que la lumière de résonance optique réémise par la cellule II. La pression de vapeur est telle dans chaque cellule que la diffusion multiple y est négligeable devant la diffusion simple (température du queusot inférieure à -20°C , c'est-à-dire $N < 2 \cdot 10^{11}$ atomes par cm^3). Ainsi les photons observés issus de la cellule II illuminée par la résonance optique de la cellule I ont été diffusés 2 fois et 2 fois seulement. En condensant dans l'azote liquide le mercure d'une seule cellule, on constate toutefois que le signal ne s'annule pas complètement, en raison de diffusions et de réflexions parasites ; le signal résiduel est très faible et constitue une petite correction aux résultats bruts des mesures

Ainsi que nous l'avons vu (cf. II, paragr. 3, Remarque), si la droite joignant les 2 atomes qui diffusent successivement le même photon a une répartition isotrope dans l'espace (c'est pratiquement le cas pour 2 cellules très voisines) la contribution de la diffusion double à la raie de résonance magnétique est proportionnelle à (II,26)

$$B^{(2)}(\Omega, \gamma H_1, \tau) = \frac{\partial}{\partial \tau} [\tau B(\Omega, \gamma H_1, \tau)]. \quad (\text{III},2)$$

La largeur limite des courbes théoriques pour H_1 nul correspond à une valeur $T_2 = 1,47 \tau = 1,74 \cdot 10^{-7}$ sec. La largeur ΔH est donnée en fonction de H_1 par :

$$\Delta H^2 = 0,46 \times \frac{4}{\gamma^2 \tau^2} [1 + 11,77 (\gamma H_1 \tau)^2]. \quad (\text{III},3)$$

D'autre part, l'amplitude à la résonance est

$$B^{(2)}(0, \gamma H_1, \tau) = B^{(2)}(0) = \frac{K \rho^2 (4\rho^2 + 3)}{(4\rho^2 + 1)^2}. \quad (\text{III},4)$$

Elle présente un maximum quand H_1 croît, puis tend vers sa limite en décroissant ; la courbe $y^{(2)} = \frac{H_1^2}{B^{(2)}(0)}$ en fonction de H_1^2 a l'allure d'une parabole.

Nous avons tracé 5 réseaux expérimentaux de courbes de résonance en diffusion double. Les valeurs obtenues pour $T_2 \times 10^7$ ont été :

$$1,69, \quad 1,70, \quad 1,71, \quad 1,77, \quad 1,73 \text{ secondes.}$$

Sur la figure (III,6), les courbes d'un réseau

théorique sont comparées aux points expérimentaux ; H_1 étant mesuré en valeur relative, 2 paramètres seulement sont nécessaires pour ajuster le réseau théorique au réseau expérimental (la valeur absolue de H_1 pour une courbe et un facteur multiplicatif d'ensemble). L'accord est bon et les faibles désaccords peuvent être attribués au caractère non parfaitement isotrope de la diffusion double dans notre expérience. La diminution de $B_2(0)$ quand H_1 devient très grand a été également observée. Ainsi les courbes ne peuvent absolument pas être représentées par la formule de Majorana-Brossel, mais sont bien représentées par la formule (III,2).

FIG. III,6.

L'importance de la cohérence de phase sur la forme des raies se manifeste également si l'on interpose une lame de quartz cristallin entre les 2 cellules. Les rayonnements π et σ émis par la cellule I sont perturbés (en différence de phase et dans leur état de polarisation) de façon différente avant d'exciter les atomes de la cellule II. Les formes des raies de résonance magnétique sont considérablement modifiées. Il est nécessaire pour introduire la lame d'écarter légèrement les 2 cellules. Le champ magnétique est alors insuffisamment uniforme sur le volume qu'elles occupent et les raies peuvent devenir nettement dissymétriques. Les expériences ne peuvent être que qualitatives et nous avons opéré avec les 2 gouttes de mercure à 0 °C. Le signal est ainsi rendu plus grand, mais la

diffusion multiple est très appréciable dans chaque cellule.

