

N° d'ordre :

1837

# THÈSE

DE DOCTORAT D'ÉTAT ÈS-SCIENCES PHYSIQUES

PRÉSENTÉE À L'UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

Catherine BRECHIGNAC - TEILLAC

LABORATOIRE AIMÉ COTTON

C. N. R. S.

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS-SCIENCES

Déplacements isotopiques de certains éléments  
(rubidium, cadmium, krypton)  
situés au voisinage de couches fermées.

SOUTENUE LE 10 Mai 1977 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

P. JACQUINOT : Président

B. DECOMPS

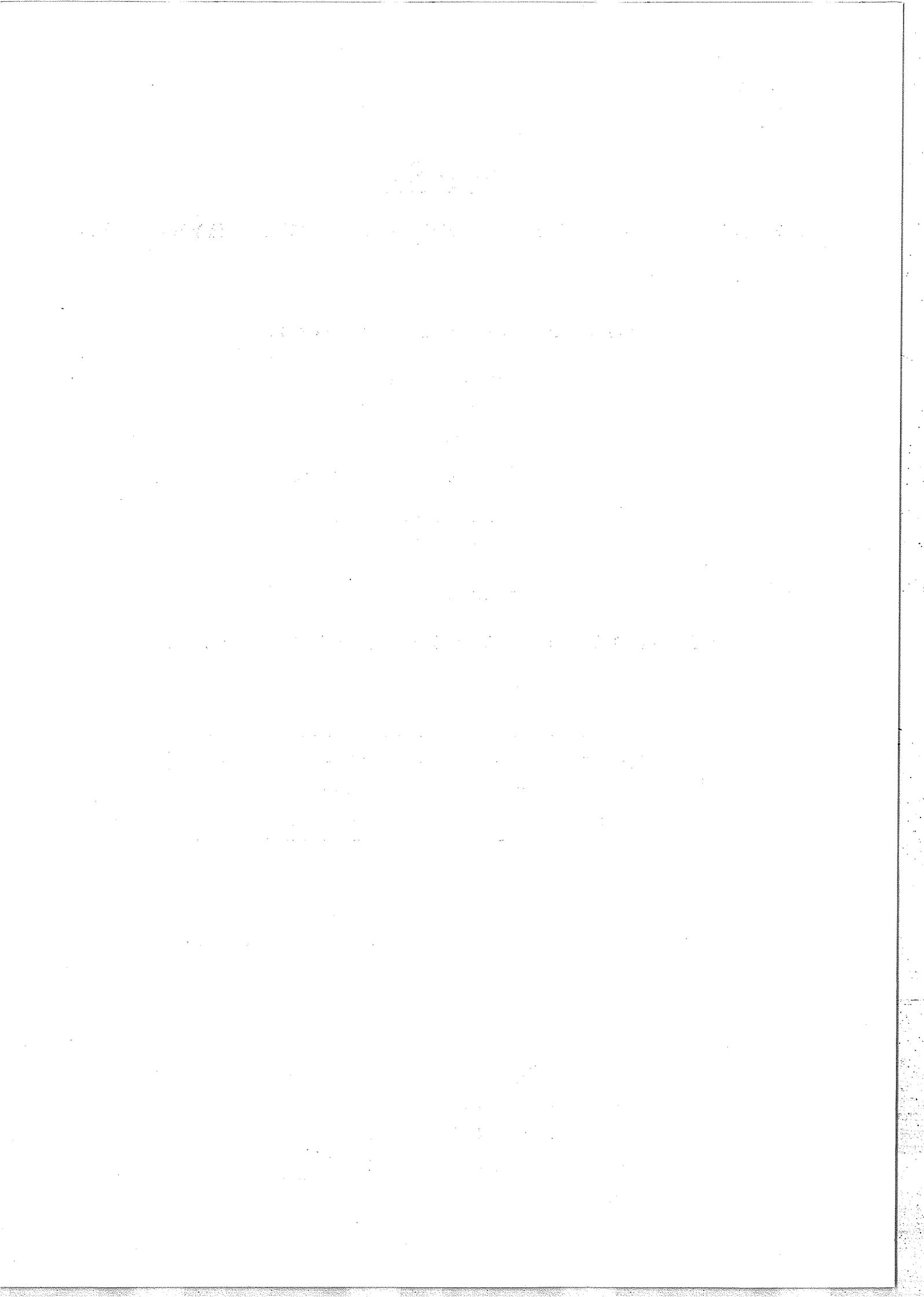
S. GERSTENKORN

S. FENEUILLE

O. W. OTTEN

} Examineurs

25-I (108)

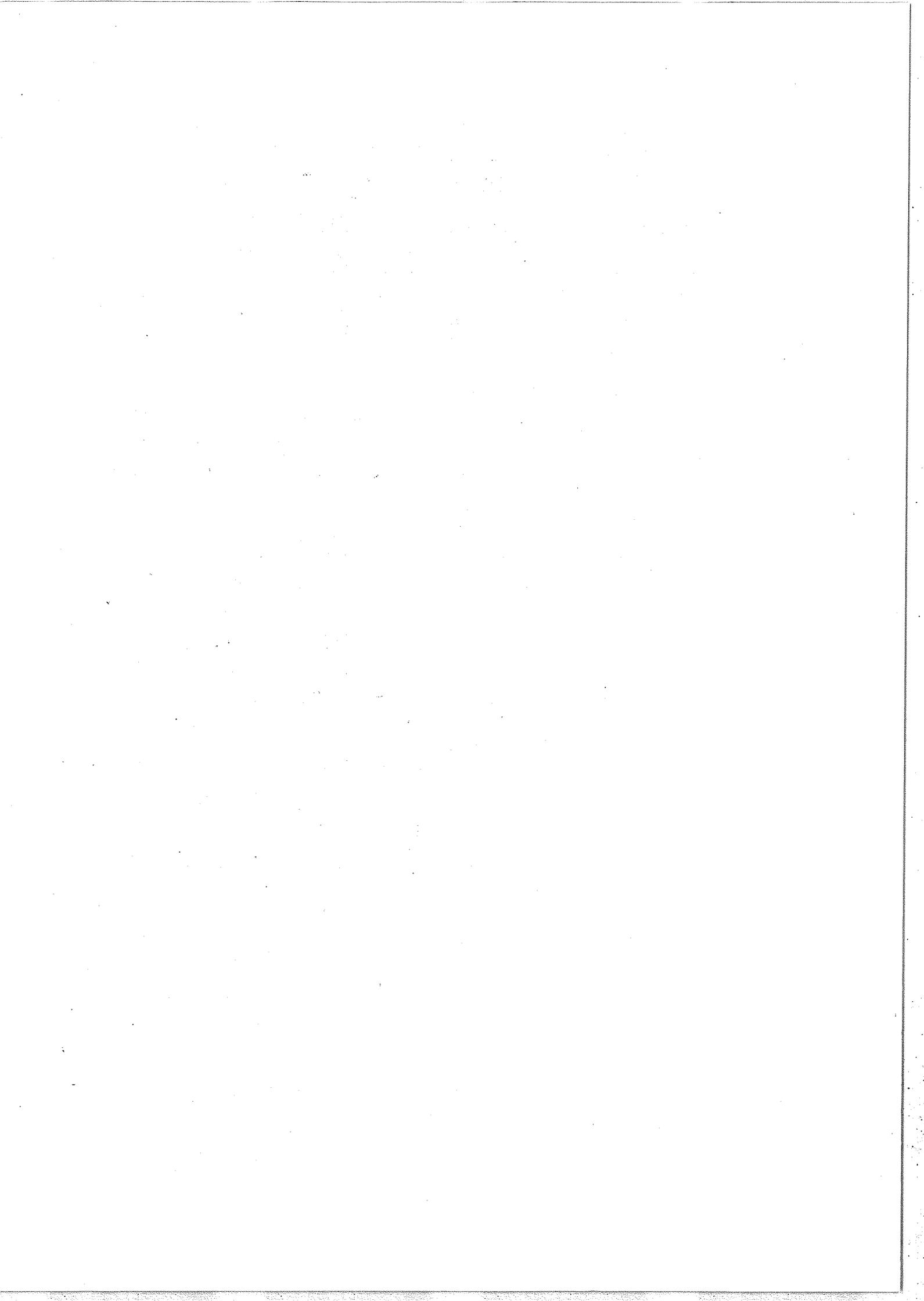


## TABLE DES MATIERES

<u>INTRODUCTION</u> .....	1
Chapitre I - <u>Généralités sur le déplacement isotopique</u> .....	5
I - <u>Définitions : Déplacement isotopique absolu, déplacement isotopique d'une transition</u> .....	7
II - <u>Contributions des effets de masse et de volume au déplacement isotopique dans un calcul de perturbation au premier ordre</u> .....	8
A - Remarques sur l'effet de masse .....	9
B - Remarques sur l'effet de volume .....	9
C - Comparaison entre la théorie et l'expérience. Droite de King .....	11
III - <u>Evaluation des déplacements isotopiques de volume et de masse</u> .....	14
A - La contribution de l'un des effets est négligeable devant celle de l'autre .....	15
B - Les contributions des deux effets sont comparables .....	16
1) Cas des transitions optiques .....	16
2) Comparaison entre les transitions optiques et les transitions X .....	19
a) transitions X électroniques .....	19
b) transitions X muoniques .....	19
IV - <u>Conclusion</u> .....	20

Chapitre II - <u>Méthodes expérimentales utilisées</u> .....	23
I - <u>Généralités</u> .....	23
II - <u>Analyse de la lumière émise par une source classique</u> <u>à l'aide d'un spectromètre Fabry-Perot photoélectrique</u> <u>Mesure du déplacement isotopique du Rubidium</u> <u><math>^{87}\text{Rb} - ^{85}\text{Rb}</math> pour la raie de résonance <math>D_2</math></u> .....	26
A - Principe de la méthode .....	26
B - Mesure du déplacement isotopique du Rubidium <u><math>^{87}\text{Rb} - ^{85}\text{Rb}</math> pour la raie <math>D_2</math></u> .....	27
C - Précision de la mesure .....	30
III - <u>Analyse d'une transition laser à l'aide d'un étalon</u> <u>Fabry Perot. Mesure des déplacements isotopiques</u> <u>pour la transition <math>4d^9 5s^2 \text{ } ^2D_{5/2} \rightarrow 4d^{10} 5p^2 \text{ } ^2P_{3/2}</math></u> <u>du Cd II</u> .....	33
A - Principe .....	33
B - Difficultés expérimentales particulières dans le cas où la source est un laser à cadmium ionisé .....	35
C - Précision des mesures .....	39
IV - <u>Mesure des déplacements isotopiques par auto-</u> <u>exploration d'une cavité laser. Déplacements</u> <u>isotopiques de certaines raies infrarouges du krypton</u> .....	40
A - Principe de la méthode .....	40
B - Conditions d'application. Mesure des déplace- ments isotopiques dans le krypton. Différentes causes d'erreur .....	42
C - Précision des mesures .....	45
V - <u>Mesure des déplacements isotopiques de la transition</u> <u>à <math>\lambda = 557,03</math> nm du krypton par absorption saturée</u> .....	47
A - Exposé de la méthode .....	47
B - Précision des mesures .....	50
C - Avantages par rapport aux autres méthodes. Limites .....	52

Chapitre III - <u>Déplacement isotopique de volume dans le krypton. Interprétation des résultats</u> .....	55
I - <u>Analyse des résultats expérimentaux pour les transitions <math>6p[1/2]_1 \rightarrow 6s[3/2]_2</math> et <math>5p'[1/2]_1 \rightarrow 5s[3/2]_2</math></u> .....	56
A - Résultats des mesures .....	56
B - Cohérence entre les résultats expérimentaux obtenus pour les deux transitions $6p[1/2]_1 \rightarrow 6s[3/2]_2$ et $5p'[1/2]_1 \rightarrow 5s[3/2]_2$ . Droite de King. ....	58
C - Effet de volume. Son estimation pour différentes valeurs de l'effet spécifique de masse .....	60
II - <u>Désaccord entre les résultats expérimentaux et le calcul classique de l'effet de volume supposant des variations régulières du volume du noyau le long de la séquence isotopique</u> .....	61
A - Expression de l'effet de volume compte tenu de la déformation .....	61
B - Evaluation a priori du déplacement isotopique de volume du krypton en supposant $R = R_0 A^{1/3}$ pour la transition $5p'[1/2]_1 \rightarrow 5s[3/2]_2$ .....	65
III - <u>Tentative d'interprétation des résultats expérimentaux</u> .....	70
A - Contraction des variations du rayon avant la fermeture de couche $N=50$ .....	70
B - Conclusion sur le déplacement isotopique du krypton .....	72
C - Comparaison des variations de $\langle R^2 \rangle$ avec les variations de l'énergie de liaison $E$ par nucléon .....	74
IV - <u>Analogie des résultats obtenus sur le krypton avec les résultats obtenus sur d'autres éléments possédant un isotope ayant un nombre magique de neutrons <math>N=50</math> ou <math>N=82</math></u> .....	76



Annexe I - Rappels théoriques relatifs au déplacement isotopique.

- I - Hamiltonien de l'atome isolé.
- II - Déplacement isotopique de Bohr.
- III - Effet spécifique de masse.
- IV - Déplacement isotopique de volume.

Annexe II - Déplacement isotopique dans la raie de résonance  $D_2$  du rubidium. Inversion des valeurs de  $\langle r^2 \rangle$  des isotopes  $^{85}\text{Rb}$  et  $^{87}\text{Rb}$ .

C. Bréchnignac, S. Gerstenkorn, P. Luc  
Physica 82 B+C, 409 (1976).

Annexe III - Etude des écarts isotopiques de la raie laser  $\lambda = 4416 \text{ \AA}$  du Cd II.

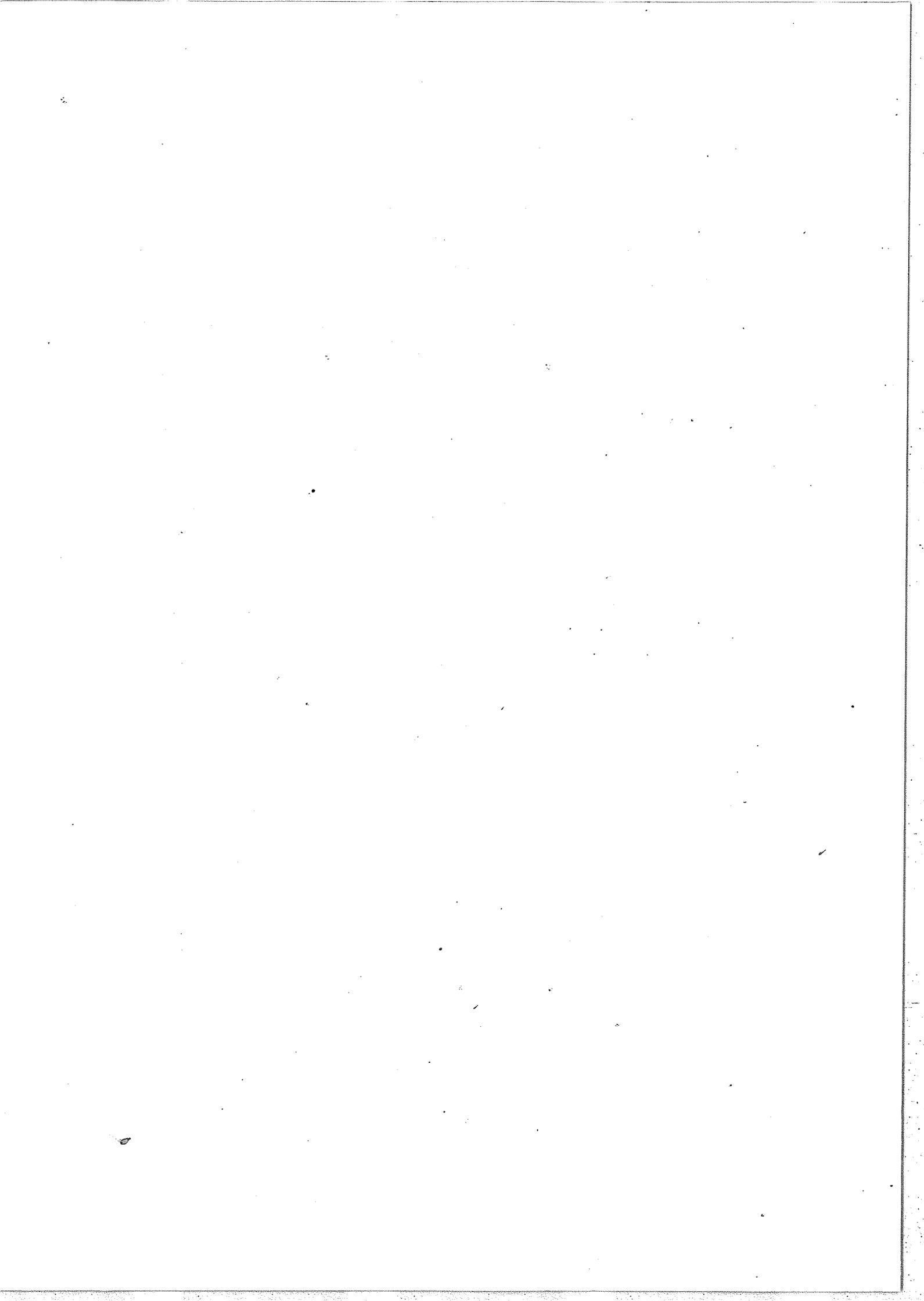
C. Bréchnignac  
Physica Scripta 12, 230 (1975).

Annexe IV - Isotope-shift measurements in even stable isotopes of krypton (78, 80, 82, 84, 86) by means of laser techniques.

C. Bréchnignac, S. Gerstenkorn  
J. Phys. B 10, 413 (1977).

Annexe V - Measurements of isotope shift in visible line of Kr I by saturation absorption techniques.

C. Bréchnignac  
à paraître.



## INTRODUCTION

Depuis fort longtemps, le déplacement isotopique en spectroscopie atomique a permis d'obtenir des renseignements sur la structure de l'atome (contrôle de la classification des spectres par exemple) ainsi que sur certaines propriétés nucléaires telles que les variations de la distribution des charges, les coefficients de déformation, la compressibilité nucléaire.

L'écart isotopique a pour origine d'une part la masse finie du noyau qui conduit à l'effet de masse (le centre de gravité de l'atome n'est pas celui du noyau et il existe un mouvement relatif du noyau et de l'ensemble des électrons), d'autre part le volume fini du noyau qui conduit à l'effet de volume. Ce dernier effet est plus marqué pour une transition faisant intervenir un électron optique 'ns' en raison de la probabilité de présence non nulle d'un tel électron dans le noyau. L'interaction entre l'électron optique et le noyau étant coulombienne, l'électron 'ns' peut être considéré comme un bon moyen d'information sur la répartition des protons à l'intérieur du noyau. Le déplacement isotopique de volume traduit alors les variations du carré moyen de la répartition des charges  $\langle r^2 \rangle$  entre les différents isotopes d'un même élément.

La première observation expérimentale de l'effet de volume a été faite par Merton [1] en 1919 sur le plomb ( $Z=82$ ). Depuis de nombreuses mesures sur un grand nombre d'éléments et de raies ont été obtenues [2] et leur interprétation n'est pas toujours aisée. Outre la difficulté de séparer l'effet de masse et l'effet de volume, ce dernier effet est la somme de deux termes, l'un dû au "volume pur" ( $\delta\langle R^2 \rangle$ ), l'autre dû à la déformation du noyau. Pour les nuclides situés loin des couches fermées en neutrons, la variation du volume apparaît régulière conformément au modèle de la goutte liquide. Par contre, les résultats déjà obtenus pour le strontium [3], le xénon [4, 5], le barium [6], le césium [7] montrent qu'il existe une contraction de  $\langle R^2 \rangle$  et même quelquefois une inversion de  $\langle R^2 \rangle$  pour les isotopes ayant un nombre de neutrons inférieur de quelques unités aux nombres magiques 50 et 82, mettant ainsi en évidence un effet de fermeture de couche sur le déplacement isotopique. Il était nécessaire, pour compléter cette étude au voisinage des couches fermées en neutrons, d'étudier l'évolution de  $\delta\langle R^2 \rangle$  le long des séquences isotopiques du rubidium ( $Z=37$ ) et du krypton ( $Z=36$ ). On a même cherché à mettre en évidence un effet isotopique dû à l'existence d'une sous-couche complète en neutrons pour  $N=66$ . Cependant, nous avons pu montrer dans le cas du cadmium, qu'à la précision de nos mesures, aucune irrégularité dans les déplacements isotopiques n'a pu être décelée. Il s'avère grâce aux mesures récentes sur les déplacements isotopiques des éléments voisins (Sm et Te) que l'absence de toute irrégularité dans les déplacements isotopiques ne permet pas de mettre en évidence l'effet de sous-couche fermée  $N=66$  supposée antérieurement par d'autres auteurs [8].

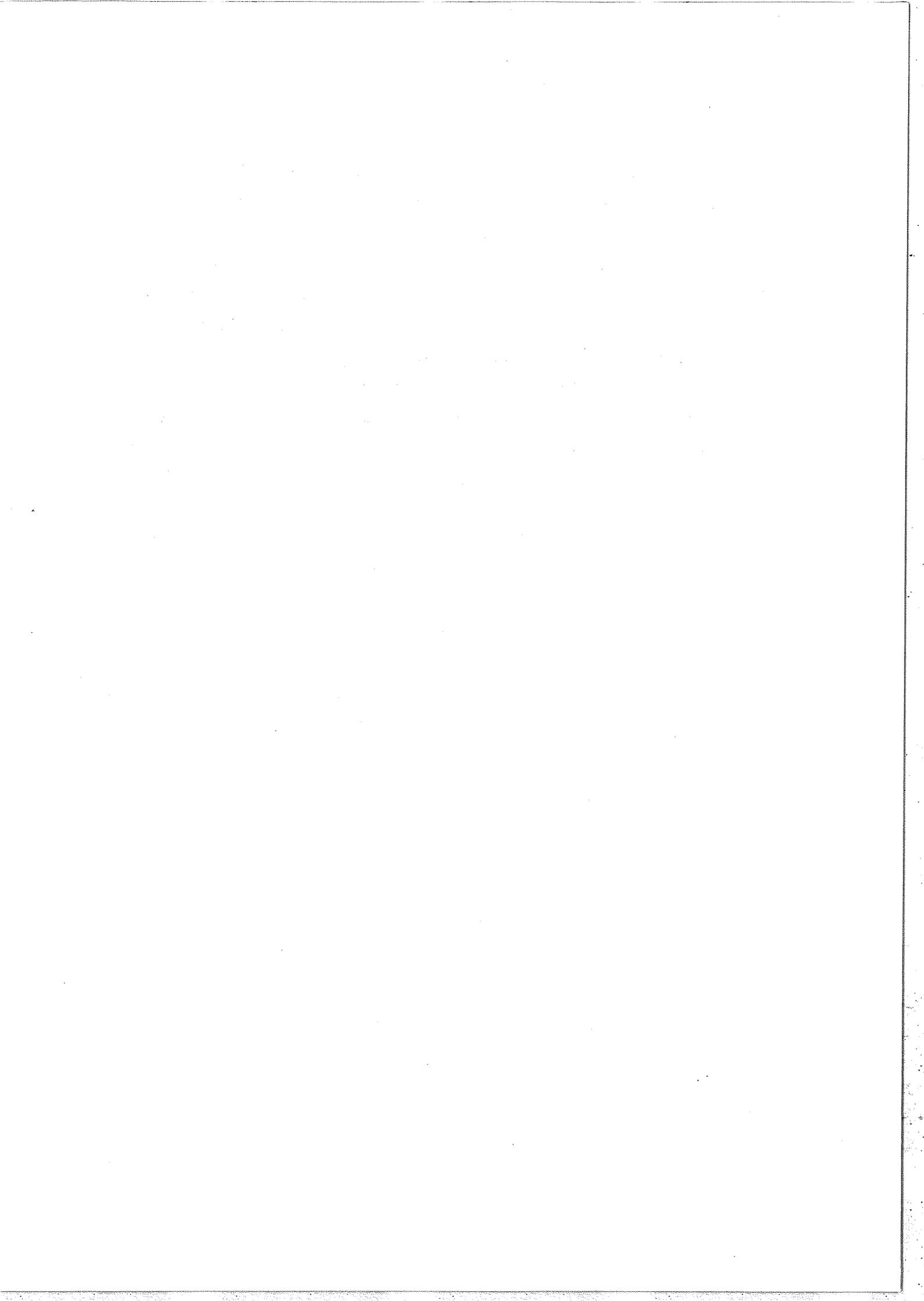
En fait, des données quantitatives sur l'effet de volume seul sont difficiles à obtenir surtout dans le cas des éléments intermédiaires de masse  $A$  comprise entre 50 et 140. En effet les deux effets, masse et volume, coexistent en permanence dans le déplacement isotopique et pour les éléments intermédiaires ils sont petits et du même ordre de grandeur. De plus, pour ces éléments, les tentatives de calculs théoriques de l'effet de masse dans le but d'extraire l'effet de volume ne sont pas

suffisamment précises. Or c'est précisément dans cette région que se trouvent situés les éléments pour lesquels on peut s'attendre à un effet de fermeture de couche. Pour obtenir des renseignements sur l'effet de volume de tels éléments, on pourra tirer parti de la variation régulière de l'effet de masse sur une longue chaîne d'isotopes pouvant mettre ainsi en évidence des variations non régulières de l'effet de volume le long d'une telle séquence, à condition toutefois d'avoir des valeurs très précises des déplacements isotopiques. C'est ainsi que pour mettre en évidence une irrégularité mesurable dans les déplacements isotopiques de volume du krypton, irrégularité due à la fois à l'influence de la déformation et à l'influence de la couche complète  $N=50$  nous avons été amenés à effectuer une expérience d'absorption saturée sur une transition visible  $5p \rightarrow 5s$ . Ainsi, grâce à l'étude de la séquence isotopique du krypton, l'effet de fermeture de couche pour tous les éléments ayant un couple d'isotopes stables  $N$  et  $N-2$  ( $N$  étant magique 50 ou 82) se trouvera achevée.

Dans la première partie de ce mémoire, nous rappellerons les caractéristiques du déplacement isotopique afin de faire le point sur les informations que l'on peut atteindre grâce à leur mesure.

Dans la seconde partie, nous exposerons les méthodes expérimentales que nous avons dû mettre en oeuvre pour mesurer les déplacements isotopiques concernant les éléments rubidium, cadmium et krypton. Les très faibles déplacements isotopiques de ces éléments nous ont conduit à utiliser des techniques de plus en plus performantes.

Enfin, dans la troisième partie, nous proposerons une interprétation du déplacement isotopique du krypton. Bien que la mesure des déplacements isotopiques fournisse la somme des effets de volume et de masse, la précision de nos mesures est néanmoins suffisante pour tenter une interprétation de l'effet de volume. Enfin nous montrerons comment les déplacements isotopiques du krypton s'intègrent dans le cadre plus général des mesures déjà obtenues pour les éléments ayant un isotope possédant un nombre magique de neutrons.

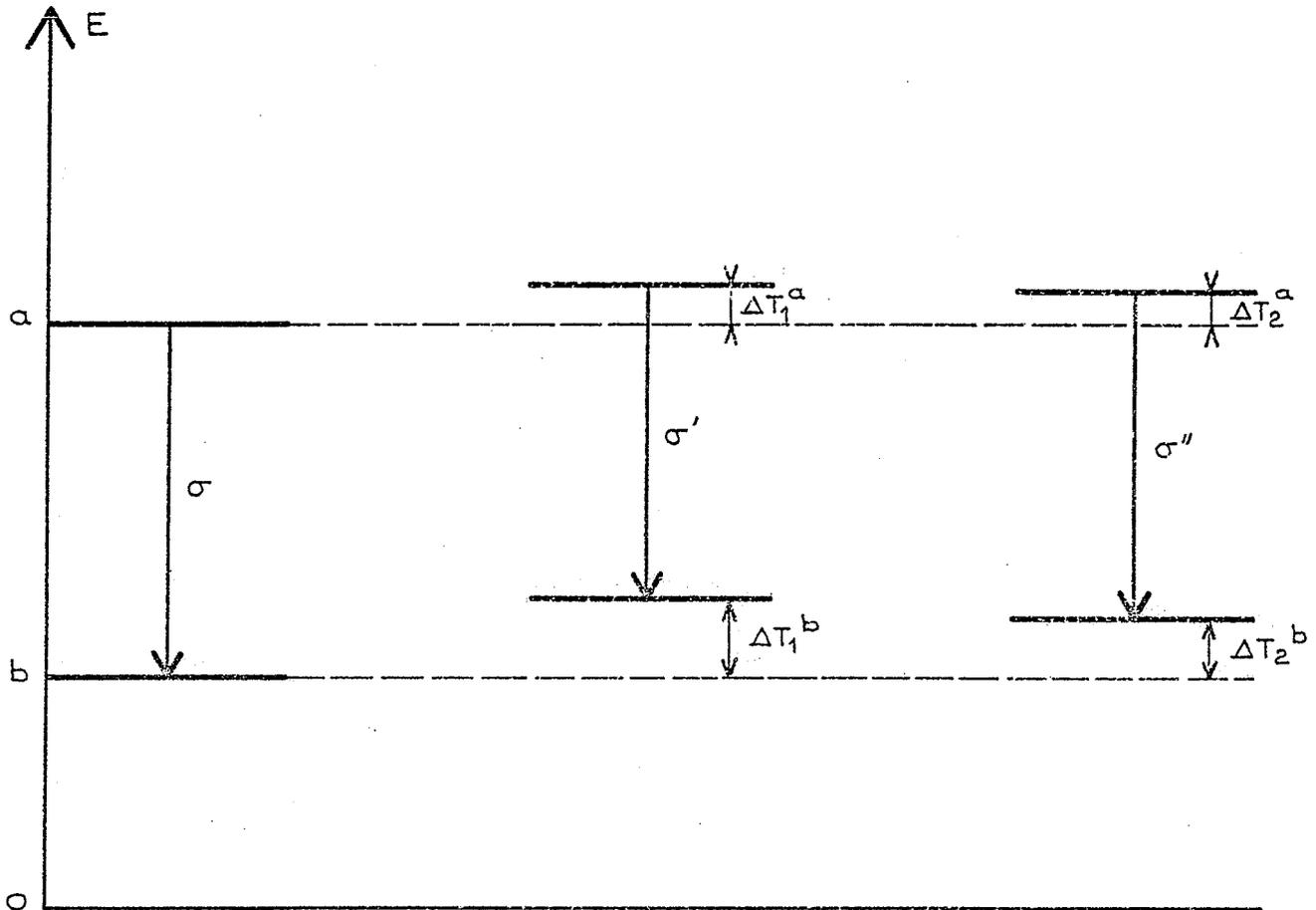


## CHAPITRE I

### GENERALITES SUR LE DEPLACEMENT ISOTOPIQUE.

Après avoir rappelé la définition du déplacement isotopique, nous exposerons brièvement comment une modification du volume et de la masse du noyau influe sur la fréquence des transitions observées.

