LE JOURNAL DE PHYSIQUE

ET

LE RADIUM

RÉSONANCE MAGNÉTIQUE DE NIVEAUX ATOMIQUES EXCITÉS PAR BOMBARDEMENT ÉLECTRONIQUE

DEUXIÈME PARTIE

Par J. C. PÉBAY-PEYROULA,

Laboratoire de Physique de l'École Normale Supérieure.

Résumé. — Dans un article précédent, nous avons décrit les expériences permettant de mettre en évidence la résonance magnétique des niveaux $6\ ^3F_4$, $5d\ ^6s^2\ 6p\ ^1D_2$ et d'un niveau 3P_2 de l'atome de mercure excité par bombardement électronique.

Nous montrons que l'étude de la largeur des raies des isotopes pairs conduit à la durée de vie du niveau. Nous avons déterminé d'autre part les facteurs de Landé. Dans le cas des isotopes impairs ^{199}Hg et ^{201}Hg , nous avons étudié l'effet Back-Goudsmit et déduit un ordre de grandeur des structures hyperfines du niveau $6\ ^3F_4$.

Des résonances magnétiques ont été décelées par la même technique sur l'atome de sodium.

Abstract. — In a previous paper experiments have been described in which magnetic resonances of levels $6\ ^3F_4$, $5d\ ^6s^2\ 6p\ ^1D_2$ and 3P_2 of mercury were produced. Electron bombardment was used for exciting the levels.

It is shown that measurements of the width of the even isotope lines lead to the value of the lifetime of the level. Landé factors have also been determined.

In the case of the odd isotopes ^{199}Hg and ^{201}Hg , the Back-Goudsmit effect of the $6\ ^3F_4$ level has been studied. An approximate value of the hfs intervals of this level has been obtained.

The same technique has given positive results on some levels of the Na atom.

RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX ET INTERPRÉTATION

Expériences sur le mercure. — Les différentes expériences ont été faites sur des tubes électroniques remplis avec l'un des mélanges d'isotopes suivants :

	I	II	III
	(MERCURE NATUREL)		
	—	—	—
Isotopes pairs	69,8 %	24,65 %	11 %
199	17,0 %	73,10 %	0,8 %
201	13,2 %	2,35 %	88,2 %

I. ISOTOPES PAIRS. — *Étude de la forme de raie.*
— L'étude de la forme d'une raie de résonance magnétique a été étudiée en détail par Brossel et Bitter dans le cas du niveau $6\ ^3P_1$ du mercure [1], [2], [3]. Nous allons généraliser cette étude au cas d'un niveau quelconque.

Supposons que, dans un régime stationnaire d'excitation, le nombre d'atomes dans le sous-niveau Zeeman $m = p$ soit N_p , nous pouvons facilement calculer la grandeur $I_\pi - I_\sigma$, grandeur qui

nous est accessible grâce au montage en pont des photomultiplicateurs. On a :

$$I_\pi - I_\sigma = \sum_{p=-m}^{p=+m} N_p C_p \quad (I)$$

les C_p sont les différents coefficients numériques calculables à partir des probabilités de transition.

Envisageons une excitation par chocs électroniques ne durant que le temps dt à l'instant 0, n_p atomes sont portés par seconde dans l'état excité $m = p$. Au bout du temps t , par émission spontanée, le nombre d'atomes sera réduit à $n_p e^{-t/\tau}$ dt , puisque la durée de vie τ est la même pour tous les sous-niveaux Zeeman.

Si, dans ces conditions, nous établissons un champ de radiofréquence pendant le temps t , des atomes seront transférés des états $m = p$ aux états $m = q$ avec une probabilité $P(F, p, q, t)$ définie par ailleurs (*). La variation de population du niveau $m = p$ sera :

$$dn_p = \left[\sum_{q=-m}^{q=+m} P(F, p, q, t) n_q - \sum_{q=-m}^{q=+m} P(F, q, p, t) n_p \right] e^{-t/\tau} dt,$$

(*) L'expression de Majorana, $P(F, p, q, t)$, est donnée en particulier dans [2] et [3].