6. Résonance magnétique de l'ensemble des isotopes pairs dans le mercure naturel. — Les premières expériences de Brossel [12] puis de Blamont [4] portaient sur la résonance magnétique des isotopes pairs dans le mercure naturel, l'excitation optique venant d'une source à mercure naturel (arc Gallois) se rapprochant des conditions d'émission « broad line » ou « narrow line » selon les cas. Or nous savons maintenant que l'excitation sélective d'un isotope pair dans un mélange isotopique donne des courbes de résonance magnétique ayant la forme de Majorana-Brossel et que chaque isotope se comporte dans le mélange comme s'il était seul. Les courbes observées par Brossel et Blamont ne peuvent donc être que la superposition par addition des courbes correspondant à l'excitation sélective de chaque isotope ; le réseau observé doit être la superposition par addition d'autant de réseaux qu'il y a d'isotopes pairs avec des valeurs de T différentes. Or Brossel et Blamont avaient trouvé des réseaux de courbes en excellent accord avec la forme théorique de Majorana-Brossel. Ce résultat doit être considéré comme une coïncidence ; il doit être en effet très difficile, pratiquement impossible, de distinguer entre un véritable réseau de Majorana-Brossel et un réseau résultant de la superposition par addition de plusieurs autres ayant des largeurs limites assez voisines. Cette interprétation a été vérifiée par M. A. Guiochon [4, 9]. Nous renvoyons, pour le détail de la vérification, aux publications précédentes. L'accord entre les prévisions et les résultats expérimentaux est excellent.

7. Résonance magnétique sur le niveau $F = 3/2$ de l'isotope ^{199}Hg (1). — Le spin nucléaire de l'isotope ^{199}Hg est $I = 1/2$. Le niveau 6^3P_1 est décomposé en 2 niveaux hyperfins, avec les nombres quantiques $F = 1/2$ et $F = 3/2$; la structure hyperfine est $\eta \simeq 22\,000$ MHz. En champ magnétique faible et en excitation lumineuse σ la résonance magnétique n'est observable que sur le niveau $F = 3/2$; le calcul des effets de la diffusion multiple n'a été fait que dans le cas des champs très faibles, lorsque la largeur naturelle des sous-niveaux Zeeman est grande devant les écarts à l'équidistance dus au découplage $I \cdot J$. Les distances des sous-niveaux $F = 3/2$ sont données par les formules valables au 2^e ordre près en ν'/η :

$$\begin{cases} \nu \left(\pm \frac{3}{2} \right) \approx \nu' \left(1 \mp \frac{1}{2} \frac{\nu'}{\eta} \right) \\ \nu \left(-\frac{1}{2} \right) \approx \nu' \end{cases} \quad (\text{III},5)$$

(1) Les mesures ont été effectuées par M^{lle} F. Boutron [5].

où $\nu' = \frac{eH_0}{4\pi mc}$ (III,6), fréquence de Larmor dans le champ H_0 . La distance des résonances extrêmes $\delta\nu = \nu'^2/\eta$ à la fréquence de 14,48 MHz choisie est 9,6 kHz, soit $7 \cdot 10^{-3}$ de la largeur naturelle de la raie. Les effets de l'écartement des résonances sont du second ordre en $\pi T \delta\nu$, lui-même de l'ordre de $5 \cdot 10^{-3}$, et peuvent être alors négligés.

Mais à cette fréquence, la distance des raies des isotopes pairs et du niveau $F = 3/2$ de l'isotope ^{199}Hg est de l'ordre de leurs largeurs. Dans les conditions d'excitation optique utilisées (mélange enrichi en ^{199}Hg , excité par une lampe contenant ce mélange, en présence de filtres contenant des mélanges enrichis en ^{199}Hg , ^{200}Hg et ^{201}Hg), l'intensité de la raie des isotopes pairs restait de l'ordre

FIG III,7.

de 1/10 de celle du ^{199}Hg , et rendait celle-ci dissymétrique. Une correction était nécessaire dont le détail est donné dans les références 5 et 9.

Les mesures de résonance magnétique étaient en général difficiles. Le rapport signal sur bruit, de l'ordre de 40 aux basses pressions de vapeur, diminuait jusqu'à 4 ou 3 aux pressions les plus élevées atteintes (pour lesquelles $N \simeq 2 \cdot 10^{13}$). Cette diminution est liée à celles du taux de polarisation et du rapport de la résonance magnétique au signal de résonance optique. Dans la limite des erreurs, les réseaux de courbes de résonance expérimentales satisfont bien à une loi de Majorana-Brossel. Nous estimons que la précision des mesures de T reste de l'ordre de 3 à 4 %, sauf aux pressions de vapeur les plus élevées où elle est assurément moins bonne.