Nous indiquerons les approches théoriques qui permettent d'évaluer le déplacement isotopique et nous insisterons sur l'importance des difficultés que l'on rencontre dans ce type de calcul a priori, et qui rendent délicate la comparaison de la théorie avec l'expérience. Cependant, nous montrerons que, même si la comparaison quantitative avec l'expérience n'est pas toujours satisfaisante, les variations entre les déplacements isotopiques d'un même élément reflètent l'évolution de certaines propriétés nucléaires des différents isotopes de la séquence. L'étude de cette évolution nécessite alors une précision expérimentale extrêmement élevée.



niveaux d'énergie  
de l'atome (Z)  
avec le noyau de  
masse infinie et  
de volume nul.

niveaux d'énergie  
de l'atome (Z)  
avec le noyau de  
masse  $M_1$  et de  
volume  $V_1$ .

niveaux d'énergie  
de l'atome (Z)  
avec le noyau de  
masse  $M_2$  et de  
volume  $V_2$ .

C'est la quantité

$$\Delta\sigma(M_2, M_1) = \sigma'' - \sigma'$$

que l'on mesure expérimentalement.

Figure 1

I - Définitions : déplacement isotopique absolu, déplacement isotopique d'une transition.

I-1 Le déplacement isotopique absolu d'un niveau relatif à un isotope est défini comme étant la différence entre l'énergie d'un niveau de l'atome réel et l'énergie du même niveau de l'atome fictif dont le noyau est ponctuel et la masse infinie (Figure 1).

I-2 Le déplacement isotopique correspondant à une transition atomique pour un couple d'isotopes de masse  $(M_1, M_2)$  :

. Soit  $\Delta T_1^i$  le déplacement isotopique absolu d'un niveau  $i$  relatif à un isotope dont le noyau a une charge  $Ze$  et une masse  $M_1$ .

. On notera  $\Delta\sigma_1$  le déplacement isotopique absolu de la transition  $a \rightarrow b$ , associée au nombre d'onde  $\sigma$ , relatif à l'atome  $(Z_1, M_1)$ .  $\Delta\sigma_1 = \Delta T_1^a - \Delta T_1^b$  où  $a$  est par définition le niveau supérieur de la transition.

. On notera  $\Delta\sigma(M_2, M_1)$  le déplacement isotopique pour la transition  $a \rightarrow b$  relatif au couple d'isotopes de masses respectives  $M_1, M_2$ .

$$\Delta\sigma(M_2, M_1) = (\Delta T_2^a - \Delta T_2^b) - (\Delta T_1^a - \Delta T_1^b)$$

II - Contributions des effets de masse et de volume au déplacement isotopique dans un calcul de perturbation au premier ordre.

Nous ne considérerons ici que les noyaux "pair-pair" pour lesquels le spin nucléaire est nul. Pour les noyaux pour lesquels le spin nucléaire n'est pas nul, on appellera déplacement isotopique l'écart entre les centres de gravité des structures hyperfines relatives aux différents isotopes. Nous définirons ces centres de gravité à propos du déplacement isotopique du rubidium (chapitre II, paragraphe II).

Considérons un atome de spin nucléaire nul. Soient  $\mathcal{H}$  l'hamiltonien de l'atome réel et  $\mathcal{H}_0$  l'hamiltonien de l'atome fictif de volume nul et de masse infinie,  $|\Psi\rangle$  et  $|\Psi_0\rangle$  les fonctions propres associées à un même niveau. Le déplacement isotopique absolu de ce niveau est  $\Delta T = \langle \Psi | \mathcal{H} | \Psi \rangle - \langle \Psi_0 | \mathcal{H}_0 | \Psi_0 \rangle$ .  $\mathcal{H}_0$  est diagonal dans l'espace des fonctions propres  $|\alpha J M_J\rangle$  correspondant aux énergies  $E_{\alpha J}$ . Si les différences entre les énergies  $E_{\alpha J}$  sont grandes devant  $\Delta T$  (les écarts  $\Delta E_{\alpha J}$  sont généralement de  $1000 \text{ cm}^{-1}$  et  $\Delta T$  de l'ordre de  $qq. \text{ cm}^{-1}$ ) le premier ordre de la théorie des perturbations stationnaires est suffisant pour calculer  $\Delta T$  et  $\Delta T = \langle \Psi_0 | \mathcal{H} - \mathcal{H}_0 | \Psi_0 \rangle$ .

La différence  $(\mathcal{H} - \mathcal{H}_0)$  est la somme de l'opérateur énergie cinétique du noyau, inversement proportionnelle à sa masse,  $\frac{P^2}{2M}$ , et de l'opérateur énergie potentielle des électrons à l'intérieur du volume du noyau,  $\sum_i U_i$ .  $\Delta T$  est donc la somme de deux termes : le premier, inversement proportionnel à la masse du noyau, est le terme de masse, le second le terme de volume. Un rappel des calculs des termes de masse et de volume est donné dans l'annexe I. On pourra cependant faire les remarques suivantes.

A - Remarques sur l'effet de masse.

Dans le système du centre de masse, la conservation de la quantité de mouvement conduit à  $\vec{P}_N + \sum_i \vec{P}_i = \vec{0}$ .  $-\vec{P}_N$  s'écrit donc comme la somme des quantités de mouvement relatives aux électrons:  $+\sum_i \vec{P}_i$ . On en déduit que le terme de masse se met sous la forme d'un terme purement électronique divisé par la masse du noyau. Le calcul de la partie diagonale du terme électronique est trivial et conduit à l'effet de Bohr, celui de la partie non diagonale, beaucoup plus complexe, conduit à l'effet spécifique de masse. On pourra cependant écrire dans tous les cas l'effet de masse sous la forme

$$\Delta T_M = K \cdot \frac{1}{M}$$

où  $K$  est un facteur électronique très difficile à évaluer.

B - Remarques sur l'effet de volume.

L'effet de volume  $\Delta T_V = \langle \Psi_0 | \sum U_i | \Psi_0 \rangle$  est le même dans un calcul non relativiste pour tous les niveaux d'une même configuration car  $U_i$  ne dépend ni du spin, ni de l'orientation du moment cinétique. Ce résultat n'est vrai que si la configuration étudiée est bien isolée. Dans le cas contraire une "règle de partage" [9,10] traduisant le fait qu'un mélange de configuration a une action linéaire sur le déplacement isotopique de volume a été vérifiée de manière satisfaisante par divers auteurs [9,11,12]. Il suffira donc de s'intéresser au déplacement isotopique absolu d'un électron de nombres quantiques  $(n, l)$ . Cependant, si l'on mesure par exemple le déplacement isotopique d'une configuration donnée contenant une paire extérieure d'électrons  $s^2$  on constate qu'il n'est pas égal au double du déplacement isotopique d'une configuration relative

au même élément qui ne contiendrait qu'un seul électron  $s$ . Brix et Kopfermann [13,14] ont les premiers attribué ce fait à un effet d'écran mutuel des deux électrons  $s$  et ont étendu cette notion aux électrons  $p$  et  $d$ . On écrira donc  $\Delta T_v = \beta \langle \Psi_0^i | U_i | \Psi_0^i \rangle$  où  $|\Psi_0^i\rangle$  est la fonction d'onde de l'électron considéré comme seul et  $\beta$  un facteur d'écran [14, 15].

En supposant que le mouvement des protons est rapide par rapport à celui des électrons, l'électron "voit" un potentiel coulombien moyen  $U_i(r)$  continu à l'intérieur du noyau. Si, de plus, la longueur d'onde associée à l'électron est grande devant le rayon du noyau, la probabilité de présence de l'électron à l'intérieur du noyau est constante et a pour valeur le carré de la fonction d'onde en  $r=0$ . Le déplacement isotopique de volume peut s'écrire comme le produit d'un terme électronique  $E = \beta |\Psi_0|^2$  (pour un électron  $s$ ) et d'un terme nucléaire  $\varphi(N)$

$$\Delta T_v = \beta |\Psi_0|^2 \varphi(N)$$

En fait l'électron, surtout pour les éléments "lourds" de la classification pour lesquels la contribution de l'effet de volume au déplacement isotopique est importante, doit être considéré comme relativiste à l'intérieur du noyau et à proximité de celui-ci. On intègre alors l'équation de Dirac pour l'électron relativiste dans le potentiel  $U_i$ . Cependant, on ne peut plus supposer que l'électron est seul à des grandes distances  $r$  du noyau. On cherche donc à obtenir le raccordement, à une valeur de  $r$  faible, entre la fonction relativiste obtenue par intégration de l'équation de Dirac et la fonction non relativiste que donnerait une méthode quelconque convenant à  $N$  électrons. On démontre [97] alors que, même dans ces conditions, le déplacement isotopique de volume pour un électron  $n,s$  s'écrit comme le produit d'un terme ne contenant que des quantités nucléaires  $\varphi(N)$  par  $|\Psi_0|_{ns}^2$  où  $\Psi_0$  est la valeur de la fonction monoélectronique non relativiste de l'électron en  $r=0$ .

C - Comparaison entre la théorie et l'expérience. Droite de King.

En résumé, au premier ordre de la théorie des perturbations stationnaires, le déplacement isotopique absolu d'un niveau et, par suite, le déplacement isotopique relatif à une transition est la somme d'un terme de masse et d'un terme de volume, chacun de ces termes étant le produit d'un facteur nucléaire [qui peut être trivial en ce qui concerne l'effet de masse ( $\frac{1}{M}$ ), mais beaucoup plus complexe en ce qui concerne l'effet de volume] et d'un facteur électronique. Il conviendra de vérifier, dans la mesure du possible, que le déplacement isotopique mesuré peut être considéré comme la somme d'un terme de masse et d'un terme de volume (c'est-à-dire qu'un calcul de perturbation au premier ordre est suffisant pour interpréter les résultats expérimentaux).

Pour réaliser cette vérification on effectue deux séries de mesures de déplacement isotopique relatifs, aux transitions de nombre d'ondes  $\sigma$  et  $\sigma'$  pour différents couples d'isotopes d'un même élément, et on porte sur un graphe (appelé graphe de King [16]) les points expérimentaux de coordonnées

$$\left\{ \begin{array}{l} x = \Delta\sigma_{\text{exp}}(M_j, M_i) \cdot \frac{M_i M_j}{M_i - M_j} \\ y = \Delta\sigma'_{\text{exp}}(M_j, M_i) \cdot \frac{M_i M_j}{M_i - M_j} \end{array} \right. .$$

Dans l'hypothèse où un calcul au premier ordre est suffisant, le déplacement isotopique pour la transition  $a \rightarrow b$  de nombre d'ondes  $\sigma$  relatif au couple d'isotopes de masses respectives  $M_i, M_j$  s'écrit sous la forme :

$$\Delta\sigma(M_j, M_i) = \left( \frac{1}{M_j} - \frac{1}{M_i} \right) K + [\varphi_j(N) - \varphi_i(N)](E_b - E_a) .$$

Ces points expérimentaux, relatifs aux différents couples d'isotopes sont situés sur la droite d'équation paramétrique ;

$$x = K + E \times C (M_j, M_i)$$

$$y = K' + E' \times C (M_j, M_i)$$

$$\text{où } C(M_j, M_i) = \frac{M_j M_i}{M_i - M_j} \times [\varphi_j(N) - \varphi_i(N)]$$

La pente de la droite donne le rapport des effets de volume des deux transitions ; l'ordonnée à l'origine lie par une relation linéaire les effets de masse des deux transitions.

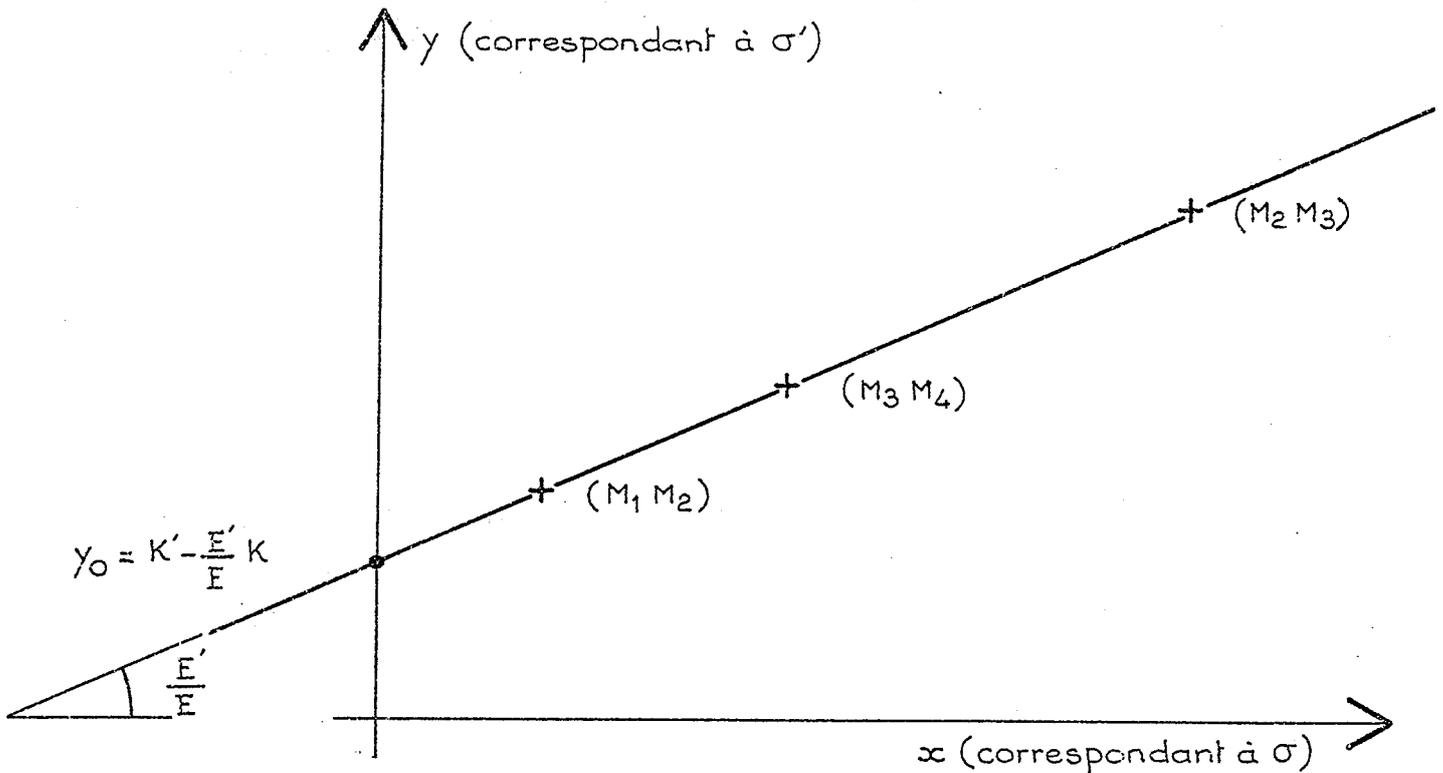


Figure 2

La première droite de King a été tracée à propos du samarium [17,18] en 1963. Depuis, de nombreux résultats expérimentaux ont été regroupés sur de tels diagrammes. En ce qui concerne les isotopes pairs, et aux erreurs expérimentales près, aucun écart à la droite de King n'a été encore mis en évidence\*.

On peut donc bien considérer que ce que l'on mesure expérimentalement est la somme d'un effet de masse et d'un effet de volume.

$$\Delta\sigma = \Delta\sigma_M + \Delta\sigma_V$$

$$\Delta\sigma = \Delta \left[ \frac{K}{M} \right] + \Delta [E \cdot \varphi(N)]$$

---

\* par contre, pour les éléments impairs, quelques écarts à la droite de King ont été observés [18, 19, 20, 21].

### III - Evaluation des déplacements isotopiques de volume et de masse.

D'un point de vue nucléaire, c'est la quantité  $\beta |\Psi_0|^2 \varphi(N)$  (correspondant au terme de volume) que l'on cherche à atteindre, d'un point de vue de l'interaction entre électrons c'est le terme  $K$  qui est intéressant. Or ce n'est que la somme de l'effet de masse et de l'effet de volume que l'on mesure expérimentalement et il est impossible en spectroscopie optique de mesurer séparément chacun des deux effets (tout ce que l'on peut obtenir, ce sont des relations entre les effets de volumes ou entre les effets de masse des différentes transitions) [22].

Il est donc nécessaire, lorsqu'on s'intéresse à l'un des effets, d'avoir recours à un calcul a priori de l'autre. Malheureusement, en ce qui concerne l'effet spécifique de masse, des calculs a priori effectués par Vinti [23,24], Stone [25,26] puis Bauche [27,28], soit par des méthodes paramétriques, soit par des calculs Hartree-Fock ne permettent pas d'atteindre avec une exactitude suffisante l'effet spécifique de masse. Quant au calcul a priori de l'effet de volume, il nécessite la valeur de la quantité  $|\Psi_0|^2$ , que l'on peut connaître à partir des fonctions d'onde obtenues par un calcul Hartree-Fock [29,30] ou par l'expression donnée par Fermi-Segré [31], ainsi que la valeur du terme nucléaire  $\varphi(N)$  qui dépend essentiellement du carré moyen du rayon des charges  $\langle r^2 \rangle$  (cf. annexe I). Si les modèles nucléaires permettant de calculer  $\langle r^2 \rangle$  sont suffisants pour interpréter l'évolution générale de  $\langle r^2 \rangle$  le long de la classification de Mendeleïeff, ils ne sont pas assez précis pour rendre compte des variations de  $\langle r^2 \rangle$  d'un isotope à l'autre.

Mis à part les cas où la contribution de l'un des deux effets, masse ou volume, peut être négligée devant l'autre, il est illusoire à l'heure actuelle de déterminer l'un de ces termes comme la différence entre le résultat de la mesure du déplacement isotopique et le calcul théorique de l'autre.

A - La contribution de l'un des effets est négligeable devant celle de l'autre.

Nous avons vu au paragraphe II que le déplacement isotopique est donné par l'expression :  $\Delta\sigma = \Delta \left( \frac{K}{M} \right) + \Delta [E \cdot \varphi(N)]$ . Avec une très bonne approximation  $\varphi(N) = f(Z) \langle r^2 \rangle$  (Annexe I) où  $\langle r^2 \rangle$  est le carré moyen du rayon de la distribution de charge du noyau et  $f(Z)$  est une fonction croissante de  $Z$  [85]. Le terme de volume croît rapidement ( $\propto A^{11/3}$ ) des éléments légers aux éléments lourds. Par contre, le terme de masse inversement proportionnel à  $M$  décroît des éléments légers aux éléments lourds.

Il est donc concevable que, pour les éléments légers, le déplacement isotopique est en majeure partie dû à l'effet de masse. Pour déceler la contribution de l'effet de volume au déplacement isotopique, on peut comparer l'évolution expérimentale du déplacement isotopique  $\Delta\sigma$  le long d'une séquence d'isotopes à la variation régulière d'un terme inversement proportionnel à la masse dont l'évolution le long de la séquence est analogue à celle de l'effet de masse. Pour cela, on étudie l'évolution de la quantité  $x = \frac{M_i M_j \cdot \Delta\sigma}{M_j - M_i}$  le long d'une séquence isotopique. Lorsque cette quantité, compte tenu des erreurs expérimentales, n'est pas constante pour les différents couples d'isotopes, la contribution de l'effet de volume au déplacement isotopique est ainsi mise en évidence. L'élément le plus léger pour lequel un effet de volume aurait été décelé dans une transition optique est actuellement le calcium [32] ( $A=40$ ). Il est donc raisonnable de supposer que pour les éléments dont la masse est inférieure à 50 la contribution au déplacement isotopique est essentiellement due à un terme de masse.

A l'inverse de ce qui précède, pour les éléments lourds  $A > 140$  et pour certaines transitions bien choisies (par exemple celles faisant intervenir un électron  $s$ , pour lesquelles  $|\psi_0|^2$  est plus important que pour les électrons  $p$ ,  $d$  ...) on pourra négliger la contribution de l'effet de masse devant celle de volume.

Pour ces éléments  $A < 50$  et  $A > 140$ , les résultats expérimentaux permettent d'atteindre les quantités électroniques (dans le cas des éléments légers), soit les variations des quantités nucléaires ( $\delta \langle r^2 \rangle$  dans le cas des éléments lourds). Dans ce dernier cas, les résultats expérimentaux sont en bon accord avec la théorie classique du déplacement isotopique de volume qui suppose  $\langle r^2 \rangle = \frac{3}{5} r_0^2 A^{2/3} (1 + \alpha^2)$  où  $r_0 = 1.2$  fermi et  $\alpha$  est le coefficient de déformation [33]. On en déduit que le fait de considérer le noyau comme une "goutte liquide" rend compte du déplacement isotopique de volume. Nous reviendrons sur ce point dans la troisième partie de ce travail.

E - Les contributions des deux effets sont comparables.

1) Cas des transitions optiques.

Dans le cas des éléments intermédiaires de la classification de Mendeleieff  $50 < A < 140$  la contribution de l'un des effets n'est pas négligeable devant l'autre et, de plus, ces termes sont généralement petits. Il est donc difficile d'obtenir des résultats quantitatifs sur l'effet de volume. Cependant, l'effet de masse variant régulièrement le long d'une séquence isotopique, une irrégularité dans les variations du déplacement isotopique traduit une irrégularité au niveau des propriétés nucléaires qui interviennent dans  $\langle r^2 \rangle$ . C'est ainsi que pour les éléments intermédiaires, même en tenant compte de la déformation du noyau, une variation régulière de la partie sphérique supposant  $r = r_0 A^{1/3}$  est insuffisante pour interpréter certains déplacements isotopiques [14,34]. Des manifestations du modèle en couches ont été mises en évidence, elles conduisent à des variations importantes du déplacement isotopique entre les deux couples d'isotopes dont les nombres de neutrons sont respectivement  $(N-2, N)$  et  $(N, N+2)$  où  $N$  est un "nombre magique"  $N=28, 50, 82$  [3 à 7].

Pour faire ressortir les irrégularités dans le déplacement isotopique de volume le long d'une séquence isotopique, il est intéressant de représenter graphiquement les différentes valeurs que peut prendre le déplacement isotopique de volume. La somme des effets de volume et de masse étant constante et égale au déplacement isotopique mesuré, on considérera l'effet de masse comme un paramètre, on pourra suivre l'évolution relative de l'effet de volume (c'est-à-dire les variations de  $\langle r^2 \rangle$  le long de la séquence isotopique) pour différentes valeurs arbitraires de ce paramètre. Convenons de rapporter à un même isotope  $M_0$  les écarts isotopiques mesurés :

$$\Delta\sigma^\lambda (M, M_0) = \left(\frac{1}{M} - \frac{1}{M_0}\right) K^\lambda + \Delta\sigma_v^\lambda (M, M_0) .$$

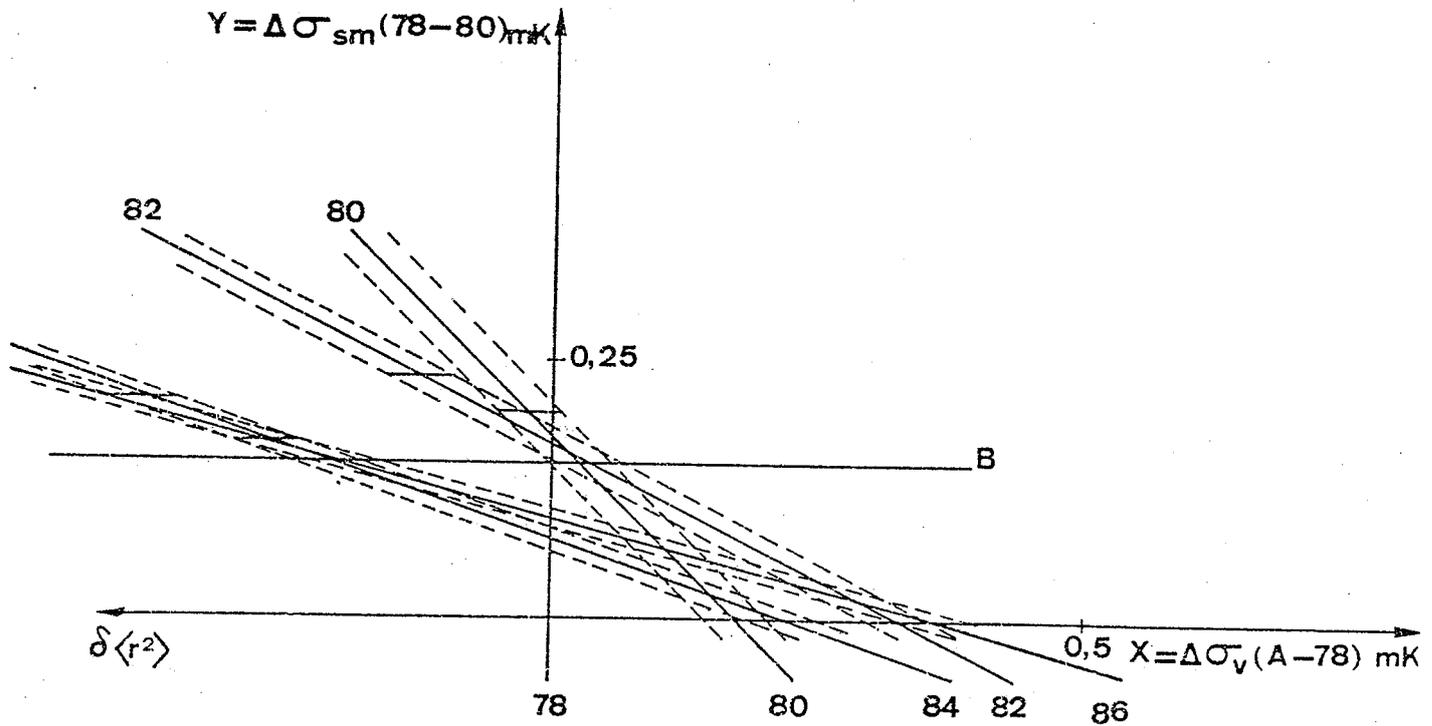
En choisissant comme paramètre l'effet de masse  $y$  relatif au couple  $(M_1, M_0)$  on en déduit les effets de masse de tous les autres couples  $(M, M_0)$  et, par suite, les écarts isotopiques de volume  $x(M, M_0)$  comme l'indique la relation suivante :

$$x = - \frac{M_0 - M}{M_0 - M_1} \cdot \frac{M}{M} y + \Delta\sigma^\lambda (M, M_0) .$$

Pour les différentes valeurs de  $M$  on obtient un réseau de droites dont les intersections par une horizontale  $y=a$  fournissent les déplacements isotopiques de volume qui correspondent à un effet de masse pour le couple  $(M_0, M_1)$  égal à  $a$ .

Un tel diagramme permet de "visualiser" les irrégularités dans l'effet de volume ainsi que leurs variations. C'est ainsi que, lorsque l'effet de volume est nul ou proportionnel à l'effet de masse (!) pour tous les couples d'isotopes, les droites se coupent au point de coordonnées  $[x = 0 \quad y = y_0]$ .

Lorsque les droites, aux erreurs expérimentales près, ne sont pas concourantes la contribution d'un effet de volume au déplacement isotopique est mise en évidence. Le graphe de la figure 3 illustre bien la mise en évidence d'un effet de volume dans le krypton.



Valeurs possibles pour les déplacements isotopiques de volume dans la séquence isotopique du krypton ( $\lambda = 557 \text{ nm}$ ).

Les droites en tireté représentent les erreurs expérimentales.

L'horizontale B met nettement en évidence la contribution d'un déplacement isotopique de volume dans la séquence des cinq isotopes pairs stables 78 à 86 du krypton.

Figure 3

Nous venons de voir que si une transition optique permet d'obtenir des renseignements sur les variations de l'effet de volume, elle permet difficilement d'obtenir des résultats quantitatifs. D'autres méthodes ont été tentées pour obtenir des mesures sur l'effet de volume seul. Nous citerons ici les mesures obtenues en utilisant les transitions X des atomes ou celles des atomes muoniques.

## 2) Comparaison entre une transition optique et une transition X.

### a) Transitions X électroniques.

Comme pour les transitions optiques, les effets de masse et de volume sont les deux contributions essentielles du déplacement isotopique des raies X. Les calculs de Chesler et Boehm [35,36] montrent que pour de telles transitions le déplacement spécifique de masse est inférieur au tiers du déplacement de Bohr (le calcul de ce dernier donnant une contribution très petite, quelques %, au déplacement mesuré). Si l'on trace dans un diagramme de King les déplacements isotopiques résiduels (écart isotopique dont on soustrait l'effet de Bohr) relatifs à la transition optique et transition X, la pente et l'ordonnée à l'origine de la droite ainsi obtenue permettent, si l'on néglige l'effet spécifique de masse pour la transition X, de connaître l'effet de volume (ainsi que l'effet spécifique de masse) pour la transition optique. Malheureusement la précision des mesures pour les transitions X n'est pas suffisante pour déterminer la pente et l'ordonnée à l'origine de la droite de King dans des limites raisonnables. On perd alors ainsi tout le bénéfice que l'on tire de la précision des mesures optiques [36].

### b) Transitions X muoniques.

Un atome muonique est un atome dans lequel un électron a été remplacé par un muon. Un tel atome peut être considéré comme un hydrogénéoïde et son déplacement de masse est un déplacement de Bohr que l'on calcule aisément. On pouvait espérer connaître ainsi, grâce à un

diagramme de King, les contributions des effets de volume et de masse d'un électron optique au déplacement isotopique. Cependant les déplacements isotopiques entre atome et atome muonique sont difficilement comparables. Des termes négligeables dans les déplacements isotopiques optiques tels que la polarisation du noyau et l'effet quadrupolaire dynamique [37,38] ne sont plus négligeables pour les atomes muoniques. La difficulté à évaluer l'effet spécifique de masse dans le cas de transition optique est remplacé ici par la difficulté à évaluer ces termes de polarisation. De plus, la fonction d'onde du muon dépend de la structure nucléaire et il n'est pas toujours satisfaisant d'écrire que le déplacement isotopique de volume est le produit d'un terme nucléaire et d'un terme muonique [39]. Finalement, si la comparaison des déplacements isotopiques entre les atomes et atomes muoniques a permis de confirmer certains résultats comme l'effet de fermeture de couches pour le calcium ( $N=28$ ) et le strontium ( $N=50$ ) elle ne permet pas plus que la comparaison entre deux transitions optiques de séparer les effets qui contribuent au déplacement isotopique [40].