soit, comme $P(F, p, q, t) = P(F, q, p, t)$:

$$dn_p = \sum_q P(F, p, q, t) (n_q - n_p) e^{-t/\tau} dt.$$

Si l'excitation électronique se produit pendant longtemps, la variation de population du niveau $m = p$ sera :

$$\Delta n_p = \sum_q \int_0^\infty P(F, p, q, t) (n_q - n_p) e^{-t/\tau} dt.$$

D'après (I), le signal, lors de la résonance magnétique, est :

$$s = \Delta(I_\pi - I_\sigma) = \sum_p \Delta n_p C_p$$

soit

$$s = \sum_{p=-m}^{p=+m} \sum_{q=-m}^{q=+m} \int_0^\infty P(F, p, q, t) (n_q - n_p) C_p e^{-t/\tau} dt$$

la vitesse d'excitation se déduit du nombre N_p d'atomes dans un régime stationnaire par

$$n_p = \frac{N_p}{\tau}$$

Dans le cas des isotopes pairs, $F = J$, et est égal à un nombre entier. Les expressions des probabilités de transition sont de la forme :

$$P(F, p, q, t) = \sum_{n=1}^{n=2F} a_n^{pq} \left(\sin \frac{\alpha}{2}\right)^{2n} \left(\cos \frac{\alpha}{2}\right)^{4F-2n}$$

en posant

$$\left(\sin \frac{\alpha}{2}\right)^2 = P(1/2, 1/2, -1/2, t)$$

$$P(1/2, 1/2, -1/2, t)$$

$$= \frac{(\gamma H_1)^2}{(\gamma H_1)^2 + (\omega - \omega_0)^2} \sin^2 \frac{1}{2} \sqrt{(\gamma H_1)^2 + (\omega - \omega_0)^2} \cdot t$$

Les coefficients a_n^{pq} sont calculés à partir de la formule de Majorana.

Nous pouvons écrire le signal de résonance

$$s = \frac{1}{\tau} \sum_{p,q} \int_0^\infty a_n^{pq} \left(\sin \frac{\alpha}{2}\right)^{2n} \left(\cos \frac{\alpha}{2}\right)^{4F-2n} (N_q - N_p) C_p e^{-t/\tau} dt$$

et après sommation :

$$s = \frac{1}{\tau} \sum_n K_n \int_0^\infty \left(\sin \frac{\alpha}{2}\right)^{2n} e^{-t/\tau} dt. \quad (II)$$

L'évaluation des intégrales $\int_0^\infty \left(\sin \frac{\alpha}{2}\right)^{2n} e^{-t/\tau} dt$ est simple, et peut se faire par récurrence ; par contre l'évaluation des coefficients K_n est fastidieuse et demande la connaissance des populations N_p créées par bombardement électronique. Ces données étant pratiquement inaccessibles aussi bien par le calcul que par l'expérience l'étude précise de la forme de raies est impossible. Quelques conclusions, cependant, peuvent en être tirées.

Aux faibles niveaux de radiofréquence, le terme

en $\sin^2 \alpha$ est le seul important, les autres étant d'un ordre supérieur en γH_1^2 , on a donc :

$$s \approx \frac{A}{\tau} \int_0^\infty \left(\sin \frac{\alpha}{2}\right)^2 e^{-t/\tau} dt = \frac{1}{2} A \frac{(\gamma H_1)^2}{(\gamma H_1)^2 + \left(\frac{1}{\tau}\right)^2 + (\omega - \omega_0)^2}.$$

Cette raie est une raie de Lorentz, et sa largeur à mi-hauteur pour un champ de radiofréquence nul, est :

$$\Delta \omega_0 = 2\pi \nu_0 = \frac{2}{\tau}.$$

Pour une amplitude H_1 plus grande, les termes en $\left(\sin \frac{\alpha}{2}\right)^4$ et les termes supérieurs deviennent non négligeables, et la raie prend une forme complexe. A partir d'une certaine valeur du champ oscillant, elle présente un renversement, et l'aspect de la courbe est analogue à celui des courbes de résonance du niveau 6^3P_1 .

En fonction du niveau de radiofréquence, nous pouvons écrire la demi-largeur sous forme du développement limité :

$$\Delta \omega^2 = \Delta \omega_0^2 + a(\gamma H_1)^2 + b \dots$$

Dans le cas du niveau 6^3P_1 , Brossel a montré que les coefficients $b \dots$ sont négligeables, et il a calculé la valeur de a . L'ignorance de la valeur des N_p ne nous permet pas de préciser ce point. Seule l'expérience nous montre, qu'en portant le carré de la demi-largeur en fonction du carré du champ oscillant, les points sont généralement parfaitement alignés. La détermination de $\Delta \omega_0$ et, par suite, de la durée de vie τ , est ainsi très commode.

Lorsque l'on change la grandeur du champ magnétique oscillant, il se produit une modification de l'intensité lumineuse par suite de la variation de la vitesse des électrons et du débit électronique. L'étude de l'amplitude à résonance n'est donc pas possible expérimentalement.