La valeur limite de $T_{I=1/2, F=3/2}$ pour N très faible est bien la même ($\tau = 1,18 \cdot 10^{-7}$ sec) que dans le cas des isotopes pairs, considérée comme la

durée de vie vraie du niveau 6^3P_1 . La courbe donnant $T_{I=0, F=1}$ en fonction de N (dans le cas des isotopes pairs) avec les conditions géométriques de ce montage a été également tracée (par excitation sélective de ^{198}Hg ou ^{200}Hg dans le mélange). Des valeurs expérimentales de $T_{I=0, F=1}$ et des formules du tableau 1 donné dans II se déduisent les valeurs attendues pour $T_{I=1/2, F=3/2}$.

$$T_{I=1/2, F=3/2}(N) = \frac{2\tau T_{I=0, F=1}(2N/3)}{\tau + T_{I=0, F=1}(2N/3)}. \quad (\text{III},7)$$

La figure III,7 permet de les comparer aux valeurs expérimentales. L'accord est satisfaisant.

Nous avons mesuré également le taux de polarisation P_0 de la lumière de résonance optique. En supposant que l'excitation lumineuse a la même intensité sur les 2 composantes hyperfines de la raie du ^{199}Hg (excitation de type « broad line »), on peut calculer à partir des valeurs expérimentales

tales de $T_{I=0, F=1}$ les valeurs attendues pour P_0 (cf. II, tableau 2) ; l'accord est encore suffisamment bon, étant donné l'imprécision des mesures et les approximations faites.

8) **Résonance magnétique sur le niveau $F = 5/2$ de l'isotope ^{201}Hg [5, 8, 9].** — Le spin nucléaire de cet isotope est $I = 3/2$. La distance des sous-niveaux hyperfins $F = 5/2$ et $F = 3/2$ est $\eta \simeq 14\,000$ MHz. Les distances des sous-niveaux Zeeman du niveau $F = 5/2$ sont données par les formules valables au 2^e ordre près en ν'/η .

$$\begin{cases} \nu\left(\pm \frac{5}{2} \rightleftharpoons \pm \frac{3}{2}\right) \simeq \frac{3}{5} \nu' \left(1 \pm \frac{9}{10} \frac{\nu'}{\eta}\right) \\ \nu\left(\pm \frac{3}{2} \rightleftharpoons \pm \frac{1}{2}\right) \simeq \frac{3}{5} \nu' \left(1 \pm \frac{9}{20} \frac{\nu'}{\eta}\right) \\ \nu\left(-\frac{1}{2} \rightleftharpoons +\frac{1}{2}\right) \simeq \frac{3}{5} \nu' \end{cases} \quad (\text{III},8)$$

ν' étant donné par (III,6).

A la fréquence choisie de 14,48 MHz, l'écart à l'équidistance des niveaux lorsque le champ magnétique a la valeur de résonance n'est que $1,7 \cdot 10^{-2}$ de la largeur naturelle d'un sous-niveau. On peut donc

FIG. III,8

s'attendre encore dans ce cas à la validité des résultats de II : la raie doit avoir la forme de Majorana-Brossel, la durée de cohérence $T_{I=3/2, F=5/2}$ étant liée par la formule

$$T_{I=3/2, F=5/2} = \frac{25 \tau T_{I=0, F=1} \left(\frac{N}{2}\right)}{7\tau + 18 T_{I=0, F=1} \left(\frac{N}{2}\right)} \quad (\text{III},9)$$

à la durée de cohérence $T_{I=0, F=1}$ des isotopes pairs.

Le mélange isotopique utilisé était enrichi en ^{201}Hg contenant 1,2 % de ^{204}Hg . La source lumineuse contenait un mélange enrichi à 98 % en ^{204}Hg ; elle excitait ainsi sélectivement le niveau $F = 5/2$ de l'isotope ^{201}Hg et le ^{204}Hg présent

dans la cellule [10]. On observe donc à la fois les 2 signaux de résonance magnétique correspondants. Il y a encore dans ce cas recouvrement partiel entre les ailes des 2 raies qui sont rendues légèrement dissymétrique. Une correction est donc nécessaire pour déterminer la durée de cohérence cherchée de l'isotope ^{201}Hg . Le détail en a été donné dans les publications antérieures [5, 9].

Le rapport signal sur bruit était légèrement supérieur à celui que l'on observait dans le cas de l'isotope ^{199}Hg . Mais les dérives des signaux étaient considérables étant donné les instabilités de la lampe employée, et les corrections effectuées sont peu sûres. Nous estimons que la précision est du même ordre que dans le cas de l'isotope H^{199}g .