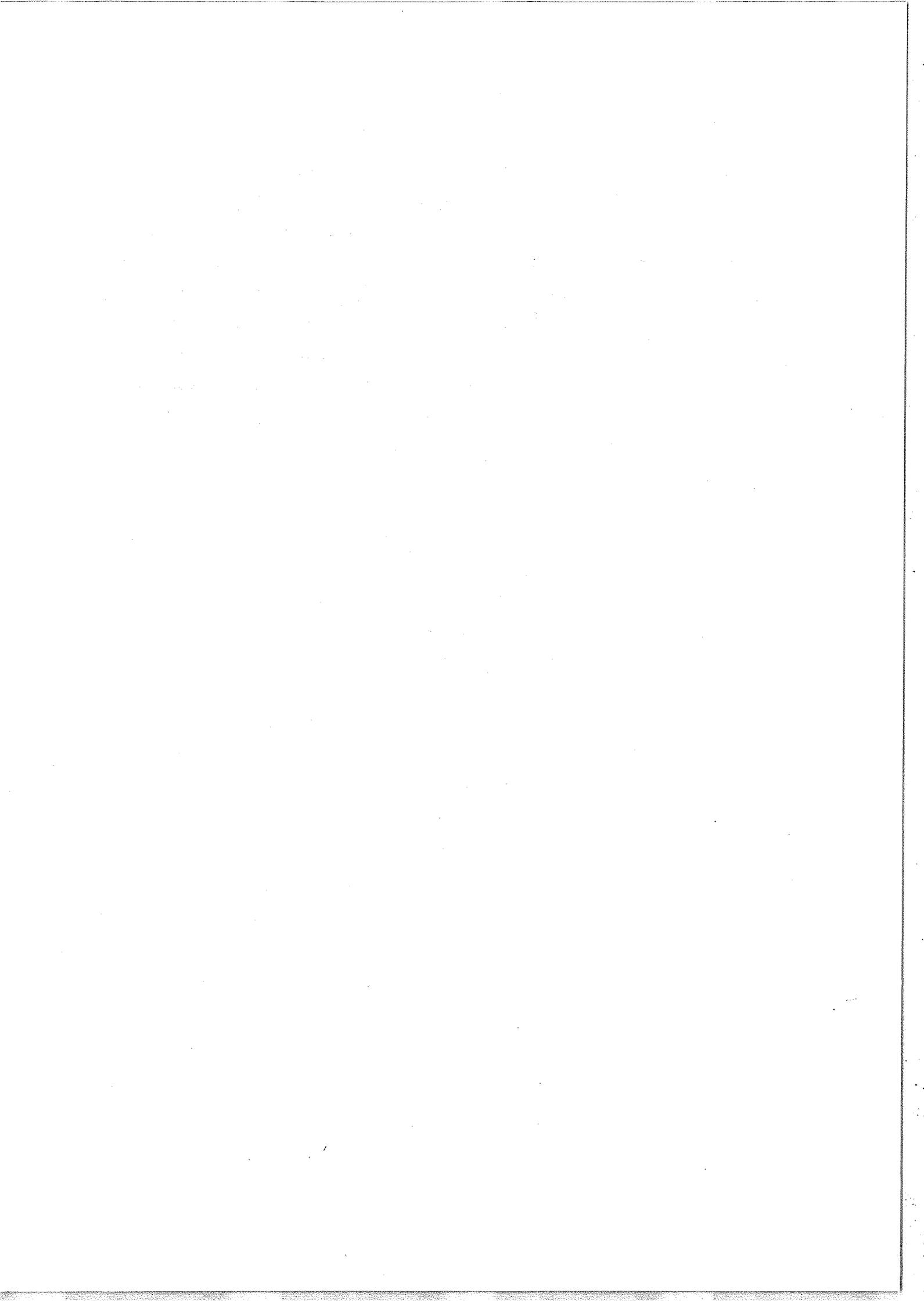
#### IV - Conclusion.

Depuis plus d'un demi-siècle un grand nombre de mesures ont été effectuées sur le déplacement isotopique [2]. Pour les éléments lourds comme pour les éléments légers le problème est relativement simple car les mesures expérimentales permettent d'obtenir directement des résultats quantitatifs soit sur le déplacement spécifique de masse, soit sur le déplacement de volume. Dans un cas comme dans l'autre la comparaison avec des calculs a priori est immédiate.

Pour les éléments intermédiaires le problème est beaucoup plus complexe car c'est la somme de deux effets, effet spécifique et effet de volume, que l'on atteint [41]. Si les mesures expérimentales ne permettent pas de fournir des résultats quantitatifs sur les quantités nucléaires, leurs variations le long d'une séquence isotopique permettent de mettre en évidence l'influence de l'effet de volume et rendent compte de ses irrégularités. C'est ainsi que la mise en évidence de sauts dans les variations du déplacement isotopique, sauts correspondant à la fermeture de couches en neutrons dans le noyau, montre que la théorie de la goutte liquide est inadaptée dans le cas des éléments intermédiaires.

Pour ces éléments où les contributions des effets spécifiques de masse et de volume, même pour des transitions faisant intervenir un électron  $s$ , ne sont pas grandes, il est nécessaire pour mettre en évidence des écarts entre les déplacements isotopiques d'effectuer des mesures avec la plus grande précision.

Aussi est-il nécessaire de faire appel aux techniques de spectroscopie à haute résolution utilisant des méthodes interférométriques, de spectroscopie laser et de spectroscopie sans effet Doppler qui permettent actuellement de mettre en évidence des effets très fins. Ce sont ces techniques que nous allons décrire rapidement dans le prochain chapitre.



## CHAPITRE II

### METHODES EXPERIMENTALES UTILISEES.

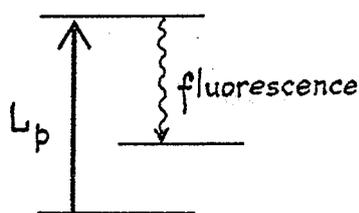
#### I - Généralités.

La largeur des raies spectrales émises par les sources classiques est une limite fondamentale de l'analyse des spectres. Lorsque l'on s'intéresse aux structures isotopiques on constate qu'un bon nombre d'entre elles sont de l'ordre de grandeur et même inférieures à la largeur Doppler des raies émises par la source. Dans de tels cas les méthodes classiques d'analyse des raies spectrales par interférométrie à haute résolution ne sont plus suffisantes pour mesurer les écarts entre les diverses composantes de la structure. L'emploi, lorsque cela est possible, de sources séparées contenant chacune un isotope pur permet de résoudre le problème. Cependant il faut alors tenir compte des erreurs systématiques éventuelles dans la mesure du déplacement isotopique ; en particulier celle provoquée par un défaut d'alignement entre les sources. Nous citerons également les erreurs introduites par une différence de pression entre les deux sources [42,43]. La mise au point de jets atomiques suffisamment collimatés a aussi permis d'atteindre avec précision, mais dans un nombre limité de cas, des déplacements isotopiques très inférieurs à la largeur inhomogène de la raie [44].

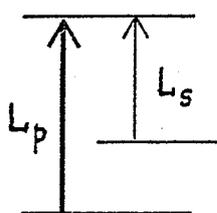
Avec l'apparition des lasers en 1960 quelques expériences très précises, mais ponctuelles, ont été réalisées pour mesurer des déplacements isotopiques inférieurs à la largeur Doppler. C'est ainsi que Javan et ses collaborateurs ont utilisé les battements entre deux lasers stabilisés en fréquence pour mesurer des écarts isotopiques dans deux transitions laser du néon ( $\lambda = 6328 \text{ \AA}$  et  $\lambda = 1.15 \mu$ ) [45,46]. Au Laboratoire Aimé Cotton, une méthode laser purement optique, que nous exposerons au paragraphe IV, mise au point par Brochard et Vetter, a permis de mesurer très précisément les déplacements isotopiques, entre isotopes pairs, des transitions laser infrarouges des gaz rares [47].

Plus récemment, avec le développement des lasers accordables, sont apparues des méthodes utilisant la réponse d'un milieu atomique à la perturbation créée par une onde monochromatique intense. La limite ultime de résolution est alors imposée par la largeur homogène des raies. On peut regrouper ces dernières méthodes en deux catégories :

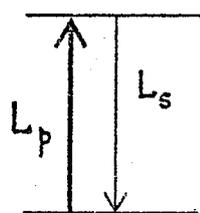
Les méthodes où la lumière interagit de manière sélective en fonction des différentes classes de vitesse ; c'est le cas des techniques d'absorption saturée que l'on exposera au paragraphe V (système à deux niveaux) [48], des méthodes d'affinement des raies de fluorescence ou d'absorption (F.L.N. ou A.L.N.) analogue à l'absorption saturée mais dans un système à trois niveaux [49,50].



F. L. N.



A. L. N.



absorption saturée

$L_p$  laser pompe qui sature l'absorption,  
 $L_s$  laser sonde.

Les méthodes utilisant les transitions à deux photons (  $n$  photons par extension) dans lesquelles c'est le processus élémentaire d'absorption qui nécessite deux photons [51] .

Nous ne ferons pas une revue systématique de ces différentes méthodes : on pourra se reporter à la référence [52] .

Dans les paragraphes suivants, nous exposerons quelques points particuliers des méthodes que nous avons utilisées pour mesurer des déplacements isotopiques du rubidium, cadmium et krypton. Le choix des méthodes employées dépend essentiellement de la transition et des écarts à mesurer. Nous indiquerons dans chaque cas les avantages et les limites des méthodes choisies.

II - Analyse de la lumière émise par une source classique à l'aide d'un spectromètre Fabry-Perot photoélectrique. Mesure du déplacement isotopique du Rubidium  $^{87}\text{Rb}$ - $^{85}\text{Rb}$  dans la raie de résonance  $D_2$ .

A - Principe de la méthode.

La lumière émise par une source classique (ici cathode creuse), contenant les isotopes à étudier, est analysée à l'aide d'un spectromètre Fabry-Perot photoélectrique [53]. Celui-ci est précédé d'un monochromateur Ebert-Fastie permettant d'isoler la transition considérée. L'analyse des raies spectrales est obtenue en faisant varier la différence de marche du Fabry-Perot par variation de l'indice de l'air entre ses lames. L'étalonnage des spectres donnés par le Fabry-Perot analyseur est obtenu à l'aide d'un interféromètre de Michelson [54] dont l'un des bras est situé dans l'enceinte contenant le Fabry-Perot. Le dispositif expérimental est donné sur la figure ci-dessous.

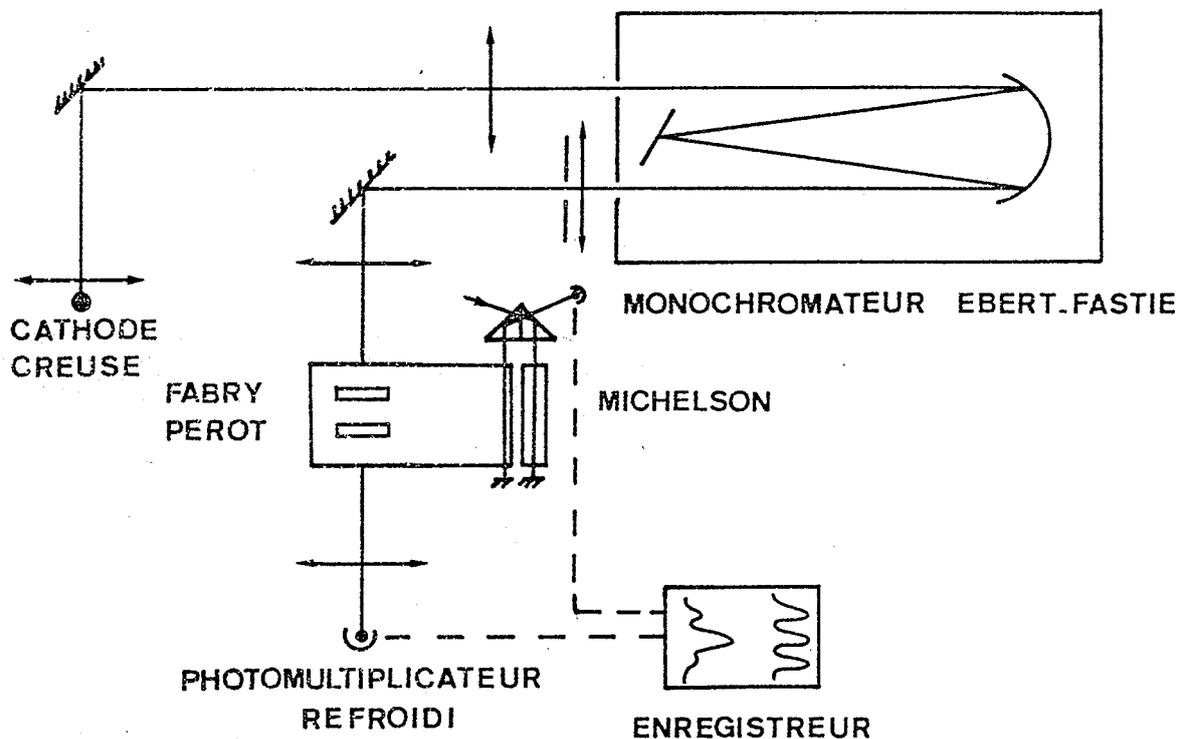


Figure 4

Cette méthode permet de mesurer aisément les distances entre composantes résolues dans la source. En utilisant des cathodes creuses type Schüller refroidies à l'azote liquide, la largeur Doppler des raies émises par la source est plus faible qu'à la température ambiante, ce qui permet une meilleure précision ( $\Delta\sigma_D = 7.10^{-7} \sqrt{\frac{T}{M}} \cdot \sigma$ , où  $T$  est la température absolue,  $M$  la masse de l'élément considéré,  $\sigma$  le nombre d'onde de la transition atomique). Une telle méthode est donc bien adaptée pour mesurer des déplacements isotopiques, entre isotopes pairs, supérieurs à la largeur Doppler des raies. Lorsque l'on veut mesurer un déplacement isotopique entre isotopes impairs, le problème n'est simple que si les structures isotopique et hyperfine sont résolues dans la source.

Nous allons cependant montrer comment le spectromètre Fabry-Pérot permet une détermination précise du déplacement isotopique de la raie  $D_2$  pour les isotopes naturels du rubidium relatifs aux nombres de masse 85 et 87, alors que les structures hyperfines de chacun des isotopes ne sont résolues que partiellement entre elles. Ceci est possible car l'on dispose de résultats très précis obtenus par résonance magnétique sur les structures hyperfines de la transition  $D_2$  pour chacun des isotopes [55].

B - Mesure du déplacement isotopique du Rubidium  $^{87}\text{Rb}$ - $^{85}\text{Rb}$  pour la raie  $D_2$ .

Lorsque les noyaux ont un spin nucléaire  $\vec{I}$  non nul, il existe alors une levée de dégénérescence des niveaux de structure fine. Rappelons que l'on définit le déplacement isotopique correspondant à une transition donnée par le déplacement isotopique de cette transition en l'absence de levée de dégénérescence.

Lorsque les écarts entre les sous-niveaux hyperfins d'un même niveau sont faibles devant les écarts entre niveaux,  $J$  est un bon nombre quantique, la structure hyperfine peut être considérée comme une perturbation devant la structure fine. On en déduit que le déplacement isotopique d'un niveau est égal à la différence entre les barycentres des niveaux hyperfins affectés de poids statistiques égaux à  $(2F+1)$ .

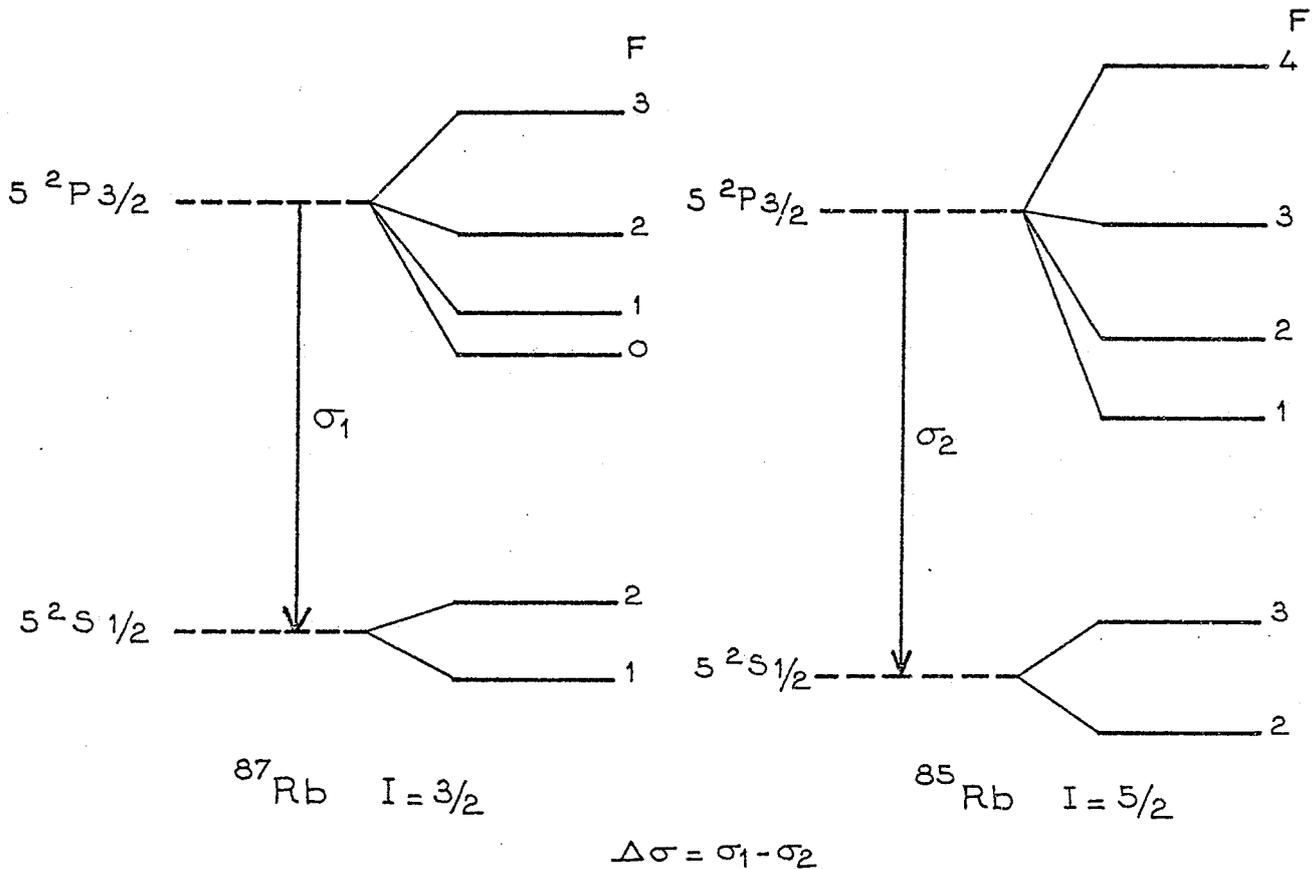


Figure 5

Dans ces conditions on démontre [56] que le déplacement isotopique correspondant à une transition est égal à la différence entre les centres de gravité des structures hyperfines correspondant à chaque isotope.

Cette situation est la plus fréquente. Cependant, il ne faut pas perdre de vue qu'il existe des cas où les écarts entre "sous-niveaux" hyperfins ne sont plus faibles devant les écarts entre niveaux fins.

Ceci signifie que le couplage entre le spin nucléaire et le spin de l'électron est prédominant. Le mercure [21] en est un exemple.

Pour étudier la raie  $D_2$  du rubidium nous n'avons pas cette difficulté puisque les écarts entre sous-niveaux hyperfins sont au plus de  $0.23 \text{ cm}^{-1}$  alors que les écarts entre niveaux fins sont  $237 \text{ cm}^{-1}$ . Le déplacement isotopique est donc l'écart entre les centres de gravité des structures hyperfines relatives aux deux isotopes. En désignant par  $J_i$  l'intensité théorique de la composante hyperfine de nombre d'onde  $\sigma_i$ , le déplacement isotopique s'écrit :

$$\Delta\sigma = \frac{\sum_i J_i^{87} \sigma_i^{87}}{\sum_i J_i^{87}} - \frac{\sum_i J_i^{85} \sigma_i^{85}}{\sum_i J_i^{85}}$$

Sur le schéma de niveaux de la figure 6 nous avons représenté les transitions permises ainsi que le spectre théorique (intensité  $J_i$  [56]). Nous avons reporté au bas de cette figure un enregistrement du spectre obtenu expérimentalement. Il est constitué de quatre profils  $A_1, B_1, A_2, B_2$ . La distance  $d$  entre les centres de gravité des profils symétriques  $B_2$  et  $A_2$ , relatifs respectivement à l'isotope 85 et à l'isotope 87, est la seule que l'on puisse mesurer directement d'après les enregistrements (les profils  $B_2$  et  $A_2$  étant résolus l'un par rapport à l'autre et par rapport au reste de la structure). Connaissant les écarts entre sous-niveaux hyperfins des deux niveaux  $^2S_{1/2}$  et  $^2P_{3/2}$  obtenus par résonance magnétique [55] la mesure directe de  $d$  permet de calculer la valeur du déplacement isotopique.

En effet, en notant de 1 à 12 les composantes hyperfines, le déplacement isotopique s'écrit :

$$\Delta\sigma = \sigma_{10} - \sigma_7 + \frac{\sum_i J_i^{87} (\sigma_i^{87} - \sigma_{10})}{\sum_i J_i^{87}} - \frac{\sum_i J_i^{85} (\sigma_i^{85} - \sigma_7)}{\sum_i J_i^{85}}$$

$$\Delta\sigma = d + \left\{ - \left[ \frac{(\sigma_{11} - \sigma_{10}) \mathcal{J}_{11} + (\sigma_{12} - \sigma_{10}) \mathcal{J}_{12}}{\mathcal{J}_{10} + \mathcal{J}_{11} + \mathcal{J}_{12}} - \frac{(\sigma_8 - \sigma_7) \mathcal{J}_8 + (\sigma_9 - \sigma_7) \mathcal{J}_9}{\mathcal{J}_7 + \mathcal{J}_8 + \mathcal{J}_9} \right] + \frac{\sum_i \mathcal{J}_i^{87} (\sigma_i^{87} - \sigma_{10})}{\sum_i \mathcal{J}_i^{87}} - \frac{\sum_i \mathcal{J}_i^{85} (\sigma_i^{85} - \sigma_7)}{\sum_i \mathcal{J}_i^{85}} \right\}$$

En utilisant les intensités relatives théoriques  $\mathcal{J}_i$  et les valeurs des écarts de structure hyperfine  $(\sigma_i^{87} - \sigma_j^{87})$  et  $(\sigma_i^{85} - \sigma_j^{85})$  données par Senitzky et Rabi [55] nous avons obtenu :

$$\Delta\sigma(87-85) = d - (80.05 \pm 0.01 \text{ mK}) ;$$

ce n'est pas l'expression entre parenthèses qui limite la précision du résultat, mais la mesure de  $d$ .

#### C - Précision de la mesure.

Les précautions prises en ce qui concerne la mesure des intensités des composantes  $A_1, A_2, B_1, B_2$  sont exposées dans l'article en annexe II.

Nous avons mesuré  $d = 82.5 \pm 0.1 \text{ mK}$ . L'erreur donnée correspond à l'erreur quadratique moyenne  $\sqrt{\frac{\sum_i (x_i - \bar{x})^2}{n}} \times \frac{1}{n}$ , calculée à partir de 70 mesures. Ceci conduit à un écart isotopique

$$\Delta\sigma(87,85) = 2.45 \pm 0.10 \text{ mK}$$

La précision dépend principalement de la précision avec laquelle il est possible d'effectuer le pointé de l'axe de symétrie des composantes  $A_2$  et  $B_2$ , donc du rapport signal/bruit des enregistrements.

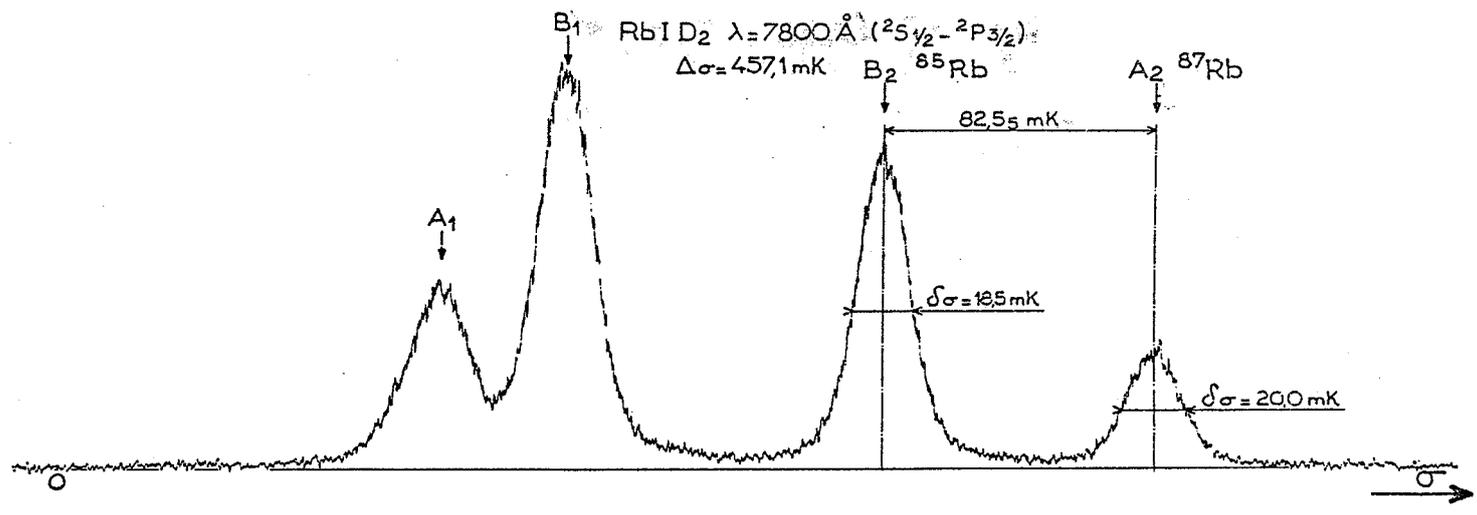
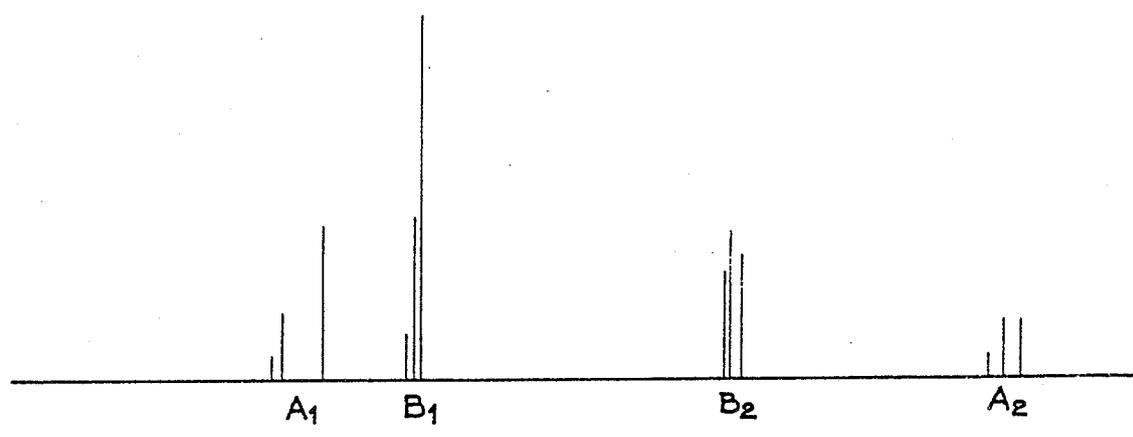
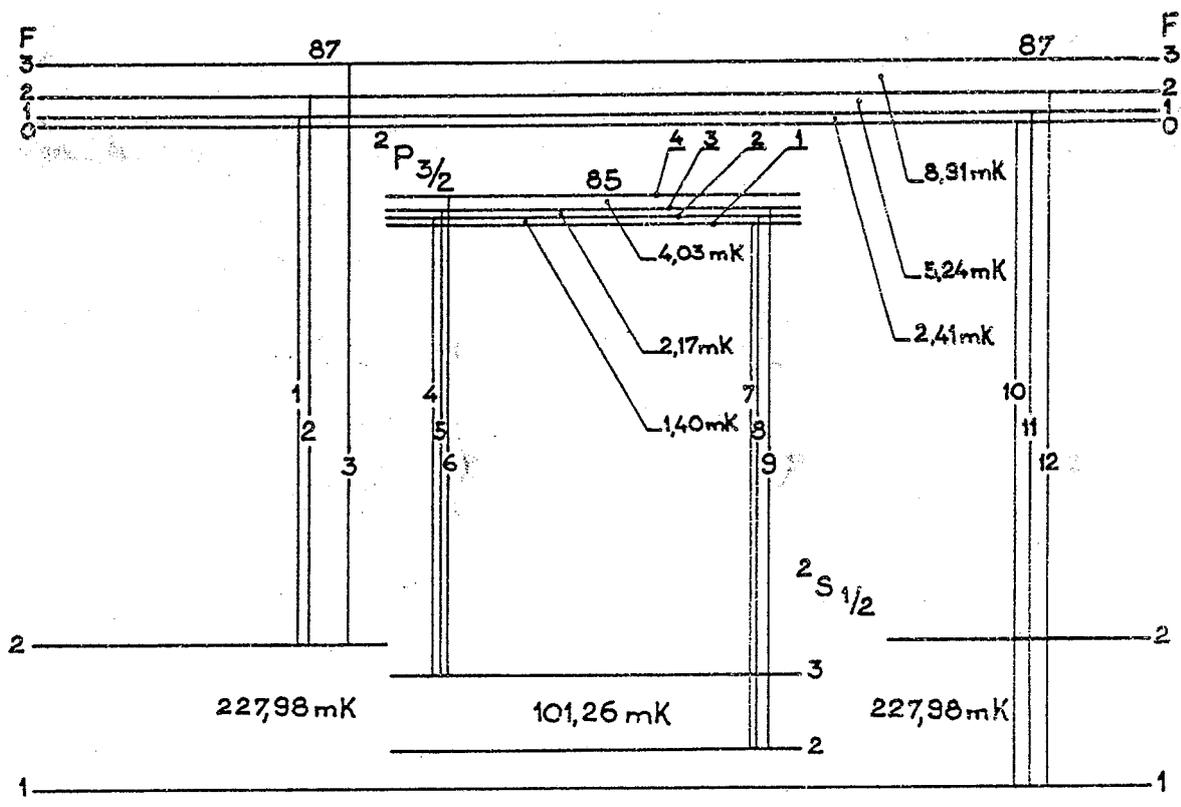


Figure 6

Cependant il peut exister d'autres causes d'erreur dont nous donnerons ici les principales.

a) Une erreur due à l'instabilité de la source : une variation de l'intensité de la lumière émise au cours du temps peut entraîner une déformation des profils qui conduit à une détermination moins précise de l'axe de la raie.

b) Le prémonochromateur permettant d'isoler une transition dans l'ensemble du spectre émis par la source peut apporter des erreurs importantes sur l'intensité et les positions mesurées des composantes de la structure enregistrée. Nous pouvons soit effectuer des corrections a posteriori [57], soit, si la structure de la transition à étudier est isolée, éliminer cette cause d'erreur en prenant pour fonction d'appareil du monochromateur une fonction trapèze (les fentes ont des largeurs différentes) dont le plateau inclut la totalité de la structure. C'est cette dernière solution que nous avons utilisée dans le cas du rubidium.

c) Une autre cause d'erreur possible peut provenir d'irrégularités dans le balayage en fréquence du Fabry-Perot [57]. Cette source d'erreur liée à l'étalonnage, indispensable dans toute mesure d'écart entre nombres d'ondes, se retrouve sous une forme plus ou moins différente dans toutes les méthodes utilisées.