Résultats expérimentaux. — Les trois niveaux identifiés dans le cas du mercure ont été étudiés systématiquement, afin de déterminer les facteurs de Landé et les durées de vie. De nombreuses mesures ont été faites à des fréquences différentes et nous avons été conduits, pour éviter le risque d'erreurs systématiques, à étudier l'influence de la structure fine :

Dans le cas du niveau 6^3F_4 , le champ de 80 gauss nécessaire pour détecter la résonance à 140 Mc/s environ, produit un découplage LS . Les courbes représentant les différents états magnétiques du niveau 6^3F ne pourront plus être confondues avec leurs tangentes à l'origine. On aura donc :

$$\omega = g \mu_B H_0 + a H_0^2 + b H_0^3 + \dots \quad (III)$$

les coefficients a et b dépendant de la transition

FIG. II.1. — Résonance du niveau 6^3F_4 du mercure. Isotopes pairs, $\nu = 140,4$ Mc/s. Pour chaque courbe, l'amplitude du champ oscillant est donnée en valeur relative.

FIG. II.2. — Niveau 6^3F_4 , $\nu = 25$ Mc/s. En ordonnée, le carré de la largeur à mi-hauteur (Mc/s)². L'abscisse est proportionnelle au carré de l'amplitude du champ de radiofréquence.

$m \rightarrow m'$. En opérant à fréquence constante en faisant varier le champ magnétique, les différentes résonances sont décalées et leur superposition pro-

FIG. II.3. — Résonance d'un niveau 3P_2 du mercure. Isotopes pairs, $\nu = 140,4$ Mc/s.

duira un élargissement apparent de la courbe résultante.

Un calcul approximatif [4] montre que, pour que l'erreur ainsi commise sur la largeur limite soit inférieure à 1 %, il est nécessaire d'opérer dans un

FIG. II.4. — Résonance du niveau $5d^9 6s^2 6p \ ^1D_2$ du mercure. Isotopes pairs, $\nu = 25$ Mc/s.

champ $H_0 < 40$ gauss, soit $\nu < 70$ Mc/s. La structure fine des niveaux 6^3F a été déduite des données numériques de Landolt et Börnstein [5]. Aucune

influence de cet effet n'a été constatée pour les niveaux 3P_2 et $5d^9 6s^2 6p^1 D_2$.

Les figures (II,1 ; II,3 ; II,4) montrent quelques exemples de réseaux que l'on a obtenus. Sur une même figure sont tracées différentes résonances correspondant à des niveaux différents de radio-fréquence. Le champ oscillant est repéré en valeur relative.

Chaque réseau de courbe est tracé deux fois

dans les mêmes conditions, mais en renversant le sens du courant magnétisant dans les bobines de Helmholtz. Une moyenne permet ainsi d'éliminer le champ magnétique terrestre.

Une des droites $(\Delta\omega)^2 = \frac{4}{(\tau)^2} + a(\gamma H_1)^2$ est représentée sur la figure II,2.

Les différents résultats obtenus peuvent être groupés dans le tableau :

NIVEAU		$\nu = 140,4 \text{ Mc/s}$	$\nu = 25 \text{ Mc/s}$
6^3F_4	g	$1,2477 \pm 0,0004$	$1,248 \pm 0,003$
	τ	$(3,97 \pm 0,12) \times 10^{-7} \text{ s}$	$(4,49 \pm 0,15) \times 10^{-7} \text{ s}$
3P_2	g	$1,4402 \pm 0,0007$	
	τ	$(2,11 \pm 0,08) \times 10^{-7} \text{ s}$	
1D_2	g	$1,1203 \pm 0,0003$	$1,121 \pm 0,001$
	τ	$(1,5 \pm 0,3) \times 10^{-6} \text{ s}$	$(1,58 \pm 0,16) \times 10^{-6} \text{ s}$

Remarques. — 1° La valeur de τ trouvée pour le niveau 6^3F_4 dans les expériences à 140 Mc/s est trop faible et est à rejeter : l'erreur provient des effets de découplage LS .

2° D'autres déterminations ont été effectuées dans le cas du niveau 6^3F_4 aux fréquences de 50, 238, 307,8 et 594 Mc/s. L'accord sur le facteur de Landé est toujours excellent à la précision de ces mesures, précision qui devient médiocre en champ élevé par suite de l'échauffement des bobines de Helmholtz produisant une déformation des bobines et une modification de l'étalonnage. En outre, la mesure de la durée de vie n'a plus aucun sens, l'élargissement devenant de plus en plus important ; à 594 Mc/s la largeur limite est environ 3 fois plus grande qu'à 25 Mc/s.