Les réseaux corrigés obtenus satisfaisaient bien à la formule de Majorana-Brossel. La figure III,8 résume les résultats ; nous avons mesuré sur la même cellule $T_{I=0, F=1}$ en fonction de N par excitation sélective de l'isotope ^{202}Hg et la formule (III,9) donne les valeurs attendues pour $T_{I=3/2, F=5/2}$, en bon accord avec les résultats expérimentaux. La valeur limite aux basses pressions de vapeur est encore $\tau = 1,18 \cdot 10^{-7}$ sec.

9. Résonance magnétique sur le niveau $F = 3/2$ de l'isotope ^{201}Hg . — Les fréquences des transitions sont données cette fois par

$$\begin{cases} \nu \left(\pm \frac{3}{2} \right) \approx \frac{2}{5} \nu' \left(1 + \frac{68}{15} \frac{\nu'}{\eta} \right) \\ \nu \left(\pm \frac{1}{2} \right) \approx \frac{2}{5} \nu'. \end{cases} \quad (\text{III},10)$$

FIG III,9. $T - f(\log N)$, N , nombre d'atomes diffusants par cm^3 Isotope ^{201}Hg , Niveau $F = 3/2$.

l'absence de diffusion multiple. Nous avons constaté que les réseaux obtenus différaient légèrement de réseaux de Majorana-Brossel. Les largeurs limites donnaient des valeurs de T plus petites que les valeurs prévues théoriquement par la formule

$$T_{I=3/2, F=3/2} = \frac{25\tau T_{I=0, F=1} \left(\frac{N}{3} \right)}{8\tau + 17 T_{I=0, F=1} \left(\frac{N}{3} \right)} \quad (\text{III},11)$$

(élargissement par le découplage I, J). L'écartement augmente à une pression de vapeur déterminée quand la fréquence augmente, et semble augmenter à fréquence fixe avec la pression de vapeur (cette dernière augmentation est à la limite des erreurs de mesure) (cf. fig. III,9).

En l'absence de diffusion multiple, on peut montrer qu'aux très faibles niveaux de radiofréquence (H_1 étant considéré comme une très faible perturbation) la raie observée doit être une superposition par addition de 2 raies de Lorentz,

L'excitation sélective de la composante hyperfine correspondante et de la composante de l'isotope ^{198}Hg présent dans la cellule se fait à l'aide d'une lampe contenant l'isotope ^{198}Hg pratiquement pur. Les conditions des mesures sont les mêmes que dans le cas du niveau $F = 5/2$ et les corrections nécessaires sont faites de la même manière.

Une différence importante existe cependant : aux fréquences utilisées qui séparent de manière suffisante la raie de l'isotope pair ^{198}Hg et celle du niveau $F = 3/2$ de l'isotope ^{201}Hg que l'on étudie, les champs résonnants sont assez grands pour que le découplage I, J ne soit plus négligeable dans ce niveau. L'écart des niveaux à l'équidistance vaut aux 3 fréquences utilisées (11,9 MHz, 14,48 MHz et 19 MHz) respectivement 1,4 %, 2 % et 3,5 % de la largeur naturelle de la raie. Dans ce cas, le calcul de la forme de raie est inextricable, même en

ayant la largeur naturelle, centrées sur les champs résonnants des transitions $m = \pm 3/2 \rightarrow \pm 1/2$. On s'attend alors à une largeur limite

$$\Delta\omega = \frac{2}{\tau} \left[1 + \frac{1}{6} \left(\frac{68 \pi \nu^2}{\eta \Gamma} \right)^2 \right].$$

Il en résulte une durée de vie apparente lorsque la fréquence résonnante est $\nu : \tau_\nu \simeq \tau(1 + \alpha \nu^4)$ avec théoriquement $\alpha = -0,56 \cdot 10^{-6}$, ν étant exprimé en MHz. Les 3 valeurs obtenues pour τ_ν aux faibles valeurs de N aux 3 fréquences choisies ont permis de déterminer τ et α expérimentalement par la méthode des moindres carrés. Nous avons trouvé $\tau = 1,18 \cdot 10^{-7}$ sec et $\alpha = -0,78 \cdot 10^{-6}$. La durée de vie vraie du niveau a bien la valeur prévue et nous estimons satisfaisant l'accord des 2 valeurs de α .