III - Analyse d'une transition laser à l'aide d'un spectromètre Fabry-Perot. Mesure des déplacements isotopiques pour la transition  $4d^9 5s^2 \ ^2D_{5/2} \rightarrow 4d^{10} 5p^2 \ ^2P_{3/2}$  du Cd II .

A - Principe.

La méthode que nous décrivons ici repose sur l'analyse à l'aide d'un spectromètre Fabry-Perot des raies émises par un laser . Pour qu'elle soit applicable il importe que le laser étudié n'oscille que sur une transition à la fois ; en effet, dans le cas où plusieurs transitions sont capables d'osciller il existe souvent des couplages entre ces transitions au sein du milieu amplificateur, lesquels peuvent provoquer des perturbations de la structure en fréquence de l'émission laser [58] . L'oscillation en monoraie peut généralement être obtenue en utilisant des miroirs à revêtement multidiélectrique, ce que nous avons fait, ou éventuellement un prisme sélectif placé dans la cavité.

L'énergie lumineuse transmise par les miroirs est envoyée d'une part dans un spectromètre Fabry-Perot photoélectrique dont le balayage en nombre d'ondes s'effectue par variation lente de la pression du gaz dans l'enceinte le contenant et, d'autre part, dans un analyseur de modes. Ce dernier, constitué par un Fabry-Perot sphérique dont l'un des miroirs est monté sur une céramique piezoélectrique, a pour rôle de contrôler la structure en modes de l'émission laser.

La longueur de la cavité optique est choisie suffisamment grande pour que l'intervalle entre deux modes longitudinaux successifs ( $\frac{1}{2l}$  en  $\text{cm}^{-1}$ ) soit petit devant la fonction d'appareil du spectromètre Fabry-Perot. Ainsi le profil enregistré par celui-ci diffère peu de l'enveloppe des modes. Lorsque la transition atomique étudiée est isolée, ce profil est centré sur la courbe de gain du laser, elle-même centrée sur la transition atomique. En pratique les instabilités thermiques et mécaniques des supports font varier la longueur de la cavité, ce qui a pour effet principal de déplacer de manière erratique la

fréquence des modes. Afin que ces déplacements ne favorisent pas certains modes au détriment d'autres, ce qui conduirait à une dissymétrie dans les profils enregistrés, un des miroirs de la cavité est monté sur céramique piezoélectrique à laquelle on applique une tension en dent de scie à une fréquence supérieure ou égale à 100 Hz. Dans ces conditions la céramique subit un très grand nombre d'oscillations pendant le temps nécessaire pour balayer un intervalle spectral libre du Fabry-Perot, et les profils enregistrés reproduisent convenablement l'enveloppe des modes.

Pour mesurer un déplacement isotopique avec cette méthode, on peut utiliser un tube laser unique contenant tous les isotopes à mesurer à condition que les différentes composantes du profil résultant soient résolues [59]. Dans le cas contraire, où les écarts isotopiques sont inférieurs à la largeur Doppler (cas qui nous intéresse ici) on utilise deux tubes amplificateurs contenant chacun un isotope différent (échantillons enrichis) alignés suivant l'axe de la même cavité laser et excités successivement pendant le balayage du spectromètre Fabry-Perot.

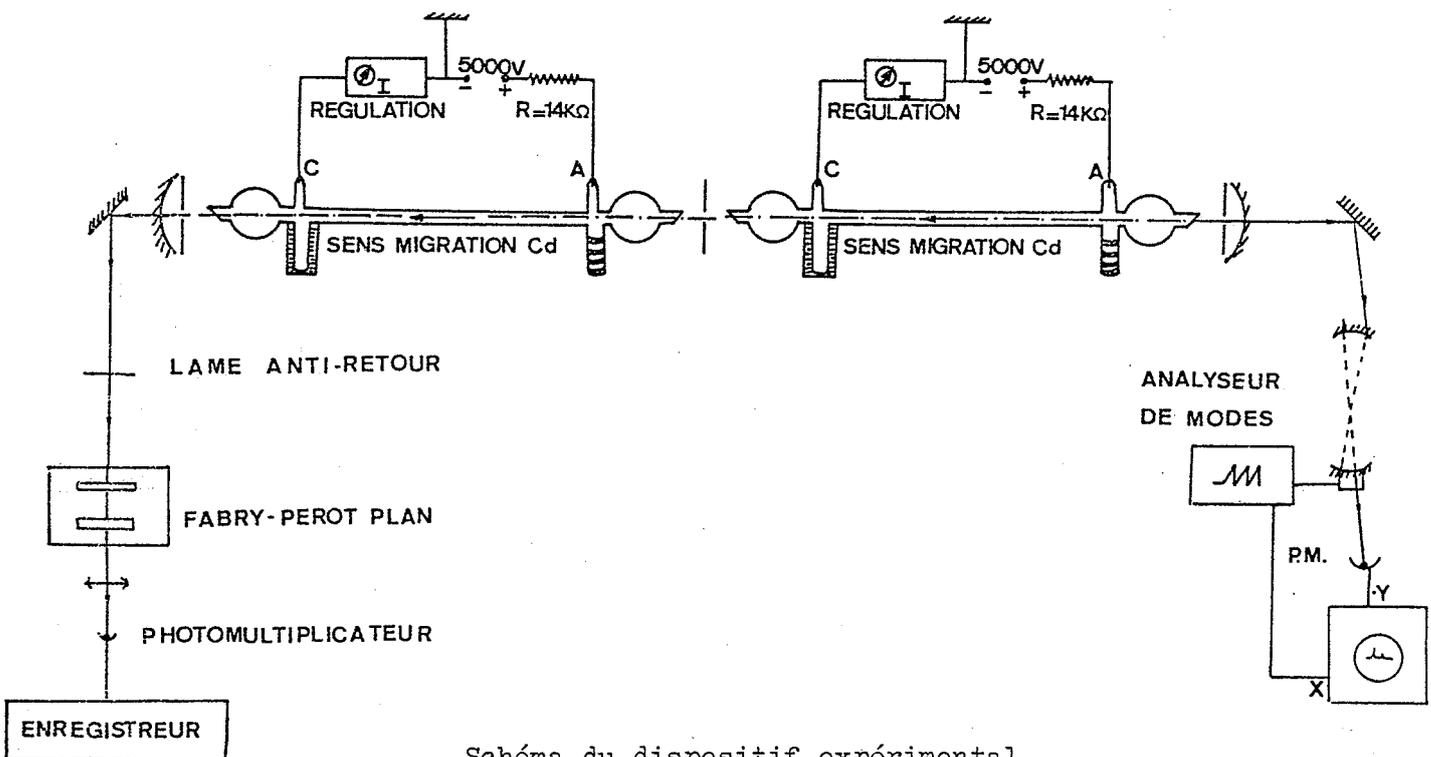


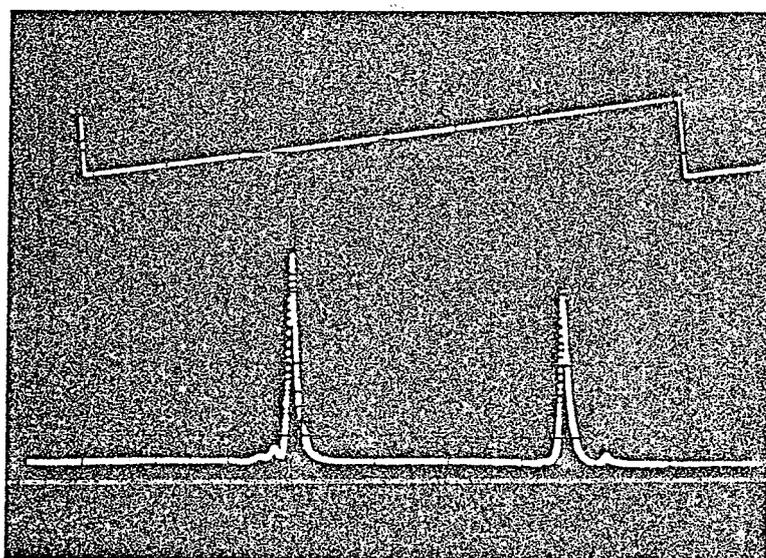
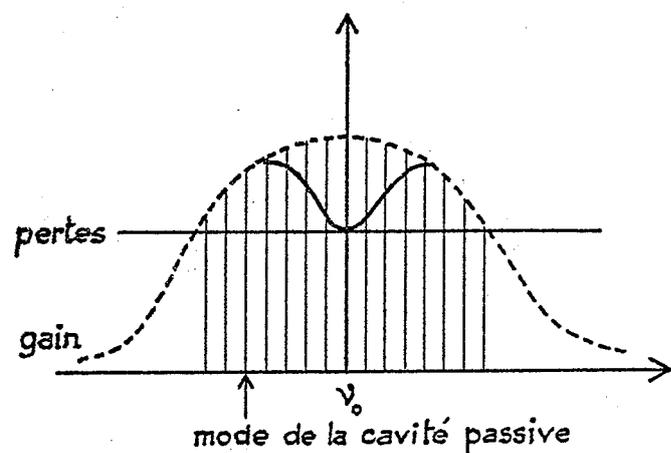
Schéma du dispositif expérimental.

Figure 7

B - Difficultés expérimentales particulières dans le cas où la source est un laser à cadmium ionisé.

1) La transition laser  $4d^9 5s^2 \rightarrow 4d^{10} 5p$  du Cd II présentant un intérêt important dans l'étude du déplacement isotopique, semble a priori un cas favorable pour être étudiée par cette méthode. En effet la transition visible  $\lambda = 4416 \text{ \AA}$  du laser He-Cd est facile à obtenir [60] avec une puissance pouvant atteindre jusqu'à 12 mW. La largeur Doppler de la raie étant 34,5 mK dans nos conditions expérimentales (c'est-à-dire pour une température de four  $t = 230^\circ\text{C}$ ) on s'attend à ce qu'avec une cavité laser ayant 2 m de long un grand nombre de modes [ $n > 14$ ] soient susceptibles d'osciller dans la largeur Doppler.

En fait, une étude expérimentale préliminaire a montré que lorsqu'un seul des deux tubes amplificateurs est excité, l'oscillation laser ne se fait que sur quelques modes (1 à 4 seulement) et que le fonctionnement monofréquence du laser est d'autant mieux réalisé que les pertes sont faibles. Ceci est vraisemblablement dû au fait que l'intervalle entre modes longitudinaux successifs (2,5 mK) est nettement inférieur à la largeur homogène de la transition, compte tenu des effets de saturation.



Fonctionnement monomode du laser He-Cd. La trace supérieure représente la tension appliquée à la céramique de l'analyseur de modes, la trace inférieure le mode du laser dans deux ordres successifs de l'analyseur.

On remarquera que la largeur naturelle (à pression nulle) 2,7 mK [61] est déjà supérieure à l'écart entre deux modes longitudinaux successifs. Dans ces conditions l'oscillation d'un mode diminue suffisamment le gain des autres modes pour les empêcher d'osciller.

L'obtention d'un laser monofréquence due à l'élargissement de la largeur homogène par saturation a aussi été observée dans le cas du laser Ne-Ne [62,63,64]. En particulier Evenson [63] a pu faire fonctionner en régime monofréquence un laser He-Ne long de huit mètres délivrant une puissance de sortie de l'ordre de 50 mW et vérifier que le fonctionnement monomode était lié à l'élargissement par saturation.

Dans notre cas nous avons tenté de réduire les effets de saturation en augmentant les pertes dans la cavité à l'aide de diaphragmes. Nous n'avons pas pu obtenir l'oscillation simultanée de plus de 4 à 5 modes longitudinaux. Il n'a donc pas été possible d'obtenir par cette méthode un profil Doppler de la raie. De plus, puisque la structure isotopique n'est pas complètement résolue lorsque les deux tubes amplificateurs (chacun contenant un isotope différent) sont excités simultanément, la courbe de gain présente alors deux maxima dont les fréquences ne coïncident pas avec celles des transitions atomiques des deux isotopes. Pour mesurer le déplacement isotopique, nous avons donc été conduit à exciter alternativement chacun des tubes et à nous assurer que le mode était centré au centre de la courbe de gain pendant chaque alternance.

Cependant se pose un problème particulier du laser à He-Cd dû au double rôle de la décharge dans le tube : le courant permet d'obtenir des ions excités  $\text{Cd}^+$  et la tension fait migrer ces ions vers la cathode. Cette migration n'étant pas instantanée, un régime stationnaire n'est atteint que lorsque la décharge a été établie depuis quelques minutes. L'excitation successive des deux tubes n'est donc pas compatible avec un temps de balayage raisonnable du Fabry-Perot. Le procédé expérimental utilisé pour mesurer les déplacements isotopiques de la transition laser  $\lambda = 4416 \text{ \AA}$  est exposé dans l'article en Annexe III.

2) Nous donnerons ci-dessous les résultats expérimentaux obtenus en excitant simultanément les deux milieux amplificateurs situés dans la cavité laser et contenant chacun un isotope de cadmium enrichi à plus de 95% afin de les comparer aux résultats obtenus en excitant les tubes séparément.

Lorsque les milieux amplificateurs sont excités simultanément avec la même intensité de courant le signal émis par le laser, analysé par le Fabry-Perot photoélectrique, est constitué de deux raies symétriques de largeur 4,5 mK d'intensités comparables mais dont l'écart  $b$  est plus faible que l'écart  $\Delta\sigma$  entre les nombres d'ondes associés aux transitions atomiques relatives à chacun des isotopes. Nous avons mesuré ces écarts pour les couples d'isotopes (112,110) (114,112) (114,110).

Les résultats expérimentaux sont rassemblés dans le tableau ci-dessous.

tube A	tube B	$\Delta\sigma$ mK	$b$ mK
Cd <sub>110</sub>	Cd <sub>112</sub>	53.4	40.0
Cd <sub>112</sub>	Cd <sub>114</sub>	46.7	31.6
Cd <sub>110</sub>	Cd <sub>114</sub>	100.2	99.2

Dans chaque série d'expériences l'écart  $b$  est indépendant du courant de décharge (entre 50 et 140 mA, domaine dans lequel nous avons obtenu l'émission laser). Par contre nous avons effectué toutes ces mesures pour une même pression d'hélium de 3 torr.

Les différences entre les valeurs obtenues pour  $b$  et celles mesurées pour  $\Delta\sigma$  montrent que, même pour un déplacement isotopique supérieur à trois fois la largeur Doppler, on ne peut pas pratiquer l'excitation simultanée des différents isotopes pour mesurer les écarts isotopiques (figure 9).

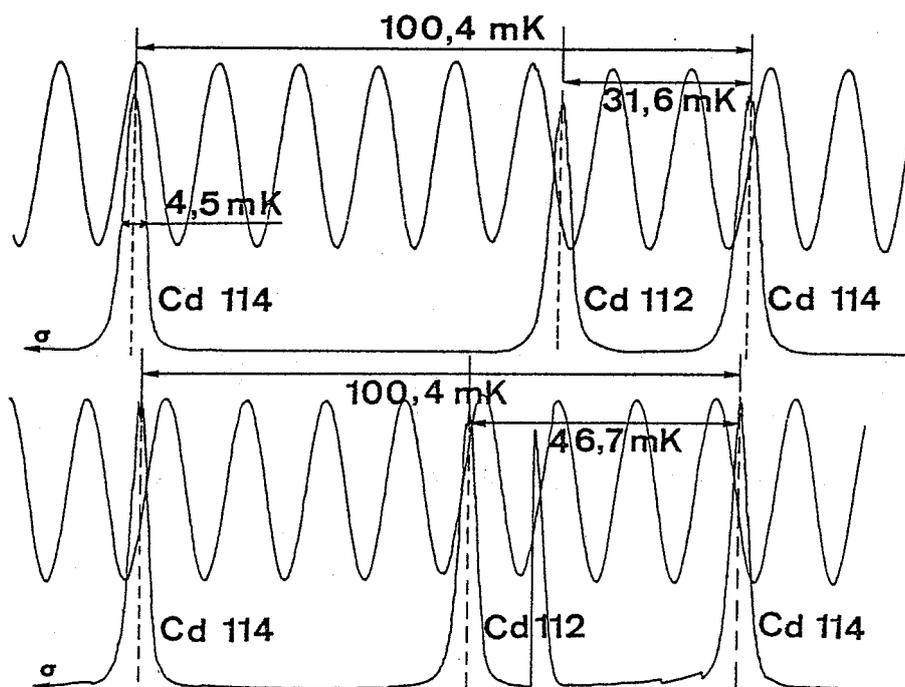


Figure 9

Les deux tubes sont excités simultanément.

Les deux tubes sont excités successivement.

Pour expliquer de tels écarts entre  $b$  et  $\Delta\sigma$  nous avons testé l'hypothèse simple qui consiste à assimiler la courbe de gain du laser, pour chaque isotope, au produit de convolution d'une gaussienne de largeur 34,5mK avec une lorentzienne. Une telle hypothèse conduirait pour les trois séries de mesures à la même largeur homogène  $\tilde{\gamma}$  égale à 32mK. Cette largeur est environ 6 fois plus grande que la largeur naturelle augmentée des effets de collisions des ions  $\text{Cd}^+$  avec les électrons [65] et avec l'hélium [66] ( $\gamma_{ab} = 5\text{mK}$  pour une pression d'hélium de 3torr). L'écart entre 5 et 32mK serait alors dû aux effets de saturation et conduirait à un coefficient de saturation  $\chi \approx 35$  obtenu à partir de la relation  $\tilde{\gamma} = \gamma_{ab} \sqrt{1+\chi}$ .

Nous avons alors tenté d'évaluer la saturation dans la cavité à partir de la puissance de sortie du laser. On sait que le coefficient de saturation est donné par :

$$\chi = A_{ij} (2J+1) \frac{h \lambda^3}{64 \pi^4} \frac{E^2}{\pi^2 \gamma_{ab} \gamma}$$

où  $A_{ij}$  est la probabilité de transition du niveau  $j \rightarrow i$

$E^2$  la densité d'énergie dans la cavité

$\gamma_{ab}$  la largeur naturelle élargie par pression  $\gamma_{ab} = \frac{\gamma_a + \gamma_b}{2} + \alpha \rho$

$\gamma$  définit par  $\frac{2}{\gamma} = \frac{1}{\gamma_a} + \frac{1}{\gamma_b} - \frac{A_{ij}}{\gamma_a \gamma_b}$ .

On évalue la densité d'énergie dans la cavité par  $E^2 = \frac{8\pi \mathcal{P}}{(1-R)c S}$  où  $\mathcal{P}$  est la puissance de sortie du laser que l'on mesure,  $S$  la section droite du faisceau laser,  $R$  le pouvoir réflecteur des miroirs (pour des miroirs à revêtement multidiélectrique  $9 \frac{\lambda}{4}$   $R = 98\%$ ). On en déduit alors  $\chi \approx 40$ . Ces deux évaluations de  $\chi$  sont compatibles.

Cependant, pour un tel paramètre de saturation l'élargissement homogène n'est plus lorentzien [67] et la validité de l'hypothèse précédente devient contestable. Néanmoins un tel coefficient de saturation permet d'expliquer une augmentation importante de la largeur homogène. Le fort gain de la transition laser est donc le principal responsable des effets observés et permet d'expliquer qualitativement l'importance des écarts entre  $b$  et  $\Delta\sigma$ .

#### C - Précision des mesures.

Les mesures des déplacements isotopiques pour la transition  $4d^9 5s^2 \ ^2D_{5/2} \rightarrow 4d^{10} 5p \ ^2P_{3/2}$  ont été effectuées en utilisant le laser He-Cd comme source (annexe III). L'incertitude relative est de  $7 \cdot 10^{-3}$ . Celle-ci est meilleure que celle obtenue par d'autres auteurs utilisant comme source une cathode creuse. Ceci est dû en partie au fait que la source laser est plus lumineuse qu'une source classique, ce qui permet de gagner en rapport signal/bruit. Par ailleurs, le fait d'utiliser une source laser plutôt qu'une source classique permet de diminuer la "fonction défaut" du Fabry-Perot. En effet, la faible étendue du faisceau laser par rapport au faisceau émis par une cathode creuse, par exemple, permet de n'utiliser qu'une très petite surface du Fabry-Perot et minimise l'erreur due aux défauts locaux des lames. De plus, lorsque la mesure du déplacement isotopique nécessite l'emploi de deux sources séparées, l'écart entre les inclinaisons des deux faisceaux provenant des deux sources est plus facile à réduire lorsque les deux sources sont deux tubes amplificateurs placés dans la même cavité laser que lorsque les deux sources sont complètement indépendantes. Avec des tubes amplificateurs ayant 1m de long et pour une cavité laser de 2,5m convenablement diaphragmée l'écart instrumental est inférieur à 0,1 mK pour la longueur d'onde  $\lambda = 4416 \text{ \AA}$ .

IV - Mesure du déplacement isotopique par autoexploration d'une cavité laser. Déplacements isotopiques de certaines raies infrarouges du krypton.

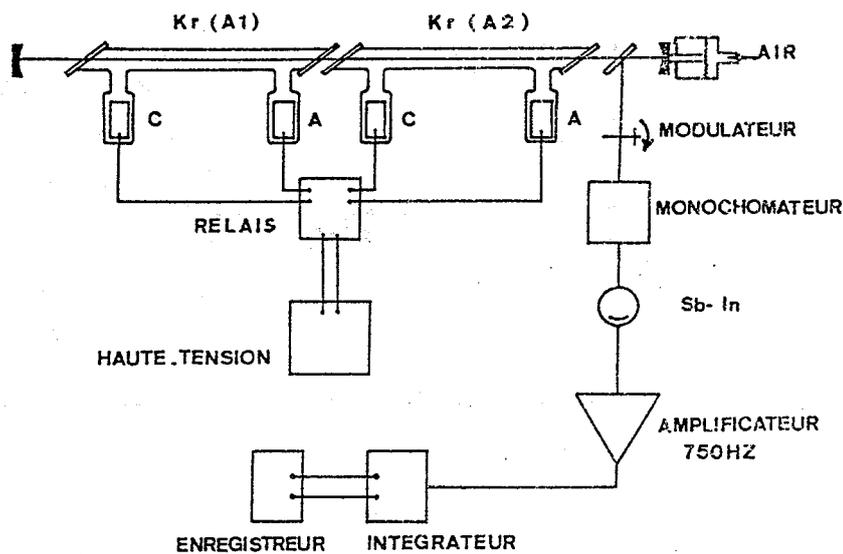
A - Principe de la méthode.

Cette méthode a été mise au point au laboratoire par J. Brochard et R. Vetter [47]. Le principe en est le suivant : En diminuant de façon continue la longueur de la cavité d'un laser pour lequel un seul mode T.E.M.<sub>k00</sub> est excité à chaque instant, on explore la structure de la raie sur les modes successifs (k,00) (k-1,00) (k-2,00) .... Dans ce cas la puissance de sortie du laser  $\mathcal{J}(\nu)$  varie en fonction de la fréquence  $\nu_c$  de la cavité passive. La fréquence  $\nu$  de l'oscillation dépend de la géométrie de la cavité mais aussi de l'indice  $n$  du milieu amplificateur lequel est lui-même une fonction de la fréquence. Cette fréquence est donc différente de la fréquence  $\nu_c$  de la cavité passive et la différence  $\nu - \nu_c$  ne varie pas de façon simple au cours du balayage. Les calculs de W. Lamb [68] dans le cas où la largeur homogène est faible devant la largeur Doppler montrent que cette différence, qui dépend du gain et des pertes dans la cavité, des conditions d'excitation de la décharge, est nulle lorsque la fréquence de la cavité passive est égale à la fréquence de la transition atomique  $\nu_0$  si toutefois celle-ci correspond à une raie symétrique isolée et sans structure. On enregistrera alors un profil  $\mathcal{J}(\nu - \nu_0)$  symétrique et centré sur la fréquence  $\nu_0$  de la transition.

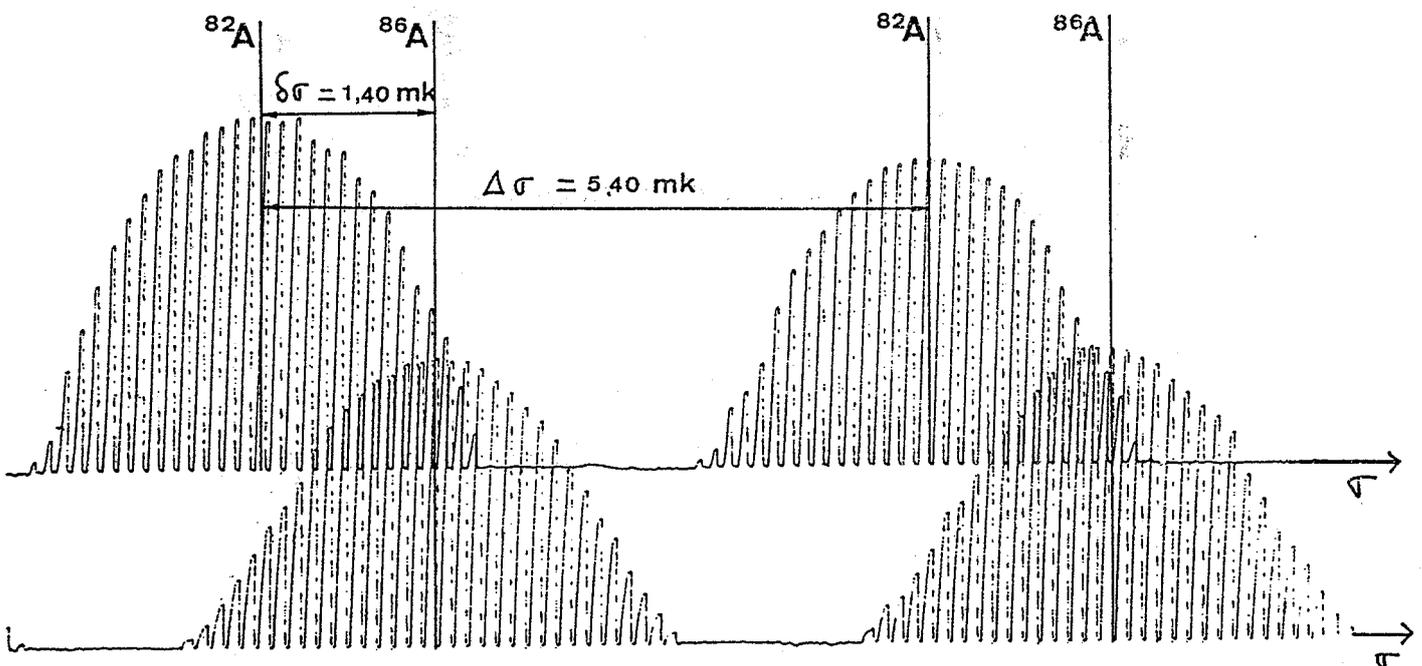
On peut ainsi repérer des positions de raies et mesurer les écarts entre ces positions de manière très précise, l'étalonnage en nombre d'ondes étant obtenu, comme pour un Fabry-Perot, par comparaison avec l'intervalle entre ordres de la cavité. Dans ces conditions le laser sert à la fois de source et d'appareil résolvant. Afin de mesurer un déplacement isotopique plus petit que la largeur Doppler, les deux isotopes sont placés dans deux tubes amplificateurs alignés suivant l'axe de la cavité et excités alternativement à une fréquence voisine de 0,5 Hz

tandis que l'on fait varier lentement la longueur de la cavité. Lorsque le temps mis pour balayer un intervalle entre ordres de la cavité est grand devant la période d'excitation on enregistre "en pointillé" deux profils distincts correspondant aux deux isotopes (voir figure ci-dessous).

Figure 10



$$\lambda = 3,0663 \mu (6p[1/2]_1 \rightarrow 6s[3/2]_2)$$



B - Conditions d'application. Mesure des déplacements isotopiques dans le krypton. Différentes causes d'erreur.

B-1 Conditions d'application.

Pour appliquer cette méthode il est nécessaire :

- d'utiliser des isotopes purs ou suffisamment enrichis (environ 95%) donnant des raies symétriques pour pointer avec certitude la position de la transition atomique ;
- de n'exciter qu'un seul mode à la fois, ce qui conduit à trouver une longueur de cavité suffisante pour qu'il existe un effet laser et cependant assez petite pour que l'intervalle entre modes longitudinaux soit du même ordre de grandeur que la largeur Doppler. La longueur de la cavité ne peut, pour des raisons d'encombrement (celle-ci contient deux tubes amplificateurs), être inférieure à 40 cm, ce qui conduit à un intervalle entre ordres de 12.5 mK. Ceci impose de se limiter dans la pratique à des transitions infrarouges ;
- de pouvoir exciter alternativement chacun des tubes un nombre suffisant de fois pour décrire sans ambiguïté le profil de la raie pendant le temps de balayage d'un intervalle entre ordres (ce qui n'est pas possible dans le cas d'un laser à He-Cd<sup>II</sup> par exemple).

Cette méthode est donc particulièrement bien adaptée aux mesures des déplacements isotopiques des transitions atomiques infrarouges des gaz rares. En effet, l'excitation des gaz rares est assez facile à obtenir et les largeurs Doppler des raies infrarouges sont faibles.