3° Lorsque l'on peut négliger dans l'expression (III) les termes en bH_0^2 , l'élargissement par effet de découplage est symétrique autour de la position déduite de $\omega = g\mu_B H_0$. La détermination du facteur de Landé n'est pas, dans ces conditions, affectée par l'élargissement des courbes de résonances.

4° Des mesures ont été faites à des pressions de vapeur variées en modifiant la température de la goutte de mercure. Aucune variation de la durée de vie n'a été constatée (effets de diffusion multiple négligeables) [6].

II. ISOTOPES IMPAIRS. — L'étude en champ faible des différentes résonances des isotopes 199 et 201 nous a permis, par l'étude des facteurs de Landé, de préciser l'identification de certains niveaux. En champ plus élevé, le découplage IJ n'est pas négligeable, les différentes transitions $m \rightarrow m'$ se produisent à des champs magnétiques différents. Chacune de ces raies se traduira par une très petite variation du taux de polarisation, le rapport signal/bruit est par suite très mauvais, et

les résonances sont difficiles à identifier au milieu du bruit.

Expérimentalement, l'étude du couplage n'a pu être faite que dans le cas du niveau 6^3F_4 .

A. Étude du découplage dans le cas de l'isotope 199 pour le niveau 6^3F_4 .

Résultats expérimentaux. — Ce niveau possède deux sous-niveaux hyperfins $F = 7/2$ et $F = 9/2$ dont les facteurs de Landé sont :

$$g_F = g_J \frac{F(F+1) + J(J+1) - I(I+1)}{2F(F+1)} - \frac{g_I}{1837} \frac{F(F+1) + I(I+1) - J(J+1)}{2F(F+1)}. \quad (\text{IV})$$

En négligeant le deuxième terme, nous pouvons écrire :

$$\begin{aligned} g_{9/2} &= 1,25 \times 8/9 = 1,1111 \\ g_{7/2} &= 1,25 \times 10/9 = 1,39888. \end{aligned}$$

En champ faible, l'effet de découplage se traduit par un élargissement de la résonance, élargissement symétrique de part et d'autre du champ magnétique correspondant au facteur de Landé g_F . Dans ces conditions, nous avons trouvé, à 140 Mc/s :

$$g_F(9/2) = 1,1082 \pm 0,0005 \quad g_F(7/2) = 1,3850 \pm 0,0005$$

soit

$$\text{niveau } 9/2 \quad \frac{g_F}{g_J} = 0,8887 \pm 0,0003.$$

$$\text{Valeur théorique : } 0,8888$$

$$\text{niveau } 7/2 \quad \frac{g_F}{g_J} = 1,1113 \pm 0,0003.$$

$$\text{Valeur théorique : } 1,1111.$$

L'accord est donc excellent.

À la fréquence de 594 Mc/s, les différentes transitions $m \rightarrow m'$ sont résolues. La figure II,6 représente l'ensemble des résonances du niveau $F = 9/2$

FIG. II.5. — Niveau 6^3F_4 , ^{199}Hg .

dans ces conditions, avec un niveau de radiofréquence élevé. La seule explication compatible avec la position des résonances est la suivante :

Les transitions D sont des résonances doubles correspondant à des transitions à deux quanta $\Delta m = 2$.

Les transitions T sont des résonances $\Delta m = 3$ correspondant à la transition à trois quanta. Elles n'apparaissent pas sur des courbes tracées à un niveau de radiofréquence plus faible.

Les flèches en pointillé marquent les positions déduites pour les résonances simples. Nous n'avons pas pu obtenir des courbes où seules les résonances simples apparaissent : lorsque le niveau de radiofréquence est faible, le rapport signal/bruit devient très mauvais, et l'étude devient impossible.

Par une interprétation qualitative des intensités relatives des trois résonances doubles $9/2 \leftrightarrow 5/2$, $7/2 \leftrightarrow 3/2$, $5/2 \leftrightarrow 1/2$, et des deux résonances triples, nous sommes conduits à admettre une répartition de population dans les sous-niveaux

FIG. II.6. — Résonance du niveau 6^3F_4 , $F = 9/2$, ^{199}Hg , $\nu = 594 \text{ Mc/s}$, D = résonances doubles, T = résonances triples. Les flèches en pointillé dans la partie supérieure de la figure indiquent les positions prévues pour les résonances simples.

Les flèches dans la partie inférieure de la figure indiquent les positions théoriques des résonances doubles lorsque l'on prend $\Delta\nu = 5\,800 \text{ Mc/s}$.