10. Dépolarisation magnétique dans le cas de l'isotope ^{201}Hg . — Avec le mélange isotopique, utilisé dans les mesures de résonance magnétique

il est pratiquement impossible de mesurer T par la méthode de dépolarisation magnétique dans le cas de l'isotope ^{201}Hg . En effet, si l'on excite sélectivement les niveaux $F = 3/2$ et $F = 5/2$ au moyen de sources enrichies en ^{198}Hg et ^{204}Hg respectivement, la résonance optique observée résulte de la diffusion des photons par l'isotope pair et l'isotope ^{201}Hg à étudier. La courbe donnant le taux de polarisation P en fonction du champ H_0 autour de la valeur $H_0 = 0$ résulte de la superposition des courbes des deux isotopes ; chacun a une largeur différente (pour T donné, la largeur est inversement proportionnelle au facteur de Landé g) et la largeur de la courbe observée ne permet pas d'obtenir de renseignements sur les isotopes pris séparément. Nous avons tenté les mesures avec un mélange isotopique fourni par le C. E. A. qui contient un pourcentage particulièrement faible des isotopes ^{204}Hg et ^{198}Hg .

Les résultats ont été satisfaisants dans l'ensemble, bien que perturbés encore par la présence de l'isotope pair, principalement aux pressions de vapeur élevées (la lumière de résonance de l'isotope impair étant presque totalement dépolarisée, celle de l'isotope pair prend de plus en plus d'importance quand la pression de vapeur augmente).

Conclusion. — Nous estimons, en résumé, avoir établi les faits suivants :

— Dans le cas du mercure, et au moins dans la zone de densités de vapeur étudiée ($10^{10} < N < 2 \times 10^{13}$ atomes par cm^3), la diffusion multiple des photons de la raie de résonance $2\ 537\ \text{\AA}$ est responsable quand N augmente : *a*) de l'affinement des raies de résonance magnétique observé ; *b*) de l'affinement des courbes de dépolarisation magnétique en champ magnétique faible et de l'augmentation de la durée de vie apparente T du niveau $6\ ^3P_1$ mesuré par ces deux méthodes ; *c*) de la diminution du taux de polarisation P de la lumière de résonance optique.

— Dans les conditions précédentes, les collisions interatomiques n'interviennent pas dans ces divers effets.

— La théorie développée permet de rendre compte qualitativement et quantitativement de ces effets moyennant un certain nombre d'approximations et de simplifications. En particulier, nous avons obtenu des formules reliant entre elles les grandeurs T et P correspondant aux différents niveaux hyperfins des isotopes du mercure. Les résultats expérimentaux sont en général en bon accord avec les prévisions théoriques.

— La durée de vie vraie du niveau $6\ ^3P_1$ est $\tau = (118 \pm 0,02) \cdot 10^{-7}$ sec, la même pour tous les niveaux hyperfins de tous les isotopes étudiés.

Dans le cas particulier où l'on isole des photons ayant été diffusés deux fois par les atomes de mercure, la forme de la raie de résonance magnétique

observée et sa largeur sont celles que prévoient les résultats théoriques.

— Si l'on excite le mélange d'isotopes pairs contenu dans le mercure naturel par une source contenant ce même mélange, la forme de la raie ne peut être pratiquement distinguée d'une forme théorique de Majorana-Brossel, ce qui permet de comprendre les résultats de Brossel et de Blamont.

Pratiquement, peu d'applications de ces résultats peuvent être envisagées. Il est difficile de se servir de l'affinement des raies pour améliorer la précision de la mesure du rapport gyromagnétique du niveau $6\ ^3P_1$ du mercure : lorsque la largeur des raies devient 2 ou 3 fois plus petite que la largeur naturelle du niveau, le rapport signal sur bruit devient très mauvais et la mesure devient plutôt moins précise. Un optimum de précision semble atteint pour une densité de vapeur correspondant à une température du queusot voisine de $0\ ^\circ\text{C}$; ce sont les conditions expérimentales utilisées par Brossel dont nous n'avons pas tenté d'améliorer le résultat.

Nous noterons aussi que l'importance particulière du phénomène dans le cas des isotopes pairs du mercure est liée à l'existence d'un niveau fondamental dans lequel $J = 0$. Il en résulte d'une part une valeur en général assez élevée du taux de polarisation, même lorsque la diffusion multiple est importante, ce qui rend les mesures relativement faciles. D'autre part, on conçoit physiquement que l'absence de structure Zeeman dans l'état fondamental facilite les effets de cohérence dans la diffusion multiple, si bien que l'affinement de la raie est très important. Avec un isotope impair, un atome peut tomber dans le sous-niveau Zeeman $|\mu\rangle$ en émettant un photon qui excite un 2^{e} atome situé primitivement dans le sous-niveau Zeeman $|\mu'\rangle$; si $\mu' \neq \mu$, il est clair qu'un tel processus a beaucoup moins de chances de maintenir la cohérence et de contribuer à l'affinement de la raie que si $\mu' = \mu$. La théorie (cf. II, tableau 1), en accord avec l'expérience (cf. III), prévoit effectivement une augmentation de la durée de cohérence beaucoup plus importante dans le cas des isotopes pairs que dans le cas des isotopes à spin nucléaire. Par contre, la diminution du taux de polarisation est plus rapide pour les isotopes impairs, et les mesures sont beaucoup plus difficiles.