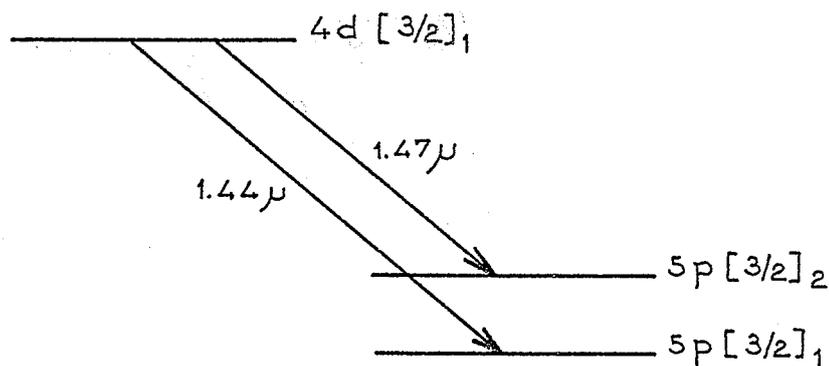
Au laboratoire les déplacements isotopiques de transitions du xénon et de l'argon ont été mesurées ainsi par R. Vetter [47], de même pour le néon par J.-C. Keller [69] et nous avons complété la série des gaz rares avec le krypton en raison de son intérêt dans l'étude du déplacement isotopique de volume.

B-2 Mesure des déplacements isotopiques de différentes transitions infrarouges du krypton.

Les conditions d'excitation des transitions laser obtenues sont exposées dans l'article en Annexe IV. Ces transitions ont des longueurs d'onde comprises entre  $1.44 \mu$  et  $5 \mu$  ce qui conduit, dans nos conditions expérimentales, à des largeurs Doppler comprises respectivement entre  $9.3 \text{ mK}$  et  $2.7 \text{ mK}$ . La longueur optique de la cavité laser étant dans nos différentes séries de mesures  $950$  et  $1150 \text{ mm}$ , l'intervalle entre ordres de la cavité laser est  $5.26 \text{ mK}$  et  $4.55 \text{ mK}$ . Pour les transitions dont les longueurs d'ondes sont supérieures à  $2.5 \mu$  nous avons pu exciter sans difficulté un seul mode à la fois. Pour les transitions dont les longueurs d'onde sont inférieures nous avons rendu l'oscillation monomode en augmentant les pertes de la cavité à l'aide de diaphragmes.

Pour mesurer un déplacement isotopique par cette méthode il faut non seulement que le laser soit monomode mais aussi que les profils enregistrés soient symétriques.

a - Pour cela il est nécessaire d'éliminer toute transition ayant un niveau commun avec la transition à étudier. En effet, considérons les deux transitions  $4d[3/2]_1 \rightarrow 5p[3/2]_1$  et  $4d[3/2]_1 \rightarrow 5p[3/2]_2$  à  $\lambda = 1.44 \mu$  et  $\lambda = 1.47 \mu$  partageant le même niveau supérieur  $4d[3/2]_1$ .



L'existence de l'effet laser à  $1.44 \mu$  tend à dépeupler le niveau  $4d[3/2]_1$  et à diminuer l'effet laser à  $1.47 \mu$  en affectant la répartition des vitesses dans le niveau  $4d[3/2]_1$ . On observe alors expérimentalement une déformation et un déplacement en fréquence très importants de l'un des deux profils si les probabilités de transition des deux raies sont très différentes, des deux profils si les probabilités de transition des deux raies sont comparables, ce qui est le cas ici. Les profils enregistrés sont alors dissymétriques et se modifient fortement d'un ordre à l'autre. Cet effet, déjà observé expérimentalement dans certaines raies du xénon [47], a été étudié théoriquement par Feld et Javan [69].

Afin de nous affranchir de tels effets et de n'obtenir que des raies isolées nous avons, pour certains groupes de transitions couplées, diminué le coefficient d'amplification de certaines raies en faisant varier les pressions partielles de krypton et d'hélium et l'intensité du courant ; pour d'autres groupes de transitions, nous avons diminué le facteur de qualité de la cavité pour l'une d'entre elles en utilisant des miroirs à revêtement multidiélectrique sélectif. Pour le couple de raies  $1.44 \mu$  et  $1.47 \mu$ , il n'a pas été possible de mesurer un déplacement isotopique ; les conditions d'excitation pour ces deux raies étant identiques.

b - Une autre cause de dissymétrie des profils enregistrés peut être due à un défaut de pureté isotopique. En effet, si on considère la courbe de gain du milieu amplificateur pour un mélange de deux isotopes ( $A_1$  à 75% et  $A_2$  à 25%, par exemple), son centre de gravité est déplacé par rapport à la fréquence  $\nu_0$  de l'isotope  $A_1$  vers l'isotope  $A_2$  et cette courbe n'est plus symétrique par rapport à  $\nu_0$ . Nous avons éliminé cette cause de dissymétrie dans les profils en utilisant des isotopes purs à 99.5%. La séparation isotopique a été réalisée à partir de krypton déjà enrichi, provenant de Monsanto, par le Laboratoire de Spectrométrie de Masse René Bernas. Pour éviter la contamination d'un échantillon isotopique par un autre, nous avons employé un tube laser différent pour les cinq isotopes pairs stables :  $A=78, 80, 82, 84, 86$ .

## C - Précision des mesures.

Nous avons mesuré les déplacements isotopiques de 6 transitions laser infrarouges avec une précision absolue de 0.02 mK à 0.05 mK suivant les différentes raies. Les résultats expérimentaux sont donnés dans l'article en Annexe IV.

Outre les causes d'erreur provenant de profils enregistrés présentant une dissymétrie même faible, on doit tenir compte des erreurs provenant :

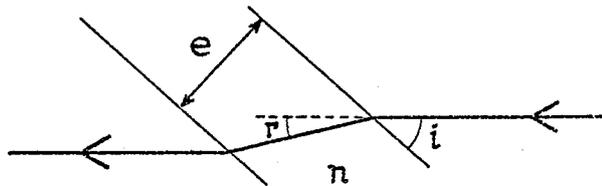
### C-1 Du laser comme source lumineuse.

Cette source possède deux tubes séparés contenant chacun un isotope. Le dérèglement en position de ces tubes l'un par rapport à l'autre et par rapport à l'axe de la cavité conduit à une erreur instrumentale analogue à celle obtenue dans le cas de deux sources séparées mais cependant considérablement réduite par le fait que chacun des tubes permet l'oscillation dans une cavité laser unique. Nous pouvons encore réduire cette erreur en plaçant trois diaphragmes dans la cavité (1 au milieu, 1 devant chaque miroir). L'écart instrumental correspondant a été évalué en remplissant les 2 tubes avec le même isotope à la même pression : cet écart ne dépasse pas 0.015 mK.

Une erreur due à une différence de pression entre les deux tubes doit aussi être envisagée. Pour la transition à  $\lambda = 3.066 \mu$  du krypton qui nécessite pour osciller une pression d'hélium de 2 à 5 torr nous avons mesuré un déplacement de la raie égal à 0.4 mK par torr d'hélium. Les pressions des différents gaz doivent être contrôlées avec précision. Dans notre cas, nous avons vérifié que les capteurs de pression utilisés permettent une comparaison des pressions à mieux que 0.02 torr près, ce qui conduit à une erreur de 0.008 mK.

C-2 Du laser comme instrument de mesure.

La mesure du déplacement isotopique se fait par comparaison avec l'intervalle entre ordres de la cavité laser. La longueur optique  $\ell$  de cette cavité s'écrit, si  $L$  est la longueur entre miroirs,  $e$  l'épaisseur de l'ensemble des fenêtres en fluorine de la cavité et  $n$  l'indice de la fluorine :  $\ell = L + \frac{e}{\cos r} [n - \cos(i-r)]$ .



Pour une longueur optique de l'ordre de 1 m mesurée à 1 mm près, l'intervalle spectral libre est de  $5 \text{ mK} \pm 5 \cdot 10^{-3} \text{ mK}$ . Lorsque l'écart isotopique à mesurer est comparable à l'intervalle entre ordres l'erreur commise sur la mesure de la cavité optique est négligeable ; par contre lorsque l'écart à mesurer nécessite un recouvrement d'ordres (dépassant 2 ou 3) (c'est le cas de la mesure du déplacement isotopique dans certaines raies de l'argon), l'erreur commise sur la mesure de la longueur de la cavité limite la précision absolue sur  $\Delta\sigma$ .

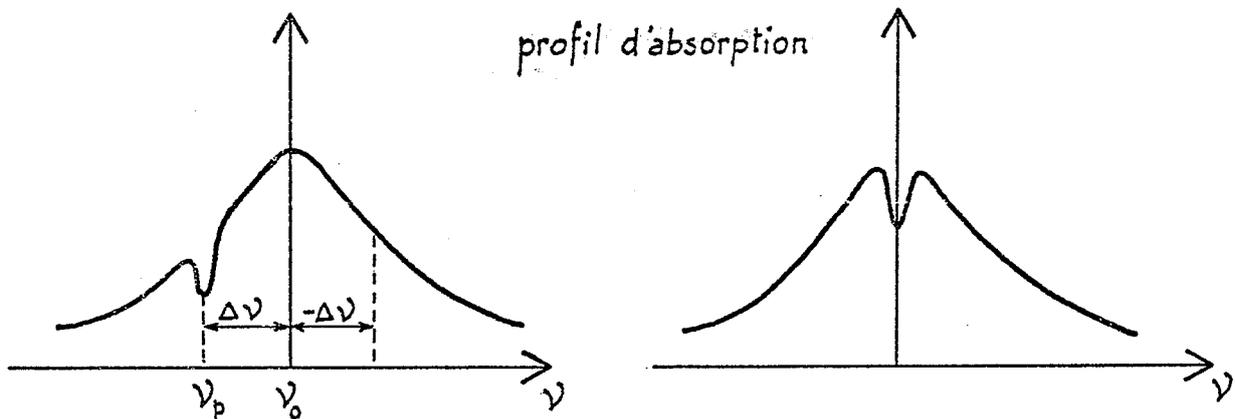
V - Mesure des déplacements isotopiques de la transition à  
 $\lambda = 557,03$  nm du krypton par absorption saturée.

A - Exposé de la méthode.

La méthode d'absorption saturée, de part son principe, permet de s'affranchir de l'effet Doppler en sélectionnant préférentiellement une classe de vitesse.

Un faisceau laser monochromatique de fréquence  $\nu$  (dans notre expérience nous avons utilisé un laser "jet stream" à longueur d'onde variable) sature l'absorption des atomes de vitesse longitudinale  $v_z = c \frac{(\nu - \nu_0)}{\nu_0}$  participant à la transition atomique de fréquence  $\nu_0$ . Une partie du faisceau principal sonde l'absorption des atomes de vitesse  $-v_z$  (les deux faisceaux, sonde et saturant, se propagent en sens inverses dans la cuve d'absorption).

Lorsque  $\nu \neq \nu_0$  les atomes de la classe de vitesse  $-v_z$  absorbent linéairement le faisceau sonde. Par contre, lorsque  $\nu = \nu_0$  les deux faisceaux interagissent avec les mêmes atomes (de vitesse  $v_z = 0$ ), le milieu est déjà saturé par le faisceau pompe et l'absorption du faisceau sonde par le milieu à cette fréquence est plus faible. C'est cette diminution de l'absorption du faisceau sonde que l'on détecte.



Soit  $I_0$  l'intensité du faisceau sonde avant la cuve d'absorption et  $I$  l'intensité du faisceau sonde après la cuve ;  $I = I_0 e^{-\alpha(\nu)l}$  ( $l$  longueur de la cuve). Lorsque l'absorption est faible (inférieure à 10%)  $I - I_0$  est proportionnel au coefficient d'absorption  $\alpha(\nu)$ . Dans l'hypothèse simple où le faisceau saturant "brûle un trou" lorentzien, centré en  $\nu_z$ , dans le profil de répartition des vitesses des atomes participant à la transition, le coefficient  $\alpha(\nu)$  enregistré présente un "trou" de profil lorentzien de largeur  $\frac{\gamma}{2} (1 + \sqrt{1 + \chi})$  où  $\gamma$  est la largeur naturelle de la transition augmentée des effets de pression et  $\chi$  le paramètre de saturation [70] centré en  $\nu_0$ . Pour ne détecter que la perturbation due au faisceau saturant sur le coefficient d'absorption, on module le faisceau saturant à la fréquence de 750 Hz et on détecte à l'aide d'un amplificateur à détection synchrone la partie modulée du faisceau sonde. Le profil d'absorption saturée est obtenu lors du balayage en fréquence du laser. Le dispositif expérimental utilisé est représenté sur la figure ci-dessous.

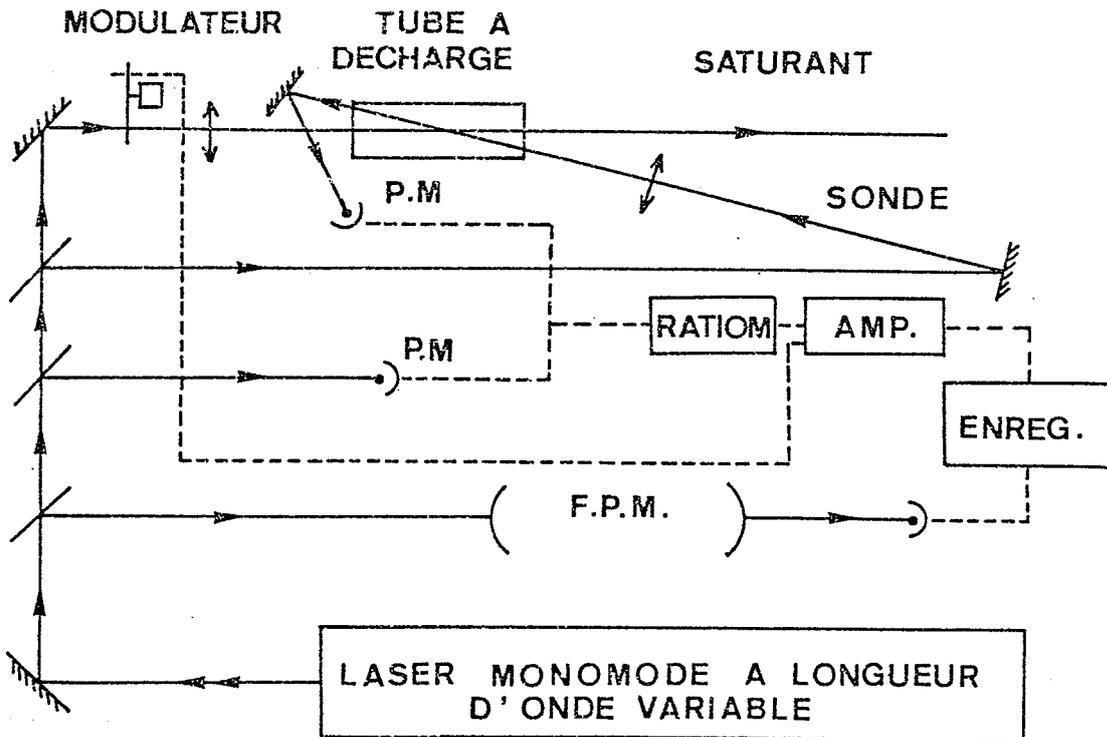


Figure 11

C'est avec ce dispositif que nous avons mesuré les déplacements isotopiques du krypton pour les transitions  $5570 \text{ \AA}$  et  $5562 \text{ \AA}$ . Pour ce faire la cuve contient un mélange isotopique, en proportions comparables, des cinq isotopes pairs stables obtenus à partir d'échantillons enrichis à plus de 99%. Un tel procédé permet à la fois d'éliminer les écarts éventuels dus aux effets de pression, d'obtenir des profils d'intensité comparable pour chaque isotope et d'éliminer complètement l'isotope impair stable  $A=83$  (dont la proportion dans le mélange naturel est de 11%). Les profils enregistrés relatifs à chacun des isotopes ont une largeur à mi-hauteur de 15 MHz, ce qui permet d'obtenir sur un même enregistrement la structure isotopique complètement résolue des cinq isotopes pairs.

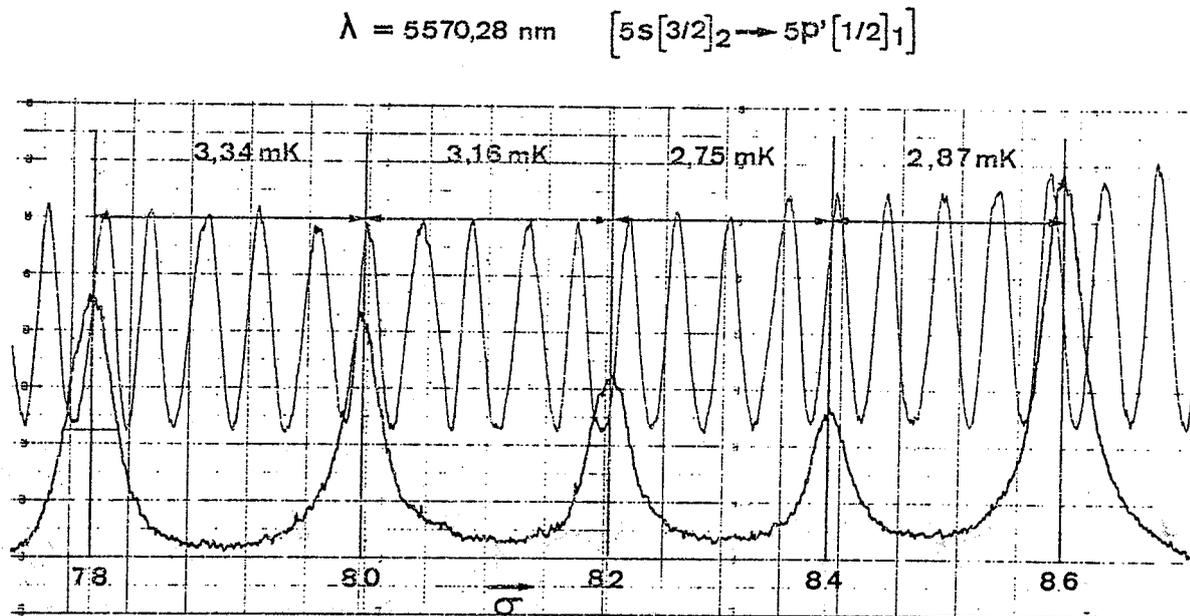
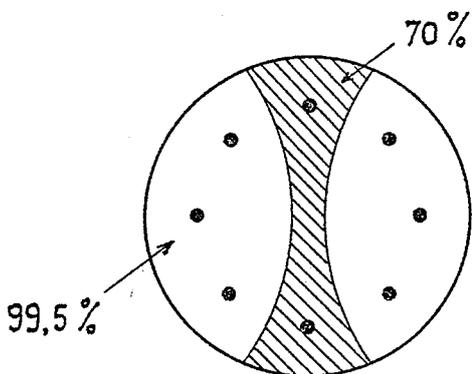


Figure 12

## B - Précision des mesures.

Lorsque la structure est complètement résolue, comme c'est le cas dans notre expérience, la précision des mesures est limitée essentiellement par deux causes : l'étalonnage du balayage en fréquence du laser et le rapport signal/bruit.

Pour étalonner le balayage en fréquence du laser, une partie de l'énergie lumineuse est prélevée du faisceau principal par réflexion vitreuse et envoyée dans un Fabry-Perot. Pour des raisons d'encombrement et de stabilité nous utilisons un Fabry-Perot multipassages [71] (ici 8 passages) de 90 cm de long. Les rayons de courbure de chacun des miroirs sont de 1182 cm, ainsi la figure géométrique due aux différentes réflexions du pinceau laser sur les miroirs est constituée de 8 taches régulièrement réparties sur un cercle ; l'angle  $2\theta$  entre deux taches successives est tel que  $\cos \theta = 1 - \frac{L}{R}$ , c'est-à-dire ici  $2\theta = 45^\circ$ . Les miroirs sont recouverts d'un revêtement multidiélectrique à  $\lambda = 5570 \text{ \AA}$ . L'un des miroirs est réflecteur à 99,5% ; l'autre possède deux secteurs diamétralement opposés, réflecteurs à 70%, permettant le passage de deux taches, le reste de sa surface étant réflec-



teur à 99,5%. L'une de ces deux taches constitue l'entrée de la lumière dans le Fabry-Perot, l'autre permet d'extraire une quantité d'énergie suffisante pour être enregistrée.

L'intervalle spectral libre de Fabry-Perot est  $\Delta\sigma = \frac{1}{16 n L}$  où  $n$  est l'indice de l'air dans le Fabry-Perot. Avec  $n=1$ , on a  $\Delta\sigma = 0,694 \text{ mK}$  soit 20,82 MHz. Pour minimiser les variations de l'épaisseur optique au cours du temps, la monture supportant les miroirs est en invar et le Fabry-Perot est contenu dans une enceinte fermée.

Nous avons travaillé avec l'enceinte remplie d'air au voisinage de la pression atmosphérique, afin de minimiser la dérive thermique due à l'élévation progressive de la température au cours des expériences. En effet, pour une élévation de la température, la variation de l'indice de l'air (loi de Gladstone) conduit à une dérive vers les nombres d'ondes positifs, qui s'oppose à la dérive vers les nombres d'ondes négatifs due à la dilatation de l'invar. Nous avons évalué expérimentalement la dérive résiduelle et vérifié approximativement sa linéarité au cours du temps. Pour cela nous avons enregistré la structure isotopique à des vitesses de balayage très différentes ou bien nous avons mesuré directement le temps au bout duquel le Fabry-Perot a dérivé d'une frange en calant le laser sur un des pics d'absorption saturée. La valeur moyenne obtenue est de 2 mK par heure vers les nombres d'ondes négatifs. La structure isotopique est enregistrée lors du balayage du laser vers les nombres d'ondes positifs. Le temps nécessaire pour enregistrer la structure isotopique est de 5 à 15 mn. Nos mesures doivent être systématiquement diminuées d'une quantité n'excédant pas 1,5% de la valeur mesurée. Nous avons cependant tenu compte dans nos mesures d'une telle correction.

Le rapport signal sur bruit varie beaucoup suivant les conditions expérimentales. Plusieurs causes sont à considérer :

- le bruit dû à la décharge électrique dans la cuve, responsable du peuplement du niveau métastable. Nous avons constaté expérimentalement une diminution très importante du rapport signal sur bruit lors d'une augmentation de pression de krypton malgré l'accroissement du signal. Les enregistrements ont été effectués pour des pressions totales de krypton n'excédant pas 40 mT ;

- les fluctuations d'intensité du laser sont en partie compensées par le ratiomètre qui permet d'obtenir le rapport  $\frac{I - I_0}{I_0}$ . Mais les fluctuations en fréquence rapides par rapport à la vitesse de balayage du laser élargissent les résonances d'absorption saturée et diminuent le

rapport signal sur bruit. De plus, l'apparition d'un deuxième mode au cours du balayage peut considérablement diminuer ce rapport ;

- la saturation du milieu joue un rôle important sur le rapport signal sur bruit. En effet, l'intensité du faisceau sonde étant pratiquement constante, le photomultiplicateur reçoit toujours le même nombre  $N$  de photons et le bruit de photons en  $\sqrt{N}$  est donc constant. Par contre l'intensité du signal mesuré, de l'ordre de  $10^{-3} N$  croît avec la saturation. Le rapport signal sur bruit est plus grand à forte saturation. Cependant, pour des paramètres de saturation  $\chi$  de l'ordre de 3, les largeurs  $\gamma$  à mi-hauteur des résonances d'absorption saturée sont doublées et la structure isotopique est alors moins bien résolue. Nous avons préféré utiliser des saturations faibles ( $\chi \approx 0.1$ ).

En définitive la précision absolue de ces mesures de déplacements isotopiques des raies à 5570 Å et 5562 Å du krypton a été de 1 MHz, donc comparable à celle obtenue dans la mesure des déplacements isotopiques des raies infrarouges du krypton par autoexploration de la cavité laser. Mais les déplacements isotopiques de volume étant plus grands pour les raies visibles que pour les raies infrarouges la précision relative obtenue est meilleure.

#### C - Avantage par rapport aux autres méthodes. Limites.

Lorsque l'on dispose d'un laser monomode suffisamment puissant pour saturer la transition à étudier (c'est-à-dire permettant d'obtenir pour cette transition un coefficient de saturation  $\chi \gg 0.1$ ) et balayable continuellement en fréquence dans le domaine à étudier, une expérience d'absorption saturée permet de s'affranchir des causes d'erreur dues aux sources séparées en n'utilisant qu'une seule cellule contenant tous les isotopes.

Cette méthode est particulièrement bien adaptée à la mesure d'écartis isotopiques inférieurs à la largeur Doppler, mais cependant résolus par rapport à la largeur homogène. Une telle méthode devient moins précise dans la mesure du déplacement isotopique entre isotopes de masse impaire. En effet, les intensités des composantes de structure hyperfine peuvent être, suivant les conditions expérimentales très différentes des intensités théoriques, ce qui conduit à ne déterminer le centre de gravité de la structure hyperfine qu'à partir de la position de ses composantes. Or, même dans le cas où la structure hyperfine est théoriquement résolue par rapport à la largeur homogène, les résonances de croisement par effet Doppler compliquent la structure enregistrée [73,74]. De plus, les différentes composantes hyperfines peuvent être déplacées et élargies par pression de manière différente [72]. La mesure de déplacements isotopiques entre isotopes de masses impaires reste difficile quelle que soit la méthode utilisée.

Dans le cas de la mesure d'un déplacement isotopique entre isotopes de masse paire, une des limites de la méthode est liée aux collisions élastiques.

Nous avons examiné les profils d'absorption saturée pour les transitions

$$\left\{ \begin{array}{l} 5s[3/2]_2 \rightarrow 5p'[1/2]_1 \\ 5s[3/2]_2 \rightarrow 5p'[3/2]_2 \\ 5s[3/2]_1 \rightarrow 5p'[1/2]_1 \end{array} \right.$$

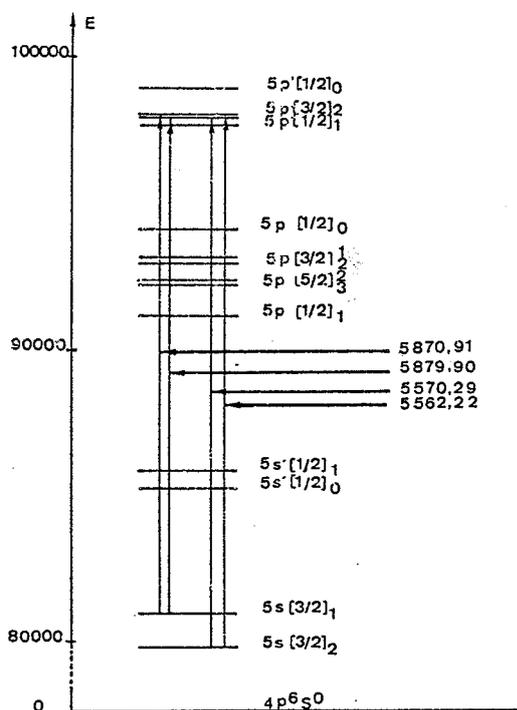


Figure 13

Schéma des niveaux du krypton.

En ce qui concerne les transitions faisant intervenir le niveau métastable  $5s[3/2]_2$  le profil d'absorption saturée pour un seul isotope est constitué d'un fond gaussien de largeur  $\Delta\sigma_D/\sqrt{2}$  auquel est superposé un pic lorentzien centré sur la transition. La présence du fond gaussien s'explique par l'intervention des collisions élastiques [75, 76] qui rethermalisent la classe de vitesses sélectionnée par le faisceau saturant. Nous avons étudié les variations du rapport  $I_f/I_p$  de l'intensité du fond gaussien à l'intensité du pic lorentzien en fonction de la pression de krypton. Pour une pression de krypton supérieure à 2 torr, on ne distingue plus de pic lorentzien, tandis que à 12 mT le fond a presque disparu. Dans le cas des mélanges utilisés pour mesurer les écarts isotopiques, seules les pressions partielles de chaque isotope contribuent aux pics, tandis que la pression totale de krypton contribue au fond. Nous avons considérablement réduit l'importance de celui-ci en ajoutant du xénon (15 à 20 mT) dans la cuve. Ce dernier effet s'explique par la diminution de la durée de vie du métastable par quenching [77, 78]. L'ensemble de ces effets de collisions élastiques est décrit et interprété par ailleurs [79].

En ce qui concerne la transition à  $\lambda = 5879 \text{ \AA}$  qui fait intervenir le niveau résonnant  $5s[3/2]_1$ , nous n'avons pas pu, quelle que soit la pression du krypton supérieure à 10 mT, distinguer de pic homogène superposé au fond. Ceci est vraisemblablement dû à l'emprisonnement de la radiation de la transition. Dans ces conditions, la mesure du déplacement isotopique par cette méthode n'a pas été possible.

### CHAPITRE III

#### DEPLACEMENT ISOTOPIQUE DE VOLUME DANS LE KRYPTON.

##### INTERPRETATION DES RESULTATS.

Nous présenterons ici les résultats obtenus au cours de notre étude sur le déplacement isotopique du krypton. La séquence des cinq isotopes pairs stables de nombre de masse  $A = 78, 80, 82, 84, 86$ , permet de suivre l'évolution des variations de  $\delta\langle r^2 \rangle$  depuis  $N=42$  jusqu'au nombre magique  $N=50$ . Nous montrerons ici comment ces variations sont en désaccord avec l'hypothèse supposant une augmentation régulière du volume du noyau avec le nombre de masse  $A$  (même compte tenu des déformations). A ce titre les résultats obtenus sur le krypton complètent ceux déjà obtenus sur le strontium [3] et le rubidium [80] pour  $N=50$  et sur le xénon [4,5] le barium [6] et le cérium [7] pour  $N=82$ .

Nous proposerons ensuite une interprétation de nos mesures à l'aide de l'hypothèse suivante : loin de la fermeture de couche, c'est-à-dire pour le couple d'isotopes (78, 80), l'effet de volume est régulier. En tenant compte de l'effet de déformation, nous en déduirons l'effet spécifique de masse pour le couple (78,80), ceci permettra d'évaluer l'effet de volume pour tous les autres couples d'isotopes de la séquence. Une telle hypothèse conduira à montrer l'existence d'une contraction dans

les variations du rayon du noyau avant la fermeture de la couche  $N=50$ . Nous comparerons alors ces variations aux variations de l'énergie de liaison par nucléon [81].

I - Analyse des résultats expérimentaux pour les transitions

$6p[1/2]_1 \rightarrow 6s[3/2]_2$  et  $5p'[1/2]_1 \rightarrow 5s[3/2]_2$ .

A - Résultats des mesures.

Les écarts isotopiques pour tous les couples d'isotopes pairs stables du krypton ont été mesurés pour la transition  $6p[1/2]_1 \rightarrow 6s[3/2]_2$  à  $\lambda = 3.066 \mu\text{m}$  par la méthode laser (décrite au Chapitre II, paragraphe IV) et pour la transition  $5p'[1/2]_1 \rightarrow 5s[3/2]_2$  à  $\lambda = 557 \text{ nm}$  par la méthode d'absorption saturée (décrite au Chapitre II paragraphe V).