FIG. II.7. — En ordonnée, la population relative des sous-niveaux Zeeman du niveau 6^3F_4 , $F = 9/2$, ^{199}Hg .

excités ayant l'aspect de celle donnée par la figure II.7. Une étude précise serait très intéressante à ce point de vue, mais les niveaux énergétiques ne sont pas, comme dans le cas des isotopes pairs, en l'absence du découplage LS équidistants, et l'écart de fréquence entre deux transitions voisines est supérieure à leur largeur. Il est donc impossible d'employer, pour l'étude de ces phénomènes, les formules de Majorana. La méthode de M^{lle} Besset, Messiah, Horowitz et Winter [7] qui pourrait s'appliquer, est dans ce cas d'une extrême complexité.

Étude du niveau $9/2$. — Les équations des courbes composant le diagramme Zeeman sont obtenues à l'aide d'un calcul classique [4]. En

négligeant le découplage LS , nous sommes conduits à diagonaliser l'opérateur.

$$\mathcal{H} = \frac{e}{2mc} (g_J \mathbf{J} + g_I \mathbf{I}) H_0 + A \mathbf{I} \cdot \mathbf{J}.$$

Si l'on pose, en vue de simplifier les équations,

$$y = \nu/A \quad \text{et} \quad x = g_J \frac{e}{2mc} \frac{H_0}{A}$$

nous obtenons

$$m = \pm 9/2 \quad y = 2 \pm 4x$$

$$m = \pm 7/2 \quad (y + 2 \mp 4x) \left(y - \frac{3}{2} \mp 3x \right) - 2 = 0 \quad (\text{V})$$

$$m = \pm 5/2 \quad \left(y + \frac{3}{2} \mp 3x \right) (y - 1 \mp 2x) - \frac{7}{2} = 0$$

$$m = \pm 3/2 \quad (y + 1 \mp 2x) \left(y - \frac{1}{2} \mp x \right) - \frac{9}{2} = 0$$

$$m = \pm 1/2 \quad \pm x = y + \frac{1}{2} - \frac{5}{y}.$$

La construction de ces différentes courbes donne le schéma tracé sur la figure II,5. La structure hyperfine $\Delta\nu$, écart en champ nul des niveaux $F = 9/2$ et $F = 7/2$, est égale à 4,5 dans ce système d'unités. Si nous exprimons A en mégacycles, nous avons :

$$\Delta\nu \text{ (mégacycles)} = 4,5 A.$$

Nous avons déterminé expérimentalement l'écart entre les résonances $9/2 \leftrightarrow 7/2$ et $9/2 \leftrightarrow 7/2$ du niveau $F = 9/2$ et à partir des équations précédentes, par une résolution numérique, nous avons évalué $\Delta\nu$. L'imprécision des mesures nous conduit à :

$$\Delta\nu = 5\,800 \pm 100 \text{ Mc/s.}$$

Remarque. — Cette détermination déduite des équations (V) repose sur l'existence d'une configuration atomique 3F_4 parfaitement déterminée. Le cas du mercure est malheureusement plus complexe. En outre, nous avons négligé l'influence du découplage LS , cet effet s'étant, dans les mêmes conditions de champ magnétique, révélé faible dans le cas des isotopes pairs.

L'étude du niveau $7/2$ a été également faite de la même manière, mais la résolution des différentes

résonances étant moins bonne, l'erreur relative sur l'écart des résonances extrêmes est plus grande. La valeur de $\Delta\nu$ ainsi trouvée concorde avec celle déduite de l'étude du niveau $9/2$.

B. *Étude du découplage dans le cas de l'isotope ^{201}Hg pour le niveau $6\ ^3F_4$.*

Nous trouvons quatre sous-niveaux hyperfins :

$$F = 5/2, 7/2, 9/2, 11/2$$

dont les facteurs de Landé théoriques peuvent être calculés d'après (IV) :

11/2	$g_F = g_J \times 0,7272 = 0,909$
9/2	$g_F = g_J \times 0,8282 = 1,0352$
7/2	$g_F = g_J \times 1,01587 = 1,2697$
5/2	$g_F = g_J \times 1,4285 = 1,7856$

Les structures hyperfines sont plus faibles que dans le cas de l'isotope 199, et, par suite, les effets de découplage IJ s'observent dans des champs moins élevés.