Il en résulte en particulier qu'il semble difficile d'étendre les applications de ces résultats à d'autres éléments que le mercure ou ceux du groupe II de la classification périodique. Pour les éléments tels que les métaux alcalins, dont les moments angulaires sont élevés dans le niveau fondamental et le niveau excité, l'effet n'est sans doute pas aussi important. Notons en outre que les hypothèses faites au cours de notre calcul ne sont généralement plus valables dans ce cas (par exemple la structure hyperfine peut être inférieure à l'effet Doppler ou être du même

ordre, si bien que les diverses composantes hyperfines ne sont pas bien isolées dans le spectre). Toutefois, nous pensons utile de faire remarquer que des effets de cohérence, analogues à ceux que nous avons observés, pourront se produire chaque fois qu'une excitation passera par l'intermédiaire du rayonnement électromagnétique d'un système atomique à un autre identique, dans des cas beaucoup plus généraux que celui du rayonnement de résonance (propagation des excitons dans les solides par exemple). Mais il faudra, pour observer ces effets, réaliser des conditions telles que la fonction d'onde de chaque système soit une superposition cohérente des différents états propres de l'énergie.

Il serait souhaitable également d'étendre les calculs et les résultats expérimentaux au cas où l'effet Zeeman devient grand devant la largeur Doppler de la raie optique (isotopes pairs du mercure en champ magnétique intense), — ou dans le cas de niveaux non équidistants (isotopes impairs en champ moyen ou cas de l'effet Stark, même pour les isotopes pairs) — et enfin dans le cas où on étudie des transitions hyperfines $\Delta F = 1$. Nous pensons aussi que l'étude des élargissements de raie que l'on observe aux pressions de vapeur élevées mérite d'être développée, permettant ainsi de confirmer la réalité de cet effet et d'en déterminer l'origine.

Manuscrit reçu le 10 mars 1959.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] BARRAT (J. P.), *J. Physique Rad.*, 1959, **21**, 541, désigné dans la suite par I.
- [2] BARRAT (J. P.), *J. Physique Rad.*, 1959, **21**, 633, désigné dans la suite par II.
- [3] ROLLET (N.), Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1955. ROLLET (N.), BROUSSEL (J.) et KASTLER (A.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **242**, 240.
- [4] GUIOCHON (M. A.), Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1956. BLAMONT (J. E.), *Thèse*, 1957 ; *Ann. Physique*, 1957, **2**, 551. GUIOCHON (M. A.), BLAMONT (J. E.) et BROUSSEL (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **243**, 1859 ; *J. Physique Rad.*, 1957, **18**, 99.
- [5] BOUTRON (F.), Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1957. BOUTRON (F.), BARRAT (J. P.) et BROUSSEL (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957, **245**, 2250.
- [6] BARRAT (J. P.), *C. R. Acad. Sc.*, 1957 **244**, 2785.
- [7] BARRAT (J. P.) et BROUSSEL (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **246**, 2744.
- [8] BARRAT (J. P.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 858.
- [9] BARRAT (J. P.), *Thèse*, Paris, 1959, n° de microfilm C. N. R. S., 38808.
- [10] SCHULER (H.) et KEYSTON (J. E.), *Z. Physik*, 1931, **72**, 423. SCHULER (H.) et JONES (E. G.), *Z. Physik*, 1932, **74**, 631. BITTER (F.), *Phys. Rev.*, 1954, **96**, 1531. SAGALYN (P.), MELISSINOS (A. C.) et BITTER (F.), *Phys. Rev.*, 1958, **109**, 375.
- [11] Voir MITCHELL et ZEMANSKY, "Resonance Radiation and Excited Atoms", ch. V.
- [12] BROUSSEL (J.), *Thèse*, Paris, 1952 ; *Ann. Physique*, 1952, **7**, 622.
- [13] HOLSTEIN (T.), ALPERT (D.) et MCCOUBREY (A. O.), *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 985.