Les résultats expérimentaux sont donnés dans le tableau suivant :

$(M_j - M_i)$	80 - 78	82 - 80	84 - 82	86 - 84	
$6p[1/2]_1 \rightarrow 6s[3/2]_2$	$\Delta\sigma(M_j - M_i)$ $\lambda = 3.066 \mu\text{m}$ mK	$0.81 \pm 0.02$	$0.76 \pm 0.03$	$0.69_5 \pm 0.02$	$0.70_5 \pm 0.02$
	Effet de Bohr mK	0.573	0.545	0.519	0.495
	$\Delta\sigma_r(M_j - M_i)$ mK	$0.24 \pm 0.02$	$0.22 \pm 0.03$	$0.18 \pm 0.02$	$0.21 \pm 0.02$
$5p'[1/2]_1 \rightarrow 5s[3/2]_2$	$\Delta\sigma(M_j - M_i)$ $\lambda = 557 \text{ nm}$ mK	$3.33 \pm 0.03$	$3.15 \pm 0.03$	$2.75 \pm 0.03$	$2.87 \pm 0.03$
	Effet de Bohr mK	3.155	3.001	2.858	2.725
	$\Delta\sigma_r(M_j - M_i)$ mK	$0.17_5 \pm 0.03$	$0.15 \pm 0.03$	$-0.11 \pm 0.03$	$0.14_5 \pm 0.03$

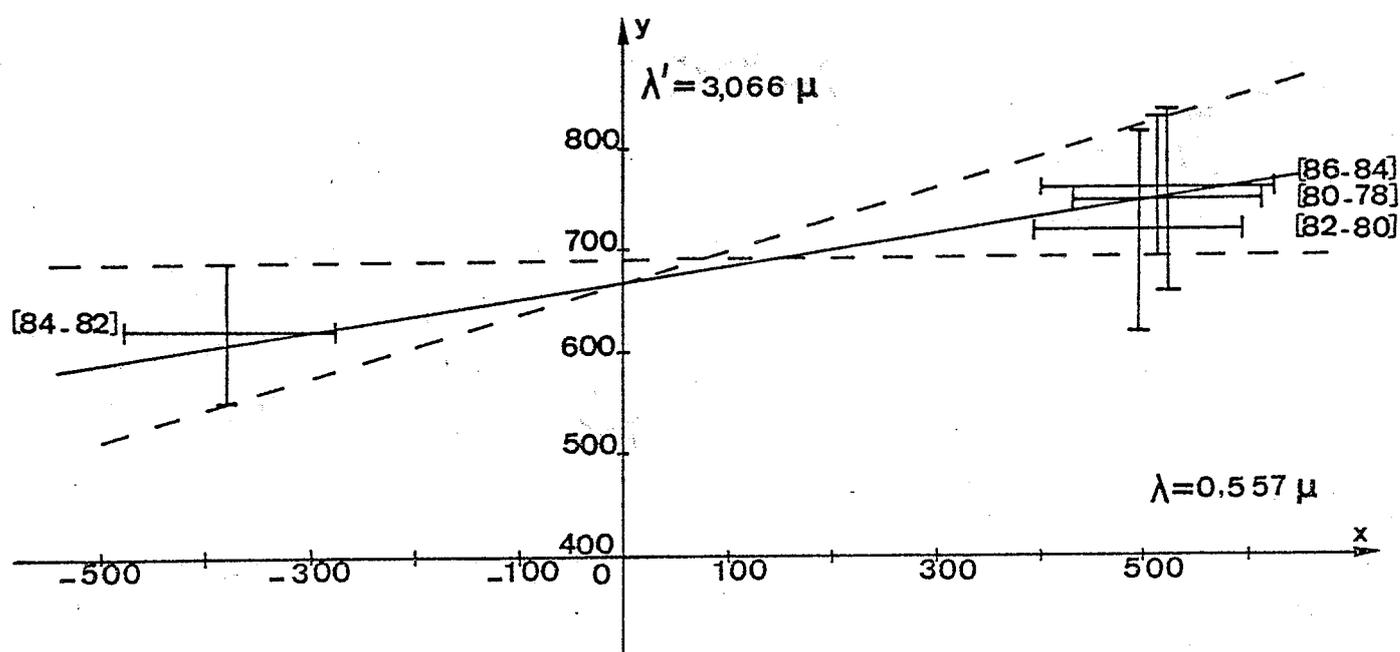


Figure 14

Droite de King obtenue à partir des déplacements isotopiques résiduels des transitions  $5p[1/2]_1 \rightarrow 5s[3/2]_2$  à  $\lambda = 0.557 \mu$  et  $6p[1/2]_1 \rightarrow 6s[3/2]_2$  à  $\lambda = 3.066 \mu$ .

Le calcul de l'effet de Bohr étant trivial nous éliminerons cet effet et ne considérerons, dans la suite de l'exposé que les déplacements isotopiques résiduels  $\Delta\sigma_r = \Delta\sigma - \Delta\sigma_B$ .

B - Cohérence entre les résultats expérimentaux obtenus par les deux transitions  $6p[1/2]_1 \rightarrow 6s[3/2]_2$  et  $5p'[1/2]_1 \rightarrow 5s[3/2]_2$ .

Droite de King.

Afin de vérifier la cohérence entre les résultats expérimentaux obtenus pour les deux transitions  $6p[1/2]_1 \rightarrow 6s[3/2]_2$  et  $5p'[1/2]_1 \rightarrow 5s[3/2]_2$  puis d'en déduire des relations entre les effets spécifiques de masse et entre les effets de volume des deux transitions, nous avons porté sur un graphe les points de coordonnées

$$\left| \begin{array}{l} x = \Delta\sigma_r(M_j, M_i) \cdot \frac{M_i \times M_j}{M_j - M_i} \text{ pour la transition à } 0,557 \mu\text{m} , \\ y = \Delta\sigma_r(M_j, M_i) \cdot \frac{M_i \times M_j}{M_j - M_i} \text{ pour la transition à } \lambda = 3.066 \mu\text{m} . \end{array} \right.$$

Comme nous l'avons vu au premier chapitre, ces points sont, avec la précision de nos mesures, situés sur la droite d'équation

$$\left| \begin{array}{l} x = K^\lambda + E^\lambda \times C(i,j) \\ y = K^{\lambda'} + E^{\lambda'} \times C(i,j) \end{array} \right.$$

portée sur la figure 14 .

B-1 La pente  $a$  de cette droite fournit comme valeur expérimentale

$$\frac{E^\lambda}{E^{\lambda'}} = 0.18 \pm 0.15 .$$

Nous avons comparé cette valeur à la valeur obtenue à partir des quantités  $|\Psi_{ns}^0|^2$  calculées par la méthode Hartree-Fock.

$$\frac{E^\lambda}{E^{\lambda'}} = \frac{4\pi a_H^3 \sum |\psi_{ns}^\circ|_\lambda^2}{4\pi a_H^3 \sum |\psi_{ns}^\circ|_{\lambda'}^2}$$

$$\text{avec } \sum |\psi_{ns}^\circ|_\lambda^2 = \sum_n |\psi_{ns}^\circ|_b^2 - \sum_n |\psi_{ns}^\circ|_a^2$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde associée à la transition.

Le calcul a priori de  $|\psi_{ns}^\circ|^2$  pour les électrons des configurations  $4p^5 5s$ ,  $4p^5 5p$  ainsi que  $4p^5 6s$  et  $4p^5 6p$  nous a conduit aux valeurs suivantes :

$$4\pi a_H^3 \sum |\psi_{ns}^\circ|_\lambda^2 = -4.7 \text{ u. a. pour la transition } 6p[1/2]_1 \rightarrow 6s[3/2]_2$$

$$4\pi a_H^3 \sum |\psi_{ns}^\circ|_{\lambda'}^2 = -18.0 \text{ u. a. pour la transition } 5p'[1/2]_1 \rightarrow 5s[3/2]_2 .$$

Le rapport de ces deux quantités est donc  $\frac{E^\lambda}{E^{\lambda'}} = 0.25$  .

Cette valeur calculée a priori, en utilisant la méthode Hartree-Fock [82,83] est comparable à la valeur obtenue expérimentalement compte tenu de la précision instrumentale.

L'effet de volume est donc 4 à 5 fois plus important pour la transition faisant intervenir un électron  $5s$  que pour la transition faisant intervenir un électron  $6s$  . Nous retrouvons là un effet classique. L'effet de volume est d'autant plus important que l'électron est proche du noyau.

B-2 La relation obtenue d'après l'ordonnée à l'origine  $b$  de la droite donne  $b = K^{\lambda'} - aK^\lambda$  . On en déduit alors différentes relations entre les effets spécifiques de masse des deux transitions pour les différents couples d'isotopes. Pour le couple d'isotopes (78, 80) par exemple on obtient :

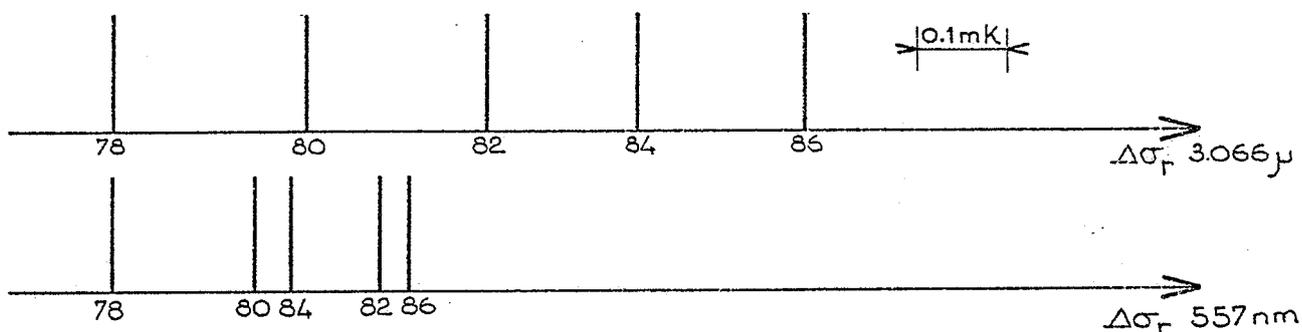
$$0.22 \text{ mK} = \Delta\sigma_{SM}^{\lambda'}(80, 78) - a \Delta\sigma_{SM}^\lambda(80, 78) .$$

Bien que l'ordonnée à l'origine de cette droite soit déterminée avec précision (ceci est dû au fait qu'il existe des points dont les

abscisses sont symétriques par rapport à  $C_x$ ) l'erreur sur la valeur de  $a$  est trop grande pour calculer précisément l'un des effets spécifiques en fonction de l'autre.

C - Effet de volume. Son estimation pour différentes valeurs de l'effet spécifique de masse.

Si l'on représente sur un schéma les déplacements isotopiques résiduels pour les différents couples d'isotopes et pour les deux transitions étudiées



nous constatons que le déplacement isotopique (résiduel) ne varie pas régulièrement le long de la séquence isotopique. Cet effet peu marqué pour la transition  $6p \rightarrow 6s$  (contraction du déplacement isotopique (84, 82) par rapport aux autres) est beaucoup plus important pour la transition  $5p \rightarrow 5s$  (le déplacement isotopique (84, 82) est négatif alors que les trois autres (80, 78) (82, 80) et (86, 84) sont positifs). Comme nous l'avons vu au Chapitre I ces irrégularités traduisent l'influence d'un effet de volume mesurable. Pour étudier cet effet nous utiliserons les résultats obtenus à partir de la transition  $5p'[1/2]_1 \rightarrow 5s[3/2]_2$  pour laquelle l'effet de volume est le plus important. Pour cela nous représenterons graphiquement les valeurs que peut prendre, d'après nos mesures, le déplacement isotopique de volume pour différentes valeurs de l'effet spécifique de masse

$\Delta\sigma_{SM}(80, 78)$  suivant le principe exposé au Chapitre I. L'ensemble des droites de la figure 16 indique l'évolution possible des variations de  $\delta\langle r^2 \rangle$  en fonction de  $\Delta\sigma_{SM}(80, 78)$  pris comme paramètre.

II - Désaccord entre les résultats expérimentaux et le calcul classique de l'effet de volume supposant des variations régulières du volume du noyau le long de la séquence isotopique.

Dans ce paragraphe nous chercherons s'il est possible de trouver une valeur de l'effet spécifique de masse  $\Delta\sigma_{SM}(80, 78)$  telle que pour cette valeur les variations de  $\delta\langle r^2 \rangle$  vérifient la "théorie classique" pour toute la séquence isotopique. Pour ce faire, nous rappellerons tout d'abord le calcul de l'effet de volume en utilisant pour le noyau le modèle de la goutte liquide, compte tenu des déformations, puis nous calculerons cet effet pour les différents couples d'isotopes du krypton.

A - Expression de l'effet de volume compte tenu de la déformation [33,84].

Reprenons l'expression de l'effet de volume (Annexe I):

$$\Delta\sigma_v = \sum |\psi_{ns}^0|_{\lambda}^2 \frac{\pi a_H^3}{Z} \Phi(Z) \delta\langle r^2 \rangle = E^{\lambda} \Phi(Z) \delta\langle r^2 \rangle .$$

On se propose d'écrire les variations du carré moyen du rayon des charges,  $\delta\langle r^2 \rangle$ , en fonction des variations du volume du noyau d'une part, et des variations de la forme du noyau (c'est-à-dire des variations de sa déformation par rapport au noyau sphérique) d'autre part. Dans le cas d'un noyau non sphérique, on prendra comme surface nucléaire la surface de l'ellipsoïde représentée par l'équation

$$r = p \left\{ 1 + \frac{\alpha}{2} (3 \cos^2 \theta - 1) \right\} .$$

En supposant la répartition des charges du noyau homogène de densité  $\rho$

$$\langle r^2 \rangle = \frac{\iiint_V \rho r^2 r^2 \sin \theta \, d\theta \, d\varphi \, dr}{\iiint_V \rho r^2 \sin \theta \, d\theta \, d\varphi \, dr}$$

ce qui conduit, après intégration sur les variables  $r$  et  $\varphi$

$$\langle r^2 \rangle = \frac{\int_{-1}^{+1} [1 + \frac{\alpha}{2} (3u^2 - 1)]^5 \, du}{\int_{-1}^{+1} [1 + \frac{\alpha}{2} (3u^2 - 1)]^3 \, du} \quad \text{en posant } u = \cos \theta .$$

Lorsque le noyau n'est pas trop déformé, c'est-à-dire pour des valeurs de  $\alpha$  inférieures à 0.25, les termes en  $\alpha^3$  sont négligeables devant 1. On en déduit alors :

$$\langle r^2 \rangle \approx \frac{3}{5} p^2 \left( 1 + \frac{7\alpha^2}{5} \right) .$$

On calculera alors le paramètre  $p$  qui caractérise le noyau réel en fonction du rayon d'un noyau équivalent soit du point de vue de la charge, soit du point de vue du volume.

A-1 Si l'on considère un noyau sphérique équivalent du point de vue volume, c'est-à-dire un noyau de rayon  $R$  et de même volume que le noyau réel

$$\frac{4}{3} \pi R^3 = \frac{4}{3} \pi p^3 \left( 1 + \frac{3\alpha^2}{5} + \frac{\alpha^3}{10} \right)$$

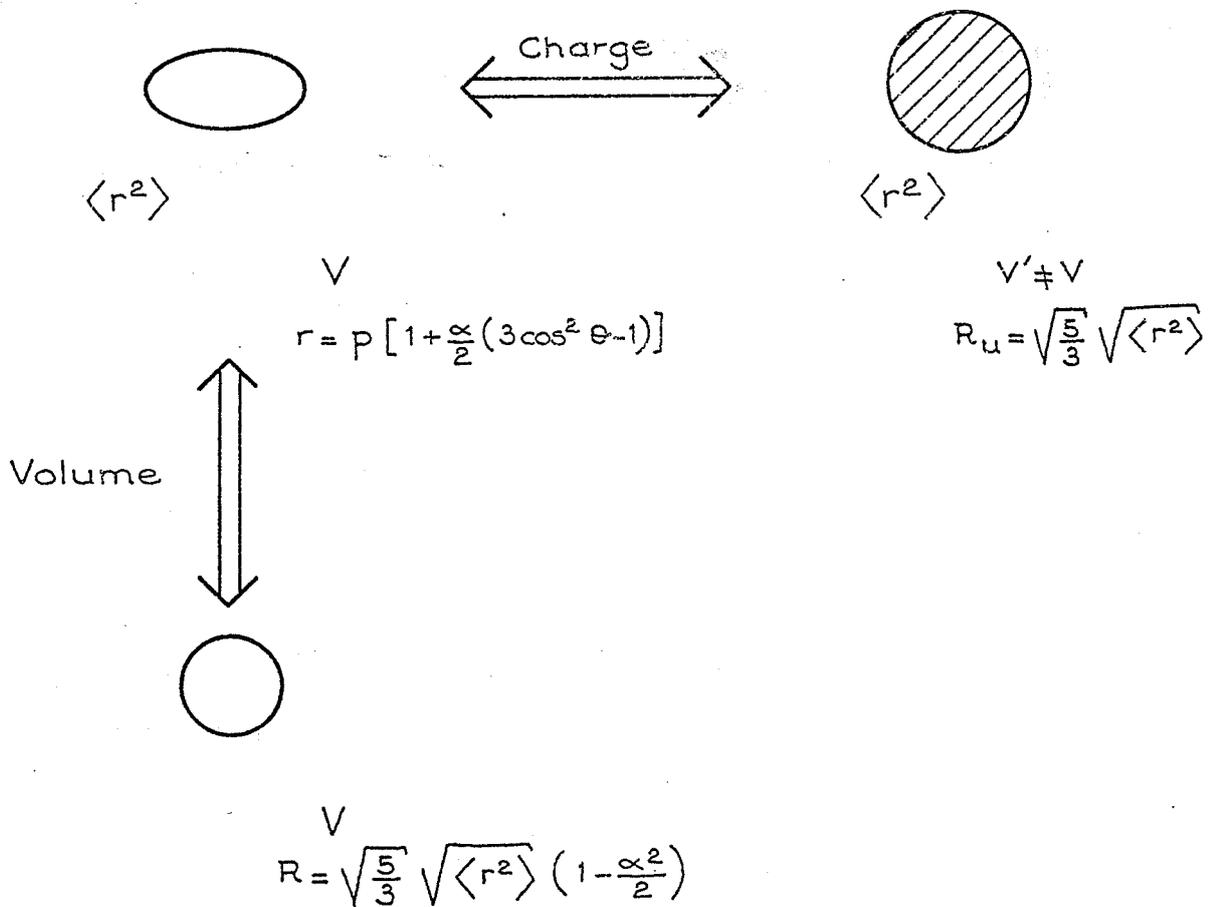
le carré moyen des charges du noyau réel s'écrit donc, lorsqu'on se limite au terme en  $\alpha^2$ , en fonction de  $R$  et  $\alpha$

$$\langle r^2 \rangle \approx \frac{3}{5} R^2 (1 + \alpha^2) .$$

A-2 Si on considère un noyau sphérique équivalent du point de vue des charges, c'est-à-dire un noyau sphérique de rayon  $R_u$  (rayon équivalent de Bodmer) chargé uniformément et de même carré moyen de rayon des charges que le noyau réel,  $\langle r^2 \rangle$  s'écrit en fonction de  $R_u$  :

$$\langle r^2 \rangle = \frac{4\pi \int_0^{R_u} \rho r^4 dr}{4\pi \int_0^{R_u} \rho r^2 dr} = \frac{3}{5} R_u^2$$

$$\langle r^2 \rangle = \frac{3}{5} R_u^2$$



Pour séparer dans le déplacement isotopique de volume la part due à la variation de "volume pur" et celle due à la déformation on calculera le déplacement isotopique à partir du noyau équivalent en volume.

Dans ce cas la variation de  $\langle r^2 \rangle$  entre deux isotopes est donc

$$\delta \langle r^2 \rangle = \frac{3}{5} [\delta R^2 + \delta(R^2 \alpha^2)] = \frac{3}{5} R^2 \left[ 2 \frac{\delta R}{R} + \delta \alpha^2 + 2 \alpha^2 \frac{\delta R}{R} \right] .$$

En général  $\alpha^2$  et  $\delta \alpha^2$  sont du même ordre de grandeur (inférieur à quelques pour cent), on pourra donc négliger  $2 \alpha^2 \cdot \frac{\delta R}{R}$  devant  $2 \frac{\delta R}{R}$ .  
On en déduit alors :

$$\Delta \sigma_v = \Sigma |\psi_{ns}^0|^2 \pi \frac{a^3}{Z} \Phi(Z) \frac{3}{5} R^2 \left[ 2 \frac{\delta R}{R} + \delta \alpha^2 \right] = \Delta \sigma_{vsph} + \Delta \sigma_{vdef} .$$

On met ainsi en évidence le fait que la contribution due aux variations de volume est indépendante de celle due aux variations de la déformation. Les coefficients de déformation sont obtenus à partir de la probabilité de transition quadrupolaire électrique  $2^+ \rightarrow 0^+$  des niveaux nucléaires les plus bas en énergie. En effet, si on suppose que la probabilité de transition vers le niveau fondamental est essentiellement due au premier niveau excité  $2^+$ , cette probabilité de transition est proportionnelle au carré du moment quadrupolaire du niveau fondamental.

$$B(E2, 2^+ \rightarrow 0^+) = Q_{20}^2 .$$

$$\text{Sachant que } Q_{\ell m} = \iiint r^\ell Y_{\ell m}^*(\theta, \varphi) \rho \, d\tau \quad Q_{20} = \iiint r^2 Y_{20}(\theta, \varphi) \rho \, d\tau$$

où  $\rho$  est la densité de charges du noyau.

Le volume d'intégration est celui du noyau que l'on considère ici comme un ellipsoïde de révolution dont la surface est donnée par l'équation

$$r = p [1 + \beta Y_{20}(\theta, \varphi)] .$$

Dans ces conditions si on se limite au premier ordre en  $\beta$

$$Q_{20} = \frac{3 Ze R^2}{4\pi} \beta \quad \text{où } R \text{ est, comme précédemment, le rayon de la}$$

sphère dont le volume est égal à celui du noyau.

Le coefficient  $\beta^2$  se déduit alors de la probabilité de transition  $2^+ \rightarrow 0^+$  par la relation

$$\beta^2 \approx \left[ \frac{4\pi}{3} \frac{1}{Ze R^2} \right]^2 B(E2 \ 2^+ \rightarrow 0^+)$$

On relie enfin les coefficients de déformation  $\alpha$  et  $\beta$  par

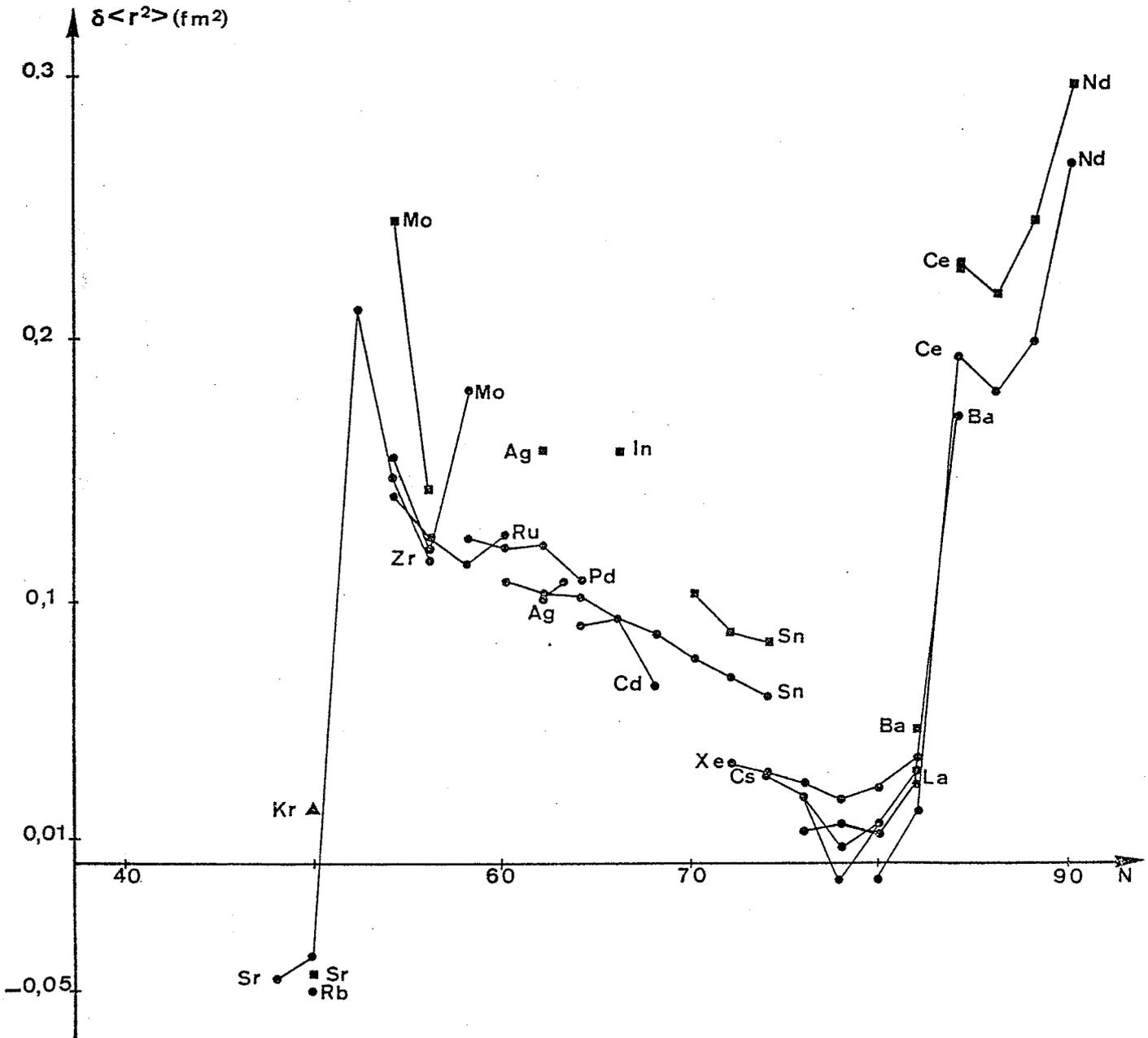
$$\alpha^2 = \frac{5}{4\pi} \beta^2 \text{ en comparant les deux expressions de } r.$$

Pour évaluer la contribution due à la déformation dans le déplacement isotopique de volume, il est nécessaire de connaître  $R$ . Cependant,  $R$  n'intervenant pas par ses variations mais uniquement par son module, il suffira de prendre pour  $R$  une valeur approchée. Il est donc tout à fait légitime de prendre pour calculer la déformation  $R = R_0 A^{1/3}$ . La "théorie classique" du déplacement isotopique de volume suppose de plus que les variations de  $R$  sont les mêmes que celles de  $R_0 A^{1/3}$ , c'est-à-dire  $2 \frac{\delta R}{R} = \frac{2}{3} \frac{\delta A}{A}$ .

B - Evaluation a priori du déplacement isotopique de volume du krypton en supposant  $R = R_0 A^{1/3}$  pour la transition  $5p'[1/2]_1 \rightarrow 5s[3/2]_2$ .

B-1 Nous avons évalué le terme électronique  $\Sigma |\Psi_{ns}^0|_{\lambda}^2 \frac{\pi a_H^3}{Z} = E^{0.557}$

intervenant dans le déplacement isotopique de volume. Pour cela nous avons utilisé soit la méthode Hartree-Fock pour calculer  $|\Psi_{ns}^0|^2$  ce qui conduit à  $\Sigma |\Psi_{ns}^0|_{\lambda}^2 \frac{\pi a_H^3}{Z} = -0.125$ , soit l'expression donnée par Fermi Segré [31], ce qui conduit à  $-|\Psi_{5s}^0|^2 \frac{\pi a_H^3}{Z} = -0.131$  [85]. Nous prendrons pour le terme électronique  $E^{0.557} = -0.13$ .



- Variations de  $\delta \langle r^2 \rangle = \langle r^2 \rangle_N - \langle r^2 \rangle_{N-2}$  en fonction du nombre de neutrons  $N$ .

- Ces variations sont déduites :  
 des mesures muoniques  $\blacksquare$   
 des mesures optiques  $\bullet$  (en utilisant  $C_{\text{unifié}}$ ).

Figure 15

B-2 Le terme dû au noyau  $\Phi(Z) \frac{3}{5} R^2 (2 \frac{\delta R}{R} + \delta\alpha^2)$  s'écrit en supposant  $R = R_0 A^{1/3} C_{th} (1 + \frac{3A}{2 \delta A} \delta\alpha^2)$ . Humbach [86] a calculé la constante théorique  $C_{th}$  en supposant  $R_0 = 1.4$  fm pour un grand nombre d'éléments. En fait, le rayon coulombien du noyau conduit plutôt à prendre  $R_0 = 1.2$  fm. Il faut donc réduire les valeurs de  $C_{th}$  obtenues par Humbach dans le rapport  $(\frac{1.2}{1.4})^2$  pour l'isotope 82 du krypton, la valeur  $C_{th}$  obtenue ainsi est 25 mK.

Cependant les valeurs corrigées calculées par Humbach sont encore en moyenne trop grandes pour interpréter l'ensemble des déplacements isotopiques expérimentaux. Babushkin [87] utilise alors un paramètre empirique  $\eta = 0.7$  caractérisant la "compressibilité nucléaire" [88] et en déduit les valeurs de la constante théorique unifiée  $C_{unif} = 0.7 C_{th}$  ou encore  $\Phi(Z)_{unif} = 0.7 \Phi(Z)_{th}$ . Ces nouvelles valeurs sont en meilleur accord avec les résultats expérimentaux pour l'ensemble des éléments de la classification. Une telle correction est légitime lorsque l'on compare les résultats obtenus à partir des mesures optiques et ceux obtenus à partir des atomes muoniques. Sur la figure 15 nous avons porté les variations  $\delta\langle r^2 \rangle$  déduites du déplacement isotopique optique  $\Delta\sigma_v(A, A-2)$  en fonction du nombre de neutrons  $N = A - Z$  pour différents éléments [2]. Ces valeurs ont été obtenues en utilisant les constantes unifiées de Babushkin, ce qui conduit à

$$\delta\langle r^2 \rangle = \frac{\alpha\sigma_v(A, A-2)}{E \cdot \Phi(Z)_{unif}} . \text{ Nous les avons comparées aux variations } \delta\langle r^2 \rangle$$

obtenues à partir des atomes muoniques. Nous constatons que les variations relatives de  $\delta\langle r^2 \rangle$  obtenues à partir des atomes muoniques [40] sont identiques à celles obtenues à partir des mesures optiques, ces dernières étant encore légèrement inférieures aux mesures muoniques. Pour faire coïncider les deux séries de mesures il faudrait prendre  $\eta = 0.6$ .