Étude expérimentale. — D'une façon générale, il sera difficile d'étudier les niveaux $7/2$ et $9/2$. Le niveau $7/2$ a un facteur de Landé $g = 1,267$, et sa résonance sera superposée à celle des isotopes pairs contenus dans l'échantillon étudié. Le niveau $9/2$ a un facteur de Landé voisin de 1, et les courbes de résonance pourront être déformées par des résidus de résonance type cyclotron. Des expériences ont été faites à 50 Mc/s, 140 Mc/s, 238 Mc/s et 307,8 Mc/s :

— A 50 Mc/s, le découplage est très faible, les résonances $F = 11/2$, $F = 9/2$, $F = 5/2$ sont observées, et nous obtenons :

	g	g_F/g_J
$F = 11/2$	$0,9051 \pm 0,0005$	$0,7268 \pm 0,0005$
$F = 9/2$	$1,0237 \pm 0,001$	$0,8280 \pm 0,0005$
$F = 5/2$	$1,781 \pm 0,0015$	$1,4290 \pm 0,001$

— L'interprétation des spectres obtenus est plus complexe que dans le cas de l'isotope 199 (fig. II,8). Lorsque le découplage est suffisant pour résoudre totalement les niveaux $9/2$, $7/2$ et $5/2$, ces différents ensembles de résonances se superposent partiellement, et l'interprétation devient impossible. Seul le niveau $11/2$ a pu être étudié à 307,8 Mc/s. Le bruit étant important, une étude comparative de

FIG. II,8. — Résonances observées sur un échantillon de mercure enrichi en ^{201}Hg (88,2 %), niveau $6\ ^3F_4$, $\nu = 238 \text{ Mc/s}$.

nombreux enregistrements a dû être faite pour déterminer la position des différentes résonances.

Le diagramme représentant les niveaux énergétiques en fonction du champ magnétique est donné par la figure II,9, et par une méthode ana-

FIG. II,9. — Niveau 6^3F_4 , ^{201}Hg .

logue à celle employée pour le niveau $F = 9/2$ de l'isotope 199, nous avons déterminé les structures hyperfines :

$$\begin{aligned}\Delta\nu_1 (11/2 - 9/2) &= 2\,860 \pm 50 \text{ Mc/s} \\ \Delta\nu_2 (9/2 - 7/2) &= 2\,340 \pm 50 \text{ Mc/s} \\ \Delta\nu_3 (7/2 - 5/2) &= 1\,820 \pm 50 \text{ Mc/s}.\end{aligned}$$

Il est nécessaire de souligner que ces valeurs ont été obtenues, — comme dans le cas de l'isotope 199 —, en négligeant la structure fine. En plus, dans le cas de l'isotope 201, nous n'avons pas tenu compte du moment quadropolaire nucléaire.

Ces différents résultats ne doivent donc être considérés que comme des ordres de grandeurs.

C. *Isotopes impairs. Étude des autres niveaux.* —

F	g EXPÉRIMENTAL	g_F/g_J EXPÉRIMENTAL	g_F/g_J THÉORIQUE
3P_2 $3/2$	—	—	—
3P_2 $5/2$	$1,15 \pm 0,0005$	$0,7995 \pm 0,0008$	0,8
1D_2 $3/2$	$1,34 \pm 0,01$	$1,198 \pm 0,01$	1,2
1D_2 $5/2$	$0,902 \pm 0,005$	$0,805 \pm 0,01$	0,8

Expériences sur le sodium. — Le queusot d'un tube du type n° 2 est rempli de sodium soigneusement distillé. Ce tube, ainsi que les bobines produisant le champ de radiofréquence, sont placés dans un four thermostaté. La température optimum est d'environ 180°. A des températures plus élevées, le verre de l'enceinte est rapidement attaqué.

Nous avons étudié différentes raies du spectre du sodium non absorbées par le verre du tube et dont les longueurs d'onde correspondent au domaine de sensibilité des photomultiplicateurs.

Dans le cas de l'isotope 199, nous avons décelé des résonances sur les raies rouges (fig. II,10) et les

FIG. II,10. — Résonances observées sur un échantillon de mercure enrichi en ^{199}Hg (73 %), niveau 1D_2 , $\nu = 140 \text{ Mc/s}$.

FIG. II,11. — Résonances observées sur un échantillon de mercure enrichi en ^{199}Hg (73 %), niveau 3P_2 , $\nu = 140 \text{ Mc/s}$.

raies bleues (fig. II,11), correspondant respectivement aux niveaux 1D_2 et 3P_2 étudiés précédemment pour les isotopes pairs. Le rapport signal/bruit est très faible, et les résultats que nous donnons sont par suite assez imprécis. Nous n'avons fait, pour la même raison, aucune étude du découplage IJ .

Dans le cas des isotopes 201, nous n'avons décelé aucune résonance. Les différents résultats sont réunis dans le tableau :

Un taux de polarisation appréciable n'a été observé que sur les raies $5^2D_{5/2} - 3^2P_{3/2}$ (4 983 Å), $5^2D_{3/2} - 3^2P_{1/2}$ (4 979 Å) et $4^2D_{5/2} - 3^2P_{3/2}$ (5 688 Å), et nous avons décelé les résonances des niveaux $5^2D_{5/2}$, $4^2D_{5/2}$ et $5^2D_{3/2}$ (fig. II,12).