Nous évaluerons les déplacements isotopiques du krypton en utilisant la valeur  $C_{unif} = 16$  mK obtenue à partir des calculs de Humbach et pour  $\eta = 0.65$ .

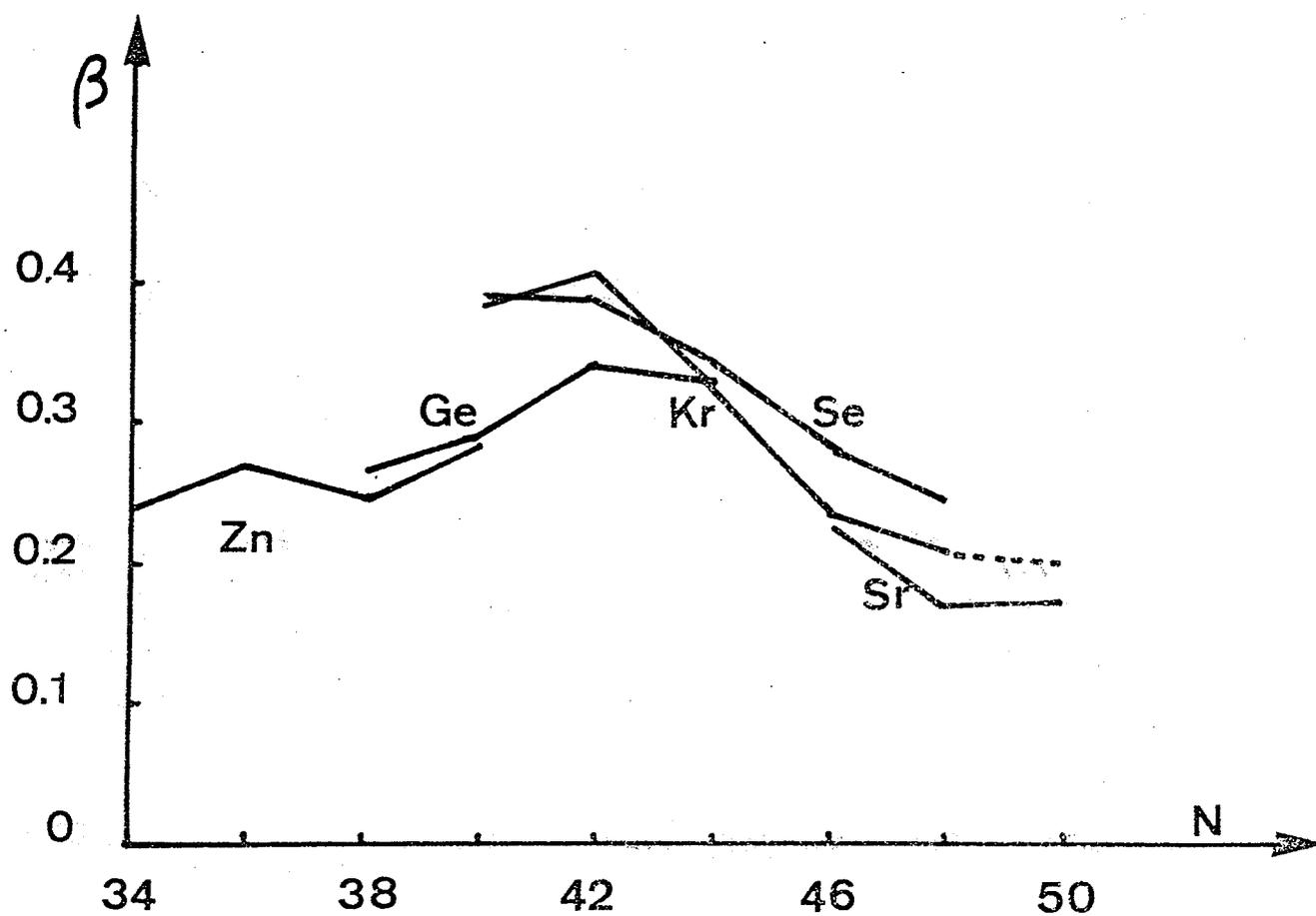


Figure 16

Coefficients de déformation  $\beta$   
 obtenus par E. Nolte en fonction  
 du nombre de neutrons  $N$  pour les éléments  
 ${}_{30}^{Zn}$   ${}_{32}^{Ge}$   ${}_{34}^{Se}$   ${}_{36}^{Kr}$  et  ${}_{38}^{Sr}$

Les coefficients de déformation ont été obtenus par E. Nolte [89] à partir de ses mesures de probabilité de transition B ( $E2, 2^+ \rightarrow 0^+$ ) pour les différents isotopes 78, 80, 82, 84. Nous supposons que la variation de la déformation entre les isotopes 84 et 86 est très faible (l'isotope 86 ayant un nombre magique de neutrons est le moins déformé de la séquence isotopique et nous prendrons pour l'isotope 86  $\beta \approx 0.2$  (fig. 16)). Les valeurs du déplacement isotopique sont regroupées dans le tableau suivant :

	(80,78)	(82,80)	(84,82)	(86,84)
$\delta\beta^2$	-0.057	-0.050	-0.011	-0.004
$\delta\alpha^2$	-0.023	-0.020	-0.005	-0.002
$2 \frac{\delta A}{3A}$	0.017	0.016	0.015	0.015
$1 + \frac{3A}{2\delta A} \delta\alpha^2$	-0.35	-0.25	+0.68	+0.87
$\Delta\sigma_v$ unifié mK	0.73	0.52	-1.41	-1.81

Même si l'on tient compte d'une erreur de 5 à 10% sur les coefficients de déformation, il n'existe aucune droite horizontale sur le graphe de la figure 16, c'est-à-dire aucune valeur pour l'effet spécifique de masse  $y = \Delta\sigma(80,78)$  qui permette d'expliquer à la fois tous les déplacements isotopiques de volume  $\Delta\sigma_v$  calculés précédemment. En effet, pour obtenir  $\Delta\sigma_v(80,78) = 0.73$  mK il faut un effet spécifique de masse  $\Delta\sigma_{SM}(80,78) = -0.6$  mK (ligne A). Cette valeur ne permet pas d'expliquer les déplacements isotopiques de volume négatifs calculés pour les couples (84,82) et (86,84). A l'inverse, pour obtenir  $\Delta\sigma_v(86,84) = -1.8$  mK il faut un effet spécifique de masse

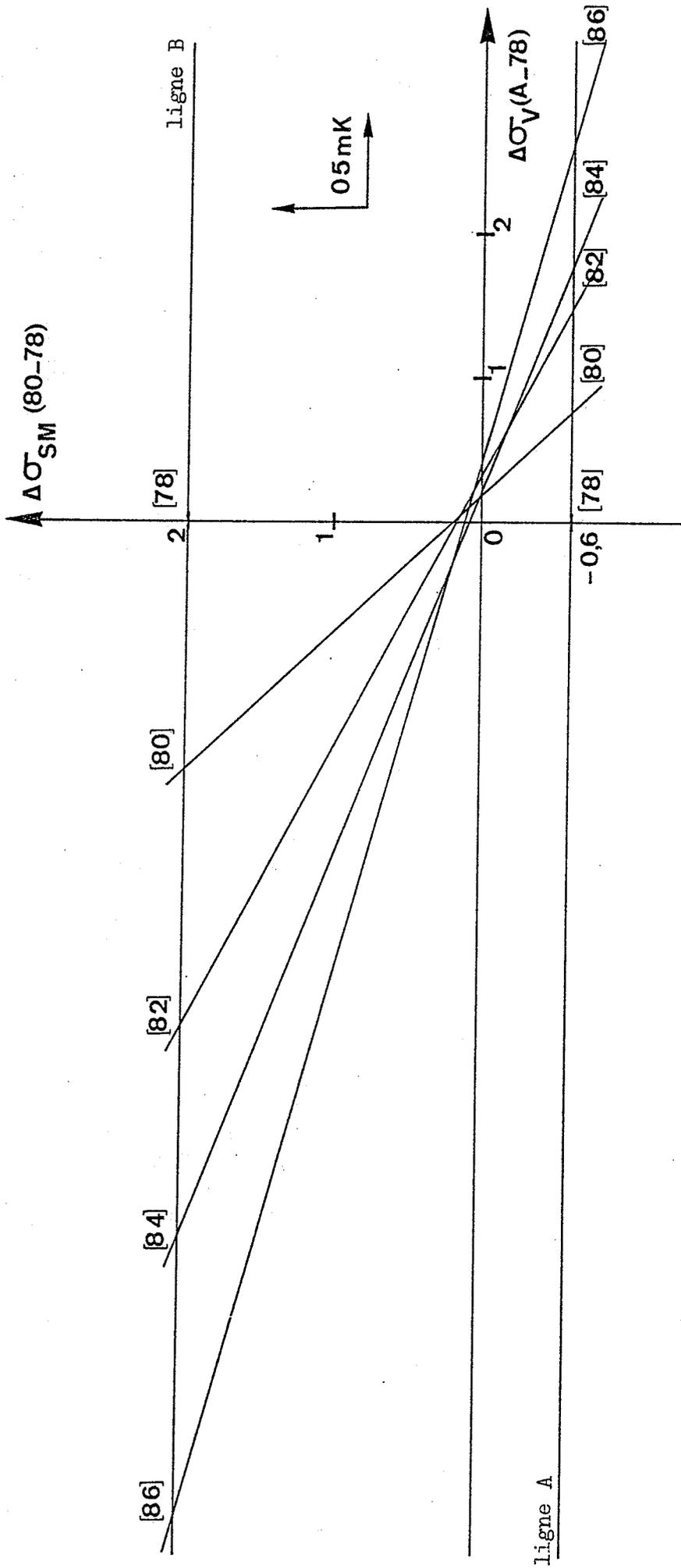


Figure 17

Variations des déplacements isotopiques de volume en utilisant l'effet spécifique de masse  $\Delta \sigma_{SM} (80,78)$  comme paramètre.

$\Delta\sigma_{SM}(80,78) = 2 \text{ mK}$  (ligne B). Cette valeur ne permet pas d'expliquer les déplacements isotopiques de volume positifs calculés pour les couples (80,78) et (82,80). (L'écart serait encore plus important si on utilisait  $C_{th}$  de Humbach pour calculer les déplacements isotopiques de volume).

La "théorie classique" de l'effet de volume, compte tenu des déformations et avec les valeurs  $C_{unif}$ , ne permet pas d'interpréter l'ensemble des résultats expérimentaux du krypton.

### III - Tentative d'interprétation des résultats expérimentaux.

#### A - Contraction des variations du rayon avant la fermeture de couche N=50 .

Lorsque l'on compare les valeurs des constantes  $C_{exp} = \frac{\Delta\sigma_v}{E}$  aux valeurs théoriques  $C_{unif}$  pour les éléments situés loin de la fermeture de couche en neutrons, les écarts entre les valeurs  $C_{exp}$  et  $C_{unif}$  s'expliquent relativement bien par la déformation [33]

$$\frac{C_{exp}}{C_{unif}} = 1 + \frac{3A}{2\delta A} \delta\alpha^2 .$$

Il n'est donc pas déraisonnable de supposer qu'une variation régulière du volume du noyau est valable loin avant la fermeture de couche en neutrons. C'est précisément le cas pour le couple extrême d'isotopes 78, 80 faisant partie de la séquence isotopique de krypton. On prendra donc comme hypothèse que, pour le couple (78,80), le déplacement isotopique de volume est celui donné par la théorie classique, compte tenu des déformations,  $\Delta\sigma_v(80,78) = 0.73 \text{ mK}$ .

A partir de la valeur expérimentale

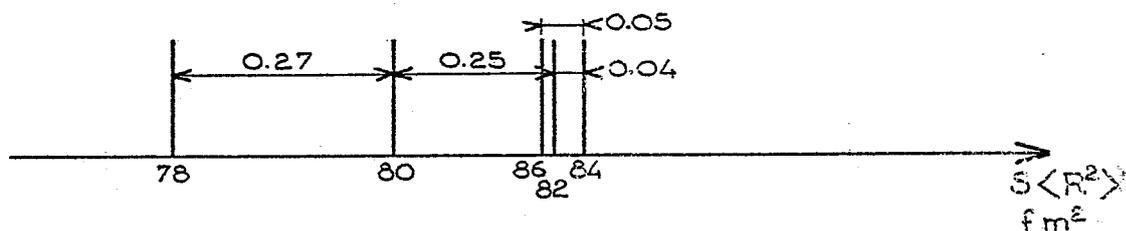
$\Delta\sigma_r = \Delta\sigma_v(80,78) + \Delta\sigma_{SM}(80,78) = +0.17 \text{ mK}$  on obtient pour  $\Delta\sigma_{SM}(80,78)$  la valeur  $-0.56 \text{ mK}$ . D'après le graphe (fig. 17, ligne A) on en déduit les déplacements isotopiques de volume pour les différents couples d'isotopes. Comme nous l'avons vu précédemment, le déplacement isotopique de volume est la somme d'un terme dû au volume et d'un terme dû à la déformation; ces deux effets étant indépendants, nous soustrayons des valeurs obtenues pour  $\Delta\sigma_v$  l'effet dû à la déformation pour ne garder que l'effet dû au volume pur.

Les valeurs obtenues pour les différents couples d'isotopes sont regroupées dans le tableau suivant :

	(80,78)	(82,80)	(84,82)	(86,84)
effet de volume total $\Delta\sigma_v$ mK	0.73	0.68	0.40	0.63
effet de volume dû à la déformation $\Delta\sigma_{vdef}$ mK	2.81	2.59	0.69	0.28
effet de volume "pur" $\Delta\sigma_{vsph}$ mK	-2.08	-1.91	-0.29	+0.35

L'expression de  $\Delta\sigma_{vsph}$  en fonction du rayon  $R$  du noyau équivalent en volume étant  $\Delta\sigma_{vsph} = \Sigma |\Psi(0)_{ns}|^2 \frac{\pi a_H^3}{Z} \Phi(Z) \frac{3}{5} \delta R^2$  on en déduit les valeurs de  $\delta\langle R^2 \rangle = \frac{3}{5} \delta R^2$  correspondantes.

Nous avons porté sur le schéma suivant les valeurs  $\delta\langle R^2 \rangle$  pour les différents couples d'isotopes



Ceci signifie que le volume croît de l'isotope 78 à l'isotope 82 puis reste stationnaire pour les isotopes 82, 84, 86. La précision avec laquelle sont déterminés les coefficients de déformation ne permet cependant pas d'affirmer que l'isotope 86 a un volume plus petit que ceux des isotopes 82 et 84.

Remarque :

L'hypothèse que nous avons admise, à savoir que la théorie classique est valable pour le couple d'isotopes (80,78) conduit à un effet spécifique de masse négatif ( $-0.6 \text{ mK}$ ). Un calcul Hartree-Fock, a priori, de cet effet spécifique conduit aussi à une valeur négative ( $-3 \text{ mK}$ ).

B - Conclusion sur le déplacement isotopique du krypton.

On constate que les déplacements isotopiques de volume restent petits pour tous les couples de la séquence isotopique. La constante  $C_{\text{exp}}$  que l'on définit pour le couple (80,82), par exemple, est très inférieure à la constante  $C_{\text{unif}}$ . Cependant, le rapport  $\left(\frac{C_{\text{exp}}}{C_{\text{unif}}}\right)$  a une valeur comparable au rapport  $\left(\frac{C_{\text{exp}}}{C_{\text{unif}}}\right)$  pour les isotopes des éléments Rb et Sr de masse voisine de celle du Kr et ayant un nombre de neutrons inférieur à 50 (figure 18).

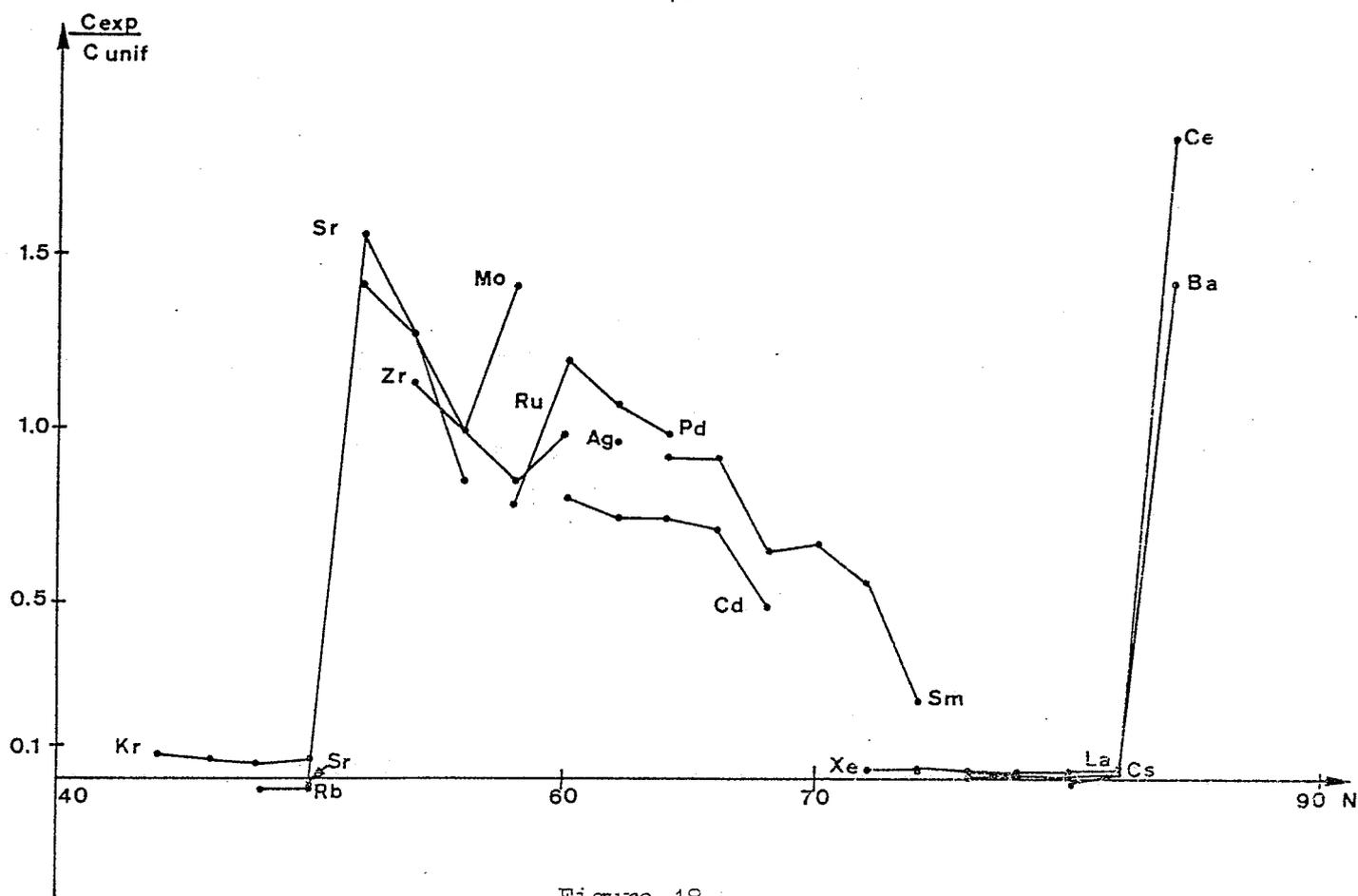


Figure 18

On pourra alors donner des raisons différentes selon les couples d'isotopes pour lesquels l'effet total de volume est petit :

B-1 "Loin" de la fermeture de couche, c'est-à-dire pour les isotopes 78, 80, 82 les variations  $\delta\alpha^2$ , du carré du coefficient de déformation, sont grandes mais la déformation diminuant de l'isotope 78 à 82  $\delta\alpha^2 < 0$  ; par contre, lorsque l'on ajoute des neutrons pour passer de l'isotope 78 à l'isotope 82 le volume croît,  $\delta R^2 > 0$ . Les effets dûs à la déformation et dûs au volume "pur" sont importants, mais ces effets se compensent en partie et le déplacement isotopique de volume total est petit.

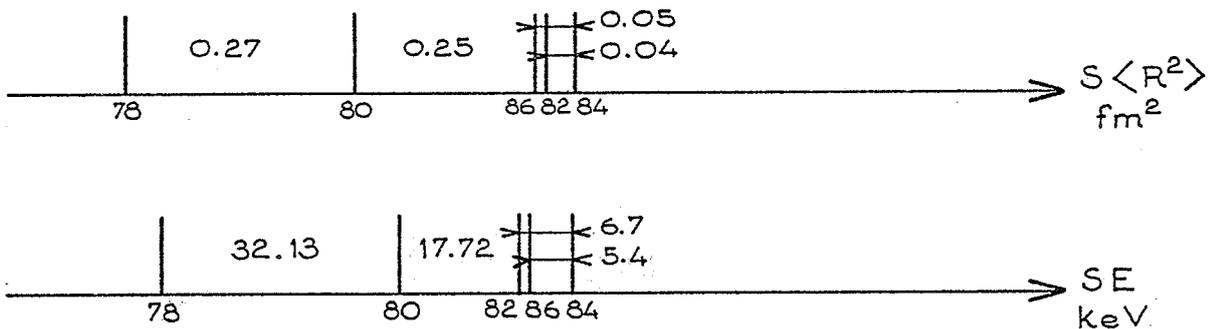
B-2 Pour les isotopes 82, 84, 86 l'effet dû à la déformation est faible (les noyaux sont peu déformés au voisinage de  $N=50$ ). Or, ici, le rayon croît moins vite que  $A^{1/3}$ , l'effet dû au volume pur

est donc plus faible aussi. Les deux effets qui contribuent au déplacement isotopique de volume étant petits, celui-ci reste petit.

En résumé, lorsque l'on se rapproche d'une couche fermée en neutrons, les différentes quantités volume et déformation varient de moins en moins vite.

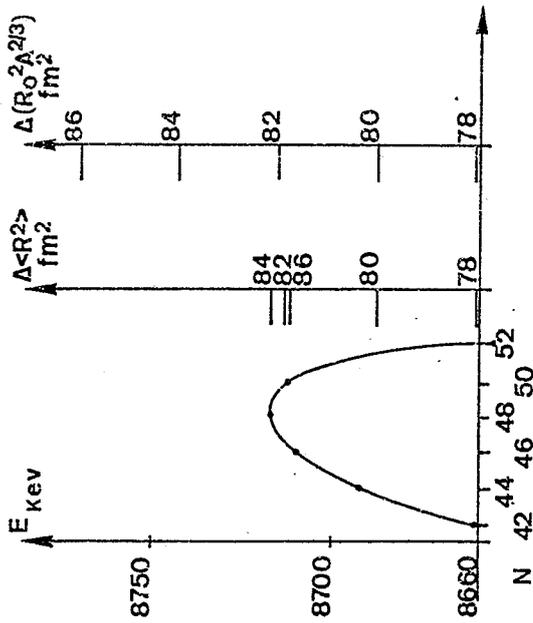
C - Comparaison des variations de  $\langle R^2 \rangle$  avec les variations de l'énergie de liaison E par nucléon.

Le schéma ci-dessous permet de comparer les variations relatives des carrés des rayons  $\delta\langle R^2 \rangle$  aux variations de l'énergie de liaison par nucléon  $\delta E$  suivant la relation empirique proposée par S. Gerstenkorn [81].

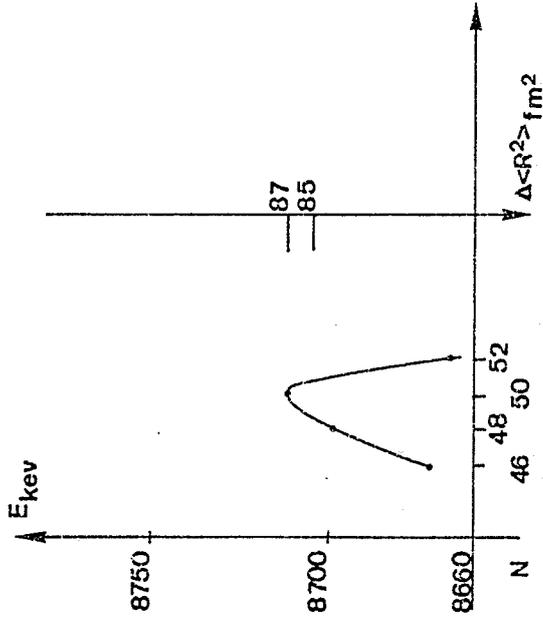


Nous constatons qu'au voisinage de la fermeture de couche  $N=50$ , à la précision des mesures près, les positions relatives des différents isotopes en fonction des énergies de liaison par nucléon sont analogues aux positions de ces mêmes isotopes en fonction de l'effet de volume pur.

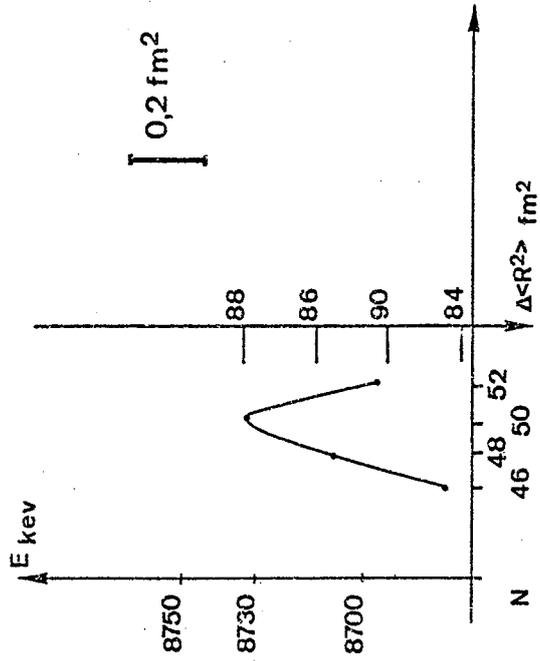
Kr Z=36



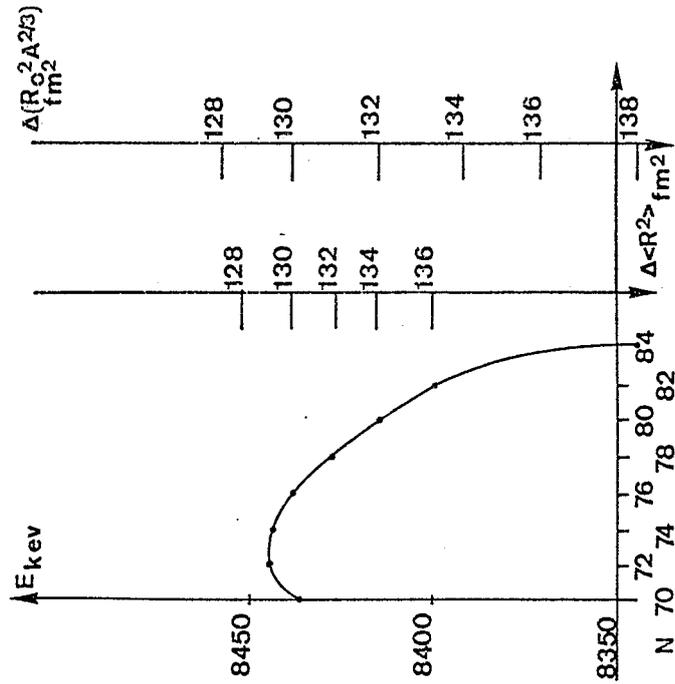
Rb Z=37



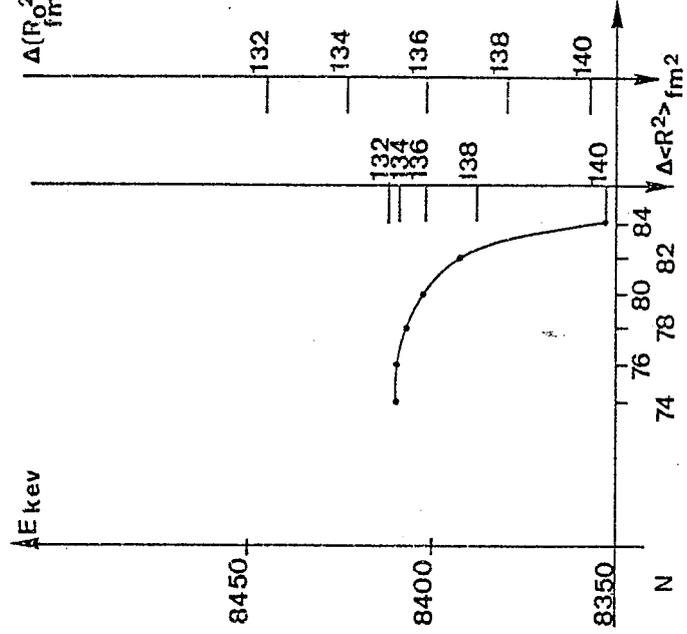
Sr Z=38



Xe Z=54



Ba Z=56



Ce Z=58

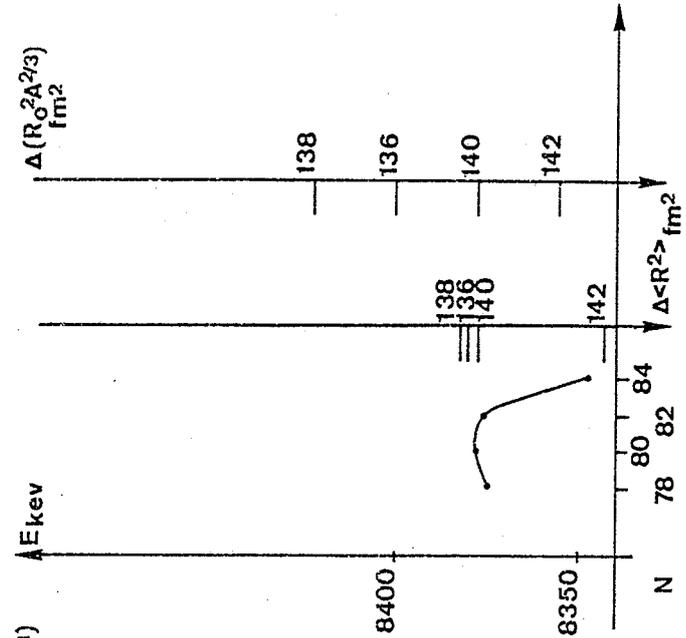


Figure 19

IV - Analogie des résultats obtenus sur le krypton avec les résultats obtenus sur d'autres éléments possédant un isotope ayant un nombre magique de neutrons  $N=50$  ou  $N=82$ .

Les faibles déplacements isotopiques de volume avant la fermeture de couche en neutrons ont déjà été mis expérimentalement en évidence pour Rb et Sr  $N=50$  et pour Xe, Ba, Ce  $N=82$ .