Des expériences préliminaires ont été faites à 25 Mc/s. Les facteurs de Landé, déterminés à partir de la position de ces résonances, nous montrent que le découplage IJ est à peu de chose près total. Les structures hyperfines de ces niveaux sont donc faibles par rapport à la fréquence de 25 Mc/s,

Différentes expériences ont été faites à 50 Mc/s. Nous constatons que la largeur limite en champ de radiofréquence nul est plus grande qu'à 25 Mc/s. Cet effet est dû au découplage LS , l'écart des niveaux $D_{5/2} - D_{3/2}$ étant très faible (distance des niveaux $5^2D_{5/2} - 5^2D_{3/2} = 0,024 \text{ cm}^{-1}$, distance $4^2D_{5/2} - 4^2D_{3/2} = 0,033 \text{ cm}^{-1}$).

FIG. 11,12. — Résonances observées sur le sodium.
 $\nu = 25 \text{ Mc/s.}$

Courbe 1, en haut : raies 5688 et 5683 Å.
Courbe 2, en bas : raies 4983 et 4979 Å.

La détermination de la durée de vie est donc complexe et nécessite une étude complète de l'effet Paschen-Back hyperfin et fin. Ce travail est actuellement en cours et les résultats seront donnés dans une publication ultérieure.

La méthode d'excitation électronique et ses possibilités. — Sur le mercure et sur le sodium nous n'avons décelé et étudié la résonance magnétique que de quelques niveaux seulement. Nous pouvons en préciser les raisons et définir ainsi le domaine d'application de la méthode d'excitation électronique :

1) **AMPLITUDE DU CHAMP DE RADIOFRÉQUENCE.** — Pour que des transitions entre deux sous-niveaux magnétiques puissent être observées, il est nécessaire que la valeur de la probabilité de transition soit appréciable au bout d'un temps de l'ordre de la durée de vie τ . La valeur numérique du champ H_1 nécessaire peut être calculée à partir des formules de Majorana. On trouve ainsi une amplitude de l'ordre du gauss pour des durées de vie de 10^{-7} sec et d'une dizaine de gauss pour des durées de vie de 10^{-8} sec. Dans ce dernier cas, les trajectoires électroniques sont violemment per-

turbées, le taux de polarisation des raies émises est par suite très faible et il devient difficile d'empêcher les décharges dans l'enceinte.

La méthode d'excitation électronique, dans le cas des transitions dipolaires magnétiques, ne peut par suite s'appliquer qu'aux niveaux dont la durée de vie est supérieure à, approximativement, $5 \cdot 10^{-8}$ seconde.

Dans l'atome de mercure, la plupart des niveaux ont une durée de vie très courte. Pour le niveau 6^1P_1 , on a $\tau < 10^{-8}$ seconde, pour le niveau 7^3S_1 , $\tau \approx 10^{-8}$ seconde [8], et il en est de même des niveaux D [9]. Il est aisé de comprendre pourquoi peu de résonances ont été observées.

2) **CRÉATION D'INÉGALITÉ DE POPULATION DANS LES ÉTATS EXCITÉS.** — Dans la première partie, nous avons signalé qu'il était impossible de donner des règles générales permettant de prévoir, même de façon qualitative, les taux de polarisation. Il semble toutefois que, lorsqu'un choc électronique porte un atome de l'état fondamental, de multiplicité F , à un état excité, de multiplicité F' plus élevée ($F' \geq F + 2$), il y a création d'inégalité de population dans cet état excité, le choc électronique défavorisant une excitation se faisant avec $\Delta m > 1$.

Les niveaux que nous avons étudiés (3F_4 , 3P_2 , 1D_2 de l'atome de mercure, et $D_{5/2}$ de l'atome de sodium) satisfont cette condition.

Conclusions. — Ce travail d'exploration a donc fourni des résultats positifs et il nous montre que la méthode d'excitation électronique complète, pour l'étude des niveaux élevés, la méthode d'excitation optique, de beaucoup préférable lorsqu'elle peut s'appliquer.

Nous pouvons envisager diverses extensions :

1) Dans le cas d'un atome à spin nucléaire, il doit être possible de détecter les résonance $\Delta F = 1$. Un montage permettant d'étudier ces transitions pour le niveau 6^3F_4 de l'isotope 201 du mercure est en cours de réalisation. Nous pourrions ainsi déterminer de façon précise les structures hyperfines dont nous avons donné un ordre de grandeur. Les résultats de cette étude seront donnés ultérieurement.

2) Par une technique tout à fait analogue à celle décrite ci-dessus, nous pourrions étudier, en bombardant une vapeur, un certain nombre d'atomes : potassium, césium, rubidium. Le cas des gaz rares pourra être également envisagé. Le problème, cependant, sera plus complexe, les spectres comportant un très grand nombre de raies.

D'autres éléments plus difficilement volatils pourront être étudiés par une technique de jet atomique. Afin d'avoir un flux lumineux comparable à celui dont on disposait avec une vapeur, il sera nécessaire d'opérer sur des jets atomiques de

grande densité. Il faudra mettre au point un montage à pompage continu en prenant des précautions particulières pour ne pas contaminer la cathode (*).

3) Les expériences que nous avons faites sur le sodium montrent que, pour cet élément, peu de raies émises par bombardement électronique sont polarisées. Si l'on crée une inégalité de population par pompage optique dans le niveau fondamental, nous pouvons penser qu'elle sera conservée lorsque les atomes seront portés dans un état excité par bombardement électronique. On peut espérer ainsi étudier de nombreux niveaux.

4) Par pompage optique, il est possible d'enrichir sélectivement les sous-niveaux magnétiques de l'état fondamental. Un effet analogue peut être obtenu par bombardement électronique. En effet, si nous réglons la tension d'accélération des électrons de façon à n'exciter dans des conditions de

(*) Un tel montage a été utilisé par H. Bruck [10]. Notons toutefois que la cathode qu'il employait, était moins fragile que les cathodes industrielles, au rendement beaucoup plus élevé, que nous utilisons.

E. Geneux et M^{lle} B. Vincenz [11] ont, par cette technique, récemment mis en évidence la résonance magnétique de plusieurs niveaux excités du cadmium.

polarisation favorable que le premier niveau excité, il est vraisemblable que, lorsque les atomes excités retomberont à l'état fondamental, une inégalité de population sera créée dans cet état.

Le bombardement électronique peuple de façon symétrique les niveaux $-m$ et $+m$, aussi, contrairement à l'excitation optique en lumière polarisée circulaire qui crée une orientation, nous ne pourrions obtenir qu'un alignement pour les niveaux fondamentaux tel que $F \geq 1$.

Pour obtenir un alignement appréciable, il est nécessaire, d'une part, que les raies qui correspondent à une transition entre un niveau excité et le niveau fondamental soient polarisées — le sodium est donc exclu — et, d'autre part, que les collisions sur les parois et sur les électrodes ne détruisent pas l'alignement, l'excitation électronique ne permettant pas l'emploi d'un gaz tampon. Cette dernière condition n'est pas remplie pour les métaux alcalins ; le cas de l'isotope 201 du mercure semble se présenter plus favorablement [12], si les chocs sur les parois métalliques des électrodes ne détruisent pas l'alignement.

Manuscrit reçu le 25 mars 1959.

Extrait de [13].

BIBLIOGRAPHIE

- [1] BROSSEL (J.) et BITTER (F.), *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 311.
- [2] BROSSEL (J.), *Thèse*, Paris, 1952 ; *Ann. Physique*, 1952, **7**, 622.
- [3] BITTER (F.) et BROSSEL (J.), A new "double resonance" method for the investigation of atomic and nuclear moment. Part I, Theory of effect in mercury vapor. Technical Report n° 176 Research Laboratory of Electronics Massachusetts Institute of Technology, 1950.
- [4] DESCoubes (J. P.), Diplôme d'Études Supérieures, Paris, 1958.
- [5] LANDOLT-BÖRNSTEIN, *Zahlenwerte und funktionen*.
- [6] BARRAT (J. P.) et BROSSEL (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **246**, 2744.
- [7] BESSET (C.), HOROWITZ (J.), MESSIAH (A.) et WINTER (J.), *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 251.
- [8] BROSSEL (J.) et JULIENNE (M^{lle} C.), *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **242**, 2127.
- [9] SKINNER, *Proc. Roy. Soc.*, A 1926, **112**, 642.
- [10] BRUCK (H.) et MINKOWSKI, *Z. Physik*, 1935, **95**, 284. BRUCK (H.), *Thèse*, Paris, 1942.
- [11] GENEUX (E.) et VINCENZ (M^{lle} B.), Université de Genève, Communication privée.
- [12] CAGNAC (B.), BROSSEL (J.) et KASTLER (A.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **246**, 1827.
- [13] PÉBAY-PÉROULA (J. C.), *Thèse*, Paris, 1959, Microfilm C. N. R. S. n° 38 812.