Malheureusement on ne connaît pas les coefficients de déformation pour tous les isotopes de ces éléments. On peut cependant supposer que  $\alpha^2$  varie peu pour les isotopes  $N-4$ ,  $N-2$  et  $N$  où  $N$  est magique comme c'est le cas pour Kr, Sr, Rb, Xe.

Dans ces conditions les variations du déplacement isotopique de volume pour ces trois isotopes reflètent les variations de leur volume. On constate que le rayon équivalent  $R$  varie peu avant la fermeture de couche et peut même s'inverser. Il est intéressant de faire l'analogie entre les variations de  $\langle R^2 \rangle$  et les variations de l'énergie de liaison par nucléon. La figure 19 représente les variations de  $\langle R^2 \rangle$ , exprimées en  $\text{fm}^2$ , déduites des mesures après avoir retranché l'effet dû à la déformation, lorsque les coefficients  $\alpha$  sont connus. En parallèle nous avons représenté les variations de  $\frac{3}{5} R_0^2 \frac{2}{3} \frac{\delta A}{A}$  qui sont les variations de  $\langle R^2 \rangle$  pour un noyau assimilable à une goutte liquide, ainsi que la courbe de l'énergie de liaison par nucléon en fonction du nombre de masse  $A$ .

L'échelle est la même pour les différents éléments. On constate alors que, pour des isotopes dont le nombre de neutrons est inférieur à  $N=50$  ou  $N=82$ , les variations  $(R_0 A^{1/3})^2$  sont trop grandes pour expliquer les variations de  $\langle R^2 \rangle$ ; par contre, pour les isotopes ayant un nombre de neutrons  $N+2$  où  $N=50$  ou  $82$  (comme c'est le cas Sr<sup>90</sup> Ba<sup>140</sup> Ce<sup>142</sup>) les variations de  $(R_0 A^{1/3})^2$  entre  $A$  et  $A+2$  sont trop petites pour expliquer les variations de  $\langle R^2 \rangle$ .

Par contre, les variations de l'énergie de liaison par nucléon représentent mieux les variations de  $\langle R^2 \rangle$ . On met ainsi en évidence l'influence importante de la structure du noyau sur le déplacement isotopique.

Cette comparaison permet de répondre en partie au voeu exprimé par Migdal [90] (Symposium 1968 sur la structure nucléaire) :

"It is of considerable interest to explain the Hofstadter experiments in the scattering of electrons on calcium isotopes \* and in general to predict theoretically the experiments of this kind. An explanation of the negative isotope shift in Sr, Ba would be a major success of the theory" .

Depuis, les mesures optiques ont confirmé l'inversion de  $\langle r^2 \rangle$ , non seulement dans les cas Ca et Sr, mais aussi dans le cas Ce [7] et probablement Rb [80, 91, 92] et Kr. Cependant, dans le cas Ba ni les mesures optiques, ni les variations de l'énergie de liaison n'ont pu mettre en évidence une telle inversion.

---

\* [93] .

## REFERENCES

- [1] T. R. Merton Nature 104 406 (1919)
- [2] K. Heilig and A. Steudel Atomic data and Nuclear data tables (1974)
- [3] K. Heilig Z. Physik 161 252 (1961)
- [4] D. A. Jackson and M. C. Coulombe C.R.A.S. (Paris) B 270 1607 (1970)
- [5] R. Vetter Phys. Letters A 31 559 (1970)
- [6] W. Fischer M. Hartmann H. Hühnermann and H. Vogg Z. Physik 267 209 (1974)
- [7] R. J. Champeau Physica 62 209 225 (1972)
- [8] H. Kuhn and S. A. Ramsden Proc. Roy. Soc. A 237 485 (1956)
- [9] J. Blaise Thèse Ann. Phys. 3 1019 (1958)
- [10] J. Bauche Physica 44 291 (1969)
- [11] M. Diringer Ann. Phys. 10 89 (1965)
- [12] J. Bauche Thèse Orsay-Paris (1969)
- [13] P. Brix and H. Kopfermann Festschr Akad. Wiss Göttingen Math. Phys. K1 17 (1951)
- [14] P. Briw and H. Kopfermann Reviews of Modern Physics 30 517 (1958)
- [15] W. H. King A. Steudel M. Wilson Z. Phys. 265 207 (1973)
- [16] W. H. King J. Opt. Soc. Am. 53 638 (1963)
- [17] J. E. Hansen A. Steudel H. Walther Phys. Lett. 19 565 (1965)
- [18] J. E. Hansen A. Steudel H. Walther Z. Phys. 203 296 (1967)
- [19] H. Schüler AND E. G. Jones Z. Phys. 77 801 (1932)
- [20] J. Blaise and H. Chantrel J. Phys. Radium 18 193 (1957)
- [21] S. Gerstenkorn and J. Vergès J. Phys. Paris 36 481 (1975)
- [22] R. Bruch K. Heilig D. Kaletta A. Steudel and D. Wendlandt J. Phys. Paris 30 C1 51 (1969)
- [23] J. P. Vinti Phys. Rev. 56 1120 (1939)
- [24] J. P. Vinti Phys. Rev. 58 882 (1940)
- [25] A. P. Stone Proc. Phys. Soc. 74 424 (1959)

- [26] A. P. Stone Proc. Phys. Soc. 77 786 (1961) et 81 868 (1963)
- [27] J. Bauche Thèse Paris (1969)
- [28] J. Bauche J. Phys. Paris 35 19 (1974)
- [29] D. R. Hartree Proc. Cambridge Phil. Soc. 25 310 (1929)
- [30] D. R. Hartree The Calculation of Atomic structures Wiley  
New York (1957)
- [31] E. Fermi E. Segré Mem. Reale Accad. Italia 131 (1933)
- [32] G. L. Epstein and S. P. Davis Phys. Rev. A 4 464 (1971)
- [33] P. Brix and H. Köpfermann Z. Phys. 126 344 (1949)
- [34] D. N. Stacey Rep. Progr. Phys. 29 171 (1966)
- [35] R. B. Chesler and F. Boehm Phys. Rev. 166 1206 (1963)
- [36] P. Lee and F. Boehm Phys. Rev. C 8 819 (1973)
- [37] M. Y. Chen Phys. Rev. C 1 1176 (1970)
- [38] D. Hitlin S. Bernow S. Devons I. Duerdoth J. V. Kast  
E. R. Macagno J. Rainwater C. S. Wu R. C. Barret Phys. Rev.  
C 1 1184 (1970)
- [39] R. C. Barret Phys. Lett. B 33 388 (1970)
- [40] R. Engfer H. Schneuwly J. L. Vuilleumier H. K. Walter and  
A. Zehnder Nuclear Data Tables (1974)
- [41] J. Bauche and R.-J. Champeau dans Advances in atomic and Molecular  
Physics 12 (1976)
- [42] Helbert Thèse Paris (1969)
- [43] J. Brochard and R. Vetter Phys. Lett. 33A 6 398 (1970)
- [44] D. A. Jackson Proc. Roy. Soc. A 263 289 (1961)
- [45] A. Szöker and A. Javan Phys. Rev. Lett. 10 521 (1963)
- [46] R. H. Cordover T. S. Taseja and A. Javan Appl. Phys. Lett. 7  
322 (1965)
- [47] R. Vetter Thèse Orsay-Paris (1970)
- [48] C. V. Shank and S. E. Schwarz Appl. Phys. Lett. 13 n° 4 113 (1968)
- [49] R. H. Cordover R. A. Bonczyk and A. Javan Phys. Rev. Lett. 18  
730 (1967)
- [50] Ch. Delsart, J. C. Keller Optics Comm. 15 91 (1975)
- [51] F. Biraben E. Giacobino and G. Grynberg Phys. Rev. A 12 2444 (1975)
- [52] P. Jacquinet

- [53] R. Chabbal P. Jacquinet Rev. Opt. 40 157 (1961)
- [54] H. T. Duong S. Gerstenkorn et J. M. Helbert Rev. Phys. Appl. 2  
249 (1967)
- [55] B. Senitzky et I. I. Rabi Phys. Rev. 103 315 (1956)
- [56] H. G. Kuhn Atomic Spectra Longmans Green (1969)
- [57] P. Luc Thèse Orsay (1972)
- [58] A. Szöke et A. Javan Phys. Rev. Lett. 10 521 (1963)
- [59] S. Liberman Thèse Orsay (1971)
- [60] W. Silfast Appl. Phys. Letters 5 169 (1968)
- [61] D. T. Hodges Appl. Phys. Letters 17 11 (1970)
- [62] J.-F. Lesprit Communication personnelle
- [63] K. M. Evenson G. W. Day J. S. Wells and L. O. Mullen Appl. Phys.  
Lett. 20 133 (1972)
- [64] A. Brillet Thèse Orsay (1976)
- [65] A. Drenes and T. P. Sosnowski Appl. Phys. Letters 16 519 (1970)
- [66] H. B. Klein and D. Maydan Appl. Phys. Letters 16 509 (1970)
- [67] H. Greenstein Phys. Rev. 175 438 (1970)
- [68] W. E. Lamb Phys. Rev. 134 1429 (1964)
- [69] M. S. Feld and A. Javan Phys. Rev. 177 540 (1969)
- [70] E. V. Baklanov and V. P. Chebotaev Soviet Phys. JETP 35 287 (1972)
- [71] Ph. Cahuzac and G. Golman Nouv. Rev. Optique 6 363 (1976)
- [72] J. C. Gay and A. Omont 3ème Conf. Atomic Physics Boulder (1972)
- [73] T. W. Hänsch I. S. Shahin and A. L. Schawlow Phys. Rev. Lett. 27  
707 (1971)
- [74] T. W. Hänsch I. S. Shahin and A. L. Schawlow Nature Phys. Science  
235 65 (1972)
- [75] P. W. Smith and T. W. Hänsch Phys. Rev. Lett. 26 740 (1971)
- [76] T. Kan and G. J. Wolga IEEE QE 7 141 (1971)
- [77] R. Vetter R. Damaschini J. Cahen and J. Brochard J. Phys. B 8  
275 (1975)
- [78] R. Damaschini J. Cahen J. Brochard and R. Vetter J. Phys. B 9  
211 (1976)
- [79] C. Bréchnac R. Vetter Influence of collisions on saturated  
absorption profile of the 557 nm line of Kr I - Soumis à  
J. Phys. B

- [80] C. Bréchnac S. Gerstenkorn P. Luc *Physica* 82 C 409 (1976)
- [81] S. Gerstenkorn *Journal de Physique sup.* n° 11-12 34 55 (1973)
- [82] C. Froese-Fischer *Comput. Phys. Commun.* 1 151 (1969)
- [83] J.-J. Labarthe *J. Phys. B* 6 1761 (1973)
- [84] Ionesco Pallas *Ann. Physik* 8 9 (1961)
- [85] Rasmussen and Middelbce *Mat. Fys. Medd.* 30 (1955)
- [86] W. Humbach *Zeitschrift für Physik* 133 589-614 (1952)
- [87] F. A. Babuskin *Soviet Phys. JETP* 17 1118 (1963)
- [88] A. R. Bodmer *Nucl. Phys.* 9 371 (1958)
- [89] E. Nolte *Thèse Freiburg* (1971)
- [90] Nuclear Structure Dubna Symposium 1968 A. Migdal 541
- [91] Yoshiaki Kato and B. P. Stoicheff *JOSA Letters* 490 (1976)
- [92] S. Feneuille S. Liberman J. Pinard and P. Jacquinet To be published  
in *C. R. Acad. des Sciences Photoionisation isotopiquement  
sélective d'atomes de Rb en présence d'un champ électrique  
continu.*
- [93] R. Hofstadter G. K. Noldeke K. J. van Vostrum L. Suelzle  
M. R. Yearian B. C. Clark R. Herman D. G. Ravenhall  
*Phys. Rev. Lett.* 15 758 (1965)
- [94] E. V. Condon et G. H. Shortley *The Theory of Atomic Spectra*  
Cambridge University Press Cambridge (1935)
- [95] G. Racah *Nature* 129 723 (1932)
- [96] J. E. Rosenthal et G. Breit *Phys. Rev.* 41 459 (1932)
- [97] E. K. Broch *Arch. Math. Naturvidenskab* 48 25 (1945)
- [98] A. R. Bodmer *Proc. Phys. Soc. A* 66 1041-58 (1953)  
A. R. Bodmer *Nucl. Phys.* 21 347-52 (1960)
- [99] A. S. Meligy *Nucl. Phys.* 14 248-55 (1959)
- [100] N. J. Ionesco Pallas *Phys. Letters* 6 93-4 (1963)
- [101] E. E. Fradkin *Soviet Physics JETP* 15 550-7 (1962)
- [102] E. C. Seltzer *Phys. Rev.* 188 1916 (1969)
- [103] B. D. Dunlap *Phys. Rev. A* 6 2057 (1972)

Parvenue au terme de ce mémoire, je voudrais exprimer ma profonde gratitude à M. le Professeur P. JACQUINOT pour l'accueil bienveillant qu'il m'a réservé au Laboratoire Aimé Cotton.

Ce sujet m'a été proposé par S. GERSTENKORN , Directeur de Recherche au C.N.R.S. ; qu'il trouve ici l'assurance de ma profonde reconnaissance. L'enthousiasme qu'il a manifesté ainsi que nos discussions animées m'ont été très profitables pour mener à bien ce travail.

Que M. le Professeur B. DECCMPS, mon parrain au C.N.R.S., trouve ici l'expression de ma sincère reconnaissance.

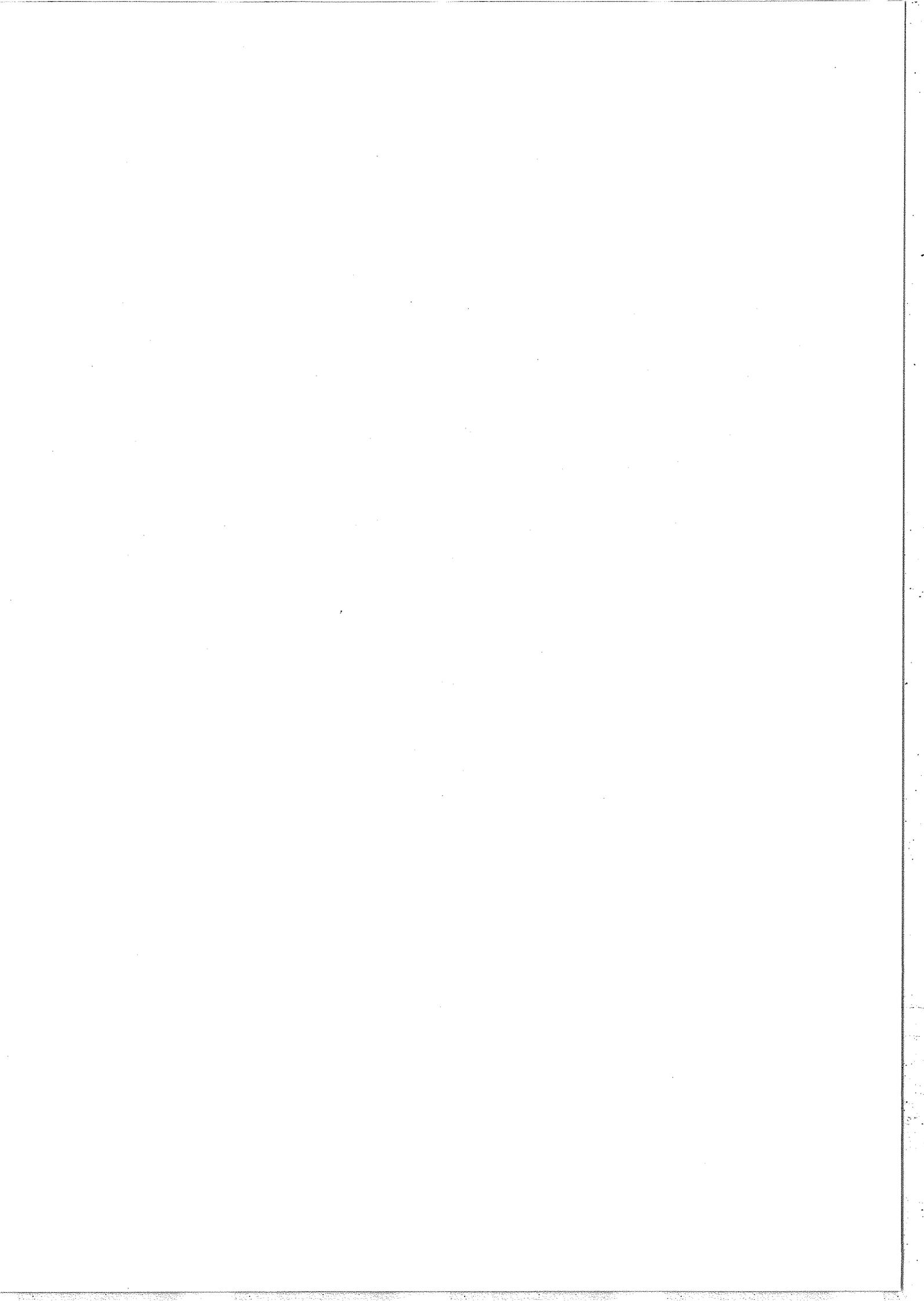
Je tiens également à remercier Serge FENEUILLE pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail et les encouragements qu'il m'a prodigués au cours de cette étude.

Touchée de l'obligeance avec laquelle M. le Professeur O. W. OTTEN a accepté de faire partie de ce jury, je le remercie vivement.

J'aimerais donner une place particulière dans ces remerciements à Danielle MERIE qui, tout au long de ces années, a su, par sa disponibilité et ses compétences, m'aider à résoudre un grand nombre de difficultés expérimentales.

Ma reconnaissance va aussi à tous mes camarades du laboratoire qui, de façons diverses, m'ont aidée dans ces travaux. Je voudrais, en particulier, remercier Philippe CAHUZAC pour l'aide précieuse qu'il m'a apportée lors de mes premières expériences laser , ainsi que Raymond PELLETIER pour sa collaboration désintéressée à certaines expériences présentées ici. Enfin, je tiens à associer à la présentation de ce travail Raymond VETTER qui, outre le soin qu'il a pris à relire ce manuscrit, m'a témoigné à maints égards un soutien efficace.

Madame G. FONTAINE s'est chargée avec beaucoup de gentillesse de la dactylographie de ce texte ; qu'elle trouve ici mes vifs remerciements.



ANNEXE I



ANNEXE IRAPPELS THEORIQUES RELATIFS AU DEPLACEMENT ISOTOPIQUE.I - Hamiltonien de l'atome isolé.

Considérons un atome dont les électrons ont pour masse  $m$  et pour charge  $e$ , le noyau a pour masse  $M$  et pour charge  $Ze$ . Cet atome, lorsqu'il n'est soumis à aucune influence extérieure, admet pour hamiltonien :

$$\mathcal{H} = \sum_i \frac{P_i^2}{2m} + \frac{1}{2M} P_0^2 + \sum_i v_i + \sum_{i>j} \frac{e^2}{r_{ij}} + \sum_i \xi(r_i) \vec{s}_i \cdot \vec{l}_i + \vec{X} \cdot \vec{I}$$

où 0 est l'indice relatif au noyau

$i$  est l'indice relatif à l'électron  $i$

$r_{ij}$  la distance entre les électrons  $i$  et  $j$

$r_i$  la distance entre l'électron  $i$  et le centre du noyau

$\vec{I}$  le spin nucléaire du noyau

$\vec{X}$  l'opérateur relatif aux électrons dans le couplage magnétique avec le noyau

$\vec{P}$  l'opérateur quantité de mouvement.

Dans l'approximation du champ central, à l'extérieur du noyau de rayon  $R_0$ , le potentiel coulombien s'écrit  $v_i = \frac{-Ze^2}{r_i}$ , à l'intérieur du noyau l'électron  $i$  est soumis à un potentiel plus complexe  $H_i$ .

En écrivant l'hamiltonien dans le système du centre de gravité  
noyau électrons où  $\vec{P}_0 + \sum_i \vec{P}_i = \vec{0}$

$$\mathcal{H} = \sum_i \frac{P_i^2}{2m} + \frac{1}{2M} \left( \sum_i P_i^2 + 2 \sum_{i>j} \vec{P}_i \cdot \vec{P}_j \right) + \sum_{\substack{i \\ r_i < R_0}} \frac{-Ze^2}{r_i} + \sum_i U_i + \sum_{i>j} \frac{e^2}{r_{ij}} + \sum_i \xi(r_i) \vec{s}_i \cdot \vec{l}_i + \vec{X} \cdot \vec{I}$$

$$\mathcal{H} = \underbrace{\frac{1}{2m} \sum_i P_i^2 - \sum_i \frac{Ze^2}{r_i} + \sum_{i>j} \frac{e^2}{r_{ij}} + \sum_i \xi(r_i) \vec{s}_i \cdot \vec{l}_i}_{\mathcal{H}_0} + \underbrace{\vec{X} \cdot \vec{I}}_{\mathcal{H}_m}$$

$$+ \underbrace{\frac{1}{2M} \sum_i P_i^2}_{\mathcal{H}_B} + \underbrace{\frac{1}{M} \sum_{i>j} \vec{P}_i \cdot \vec{P}_j}_{\mathcal{H}_{SM}} + \underbrace{\sum_{\substack{i \\ r_i < R_0}} U_i + \frac{Ze^2}{r_i}}_{\mathcal{H}_V}$$

$\mathcal{H}_0$  est l'hamiltonien relatif à l'atome Z de masse infinie et de noyau ponctuel

$\mathcal{H}_m$  est l'hamiltonien de couplage magnétique avec le noyau  $\Rightarrow$  structure hyperfine

$\mathcal{H}_B$  est l'hamiltonien de Bohr

$\mathcal{H}_{SM}$  est l'hamiltonien spécifique de masse

$\mathcal{H}_V$  est l'hamiltonien de volume.

## II - Déplacement isotopique de Bohr.

Au premier ordre de la théorie des perturbations pour le niveau a

$$\Delta T_B = \langle \Psi_a | \mathcal{H}_B | \Psi_a \rangle = \langle \Psi_a | \mathcal{H}_O + \mathcal{H}_B | \Psi_a \rangle - \langle \Psi_a | \mathcal{H}_O | \Psi_a \rangle$$

$$\mathcal{H}_O + \mathcal{H}_B = \frac{1}{2} \left( \frac{1}{m} + \frac{1}{M} \right) \sum_i p_i^2 - \sum_i \frac{Ze^2}{r_i} + \sum_{i < j} \frac{e^2}{r_{ij}} + \sum_i \xi(r_i) \vec{s}_i \cdot \vec{l}_i$$

$$\mathcal{H}_O = \frac{1}{2m} \sum_i p_i^2 - \sum_i \frac{Ze^2}{r_i} + \sum_{i < j} \frac{e^2}{r_{ij}} + \sum_i \xi(r_i) \vec{s}_i \cdot \vec{l}_i$$

Les deux hamiltoniens  $\mathcal{H}_O$  et  $\mathcal{H}_O + \mathcal{H}_B$  ont même forme.  $\mathcal{H}_O + \mathcal{H}_B$  se déduit de  $\mathcal{H}_O$  en remplaçant  $m$ , la masse de l'électron, par  $\mu$ , la masse réduite du noyau et de l'électron. Les énergies des niveaux correspondants se déduisent l'une de l'autre en remplaçant  $\frac{me^4}{h^2}$  par  $\frac{\mu e^4}{h^2}$

$$\Delta T_B = \langle \Psi_a | \mathcal{H}_O + \mathcal{H}_B | \Psi_a \rangle - \langle \Psi_a | \mathcal{H}_O | \Psi_a \rangle = \left( \frac{\mu}{m} - 1 \right) \langle \Psi_a | \mathcal{H}_O | \Psi_a \rangle$$

$$\text{en posant } T_O = \langle \Psi_a | \mathcal{H}_O | \Psi_a \rangle$$

$$\Delta T_B = - \frac{m}{M+m} T_O < 0 .$$

Le déplacement isotopique de Bohr pour une transition et un couple d'isotopes de masse  $M_1, M_2$  est

$$\Delta \sigma_B(M_2, M_1) = - \left[ \frac{m}{m+M_2} - \frac{m}{m+M_1} \right] \sigma$$

lorsque

$$M_2 > M_1 \quad \Delta \sigma_B(M_2, M_1) > 0$$

### III - Effet spécifique de masse.

Au premier ordre de la théorie des perturbations :

$$\Delta T_{SM} = \langle \Psi_a | \mathcal{H}_{SM} | \Psi_a \rangle = \frac{1}{M} \langle \Psi_a | \sum_{i>j} \vec{p}_i \cdot \vec{p}_j | \Psi_a \rangle = \frac{K}{M} .$$

L'opérateur  $\sum_{i>j} \vec{p}_i \cdot \vec{p}_j$  commute avec  $S_z^2 S^2 L_z^2 L^2 J_z^2 J^2$  . Les éléments

de matrice sont donc diagonaux par rapport à  $M_S M_L M_J$  et  $J$  . En adoptant pour l'atome à  $N$  électrons une fonction d'onde du type configurationnel, Vinti [23] a montré que les éléments de matrice de

$\sum_{i>j} \vec{p}_i \cdot \vec{p}_j$  s'expriment comme une combinaison linéaire de carrés et de

doubles produits d'intégrales radiales

$$J(n, \ell, n', \ell-1) = \int_0^\infty R(n, \ell) \left[ \frac{dR(n', \ell-1)}{dr} - \frac{\ell-1}{r} R(n', \ell-1) \right] r^2 dr$$

où  $R(n, \ell)$  est la partie radiale de la fonction d'ondes associée à l'électron. Il faut donc disposer des fonctions radiales  $R(n, \ell)$  .

Ces fonctions peuvent être les solutions paramétriques d'un champ central donné [94] mais aussi des solutions de la méthode classique de Hartree-Fock [30] . Pour certains éléments légers la méthode Hartree-Fock non relativiste permet d'obtenir des fonctions d'ondes conduisant à un calcul de l'effet spécifique en accord avec l'expérience. Pour les éléments moyens et lourds il faut tenir compte des effets relativistes et le calcul de l'effet spécifique ne permet d'obtenir qu'un ordre de grandeur de  $\Delta\sigma_{SM}$  . Suivant Bauche [27] l'effet spécifique de masse pour une transition  $a \rightarrow b$  est surtout important pour des sauts d'électrons du type :

$$\begin{aligned} nd &\rightarrow (n+1)p \\ nf &\rightarrow (n+1)d ; \end{aligned}$$

il est faible pour les sauts du type :

$$\begin{aligned} np &\rightarrow ns \\ ns &\rightarrow (n-1)p . \end{aligned}$$

IV - Déplacement isotopique de volume.

Au premier ordre de la théorie des perturbations :

$$\Delta T_V = \langle \Psi_a | \mathcal{H}_V | \Psi_a \rangle = \langle \Psi_a | \sum_i \left( \frac{Ze^2}{r_i} + U_i \right) | \Psi_a \rangle$$

$r_i < r_0$

Un tel calcul est très complexe puisqu'il consiste principalement à évaluer l'effet produit par l'extension finie du noyau sur l'énergie d'un électron. De nombreux auteurs ont abordé ce problème.

- Les premiers travaux remontent à 1932. Racah [95] puis Rosenthal et Breit [96] calculèrent  $\Delta T_V$  en supposant la distribution de charge sphérique et l'électron non relativiste. Ils obtiennent

$$\Delta T_V = \int_0^\infty 4\pi U_i |\Psi_0^i|^2 r^2 dr \approx |\Psi_0^i|^2 \langle r^{2\sigma} \rangle$$

où  $\sigma = (1 - \alpha^2 Z^2)^{\frac{1}{2}}$  avec  $\alpha = \frac{e^2}{\hbar c} = \frac{1}{137}$  (constante de structure fine).

- Plus tard Broch [97] (1945) considère l'électron comme relativiste et calcule le déplacement isotopique en utilisant la théorie de Dirac.

Soit  $|\Psi_0^i\rangle = \begin{pmatrix} \Psi_1 \\ \Psi_2 \end{pmatrix}$  la fonction d'onde relativiste relative à l'électron

i. Cette fonction est solution de l'équation de Dirac

$$\begin{cases} \frac{d \Psi_1}{dx} = \frac{k}{x} \Psi_1 + \frac{1}{2Z\alpha} \left(1 - \frac{E-V}{mc^2}\right) \Psi_2 \\ \frac{d \Psi_2}{dx} = -\frac{k}{x} \Psi_2 + \frac{1}{2Z\alpha} \left(1 + \frac{E-V}{mc^2}\right) \Psi_1 \end{cases}$$

avec  $k$  nombre quantique de Dirac  $\begin{cases} k = -(1+l) & \text{pour } j = l + \frac{1}{2} \\ k = l & \text{pour } j = l - \frac{1}{2} \end{cases}$

$x = \frac{2Zr}{a_H}$   $a_H$  est le rayon de la première orbite de Bohr

$V$  est la somme de l'énergie potentielle de l'électron dans le champ du noyau et dans le champ des couches électroniques.

Comme on s'intéresse au voisinage du noyau, l'énergie potentielle des couches électroniques peut être considérée comme constante. Dans ces conditions Broch [97] montre que :

$$\Delta T_V = 2Z \alpha m c^2 (\Psi_2 \Psi_1^\infty - \Psi_1 \Psi_2^\infty)_{x_0}$$

où  $\left\langle \begin{array}{l} \Psi_1^\infty \\ \Psi_2^\infty \end{array} \right\rangle$  est la fonction d'onde radiale pour un noyau ponctuel de charge  $Ze$ ,

$\left\langle \begin{array}{l} \Psi_1 \\ \Psi_2 \end{array} \right\rangle$  la fonction d'onde radiale pour le noyau de volume fini,

$x_0$  un point proche du noyau, extérieur à celui-ci, mais à une distance du centre de l'ordre de quelques fermi .

Il en déduit :

$$\Delta T_V = N \frac{1}{4\sigma \Gamma^2(2\sigma)} \frac{Z\alpha - (k-\sigma) K(x_0)}{Z\alpha - (k+\sigma) K(x_0)} x_0^{2\sigma}$$

avec  $\sigma = \sqrt{k^2 - Z^2 \alpha^2}$  ;

$K(x_0)$  représente la valeur que prend en  $x_0$  le rapport de la petite composante à la grande composante de la fonction d'onde de Dirac. Ce rapport dépend de la distribution de charges à l'intérieur du noyau ;

$$N = 4\pi R_\infty \frac{a_H^3}{Z} |\Psi(0)|^2 \text{ pour un électron } s \text{ ;}$$

$$N = 4\pi R_\infty \frac{a_H^3}{Z} 2l(l+1)(2l+1) \langle r^{-3} \rangle \text{ pour un électron } l \neq 0 .$$

Dans le cas d'une transition faisant intervenir un électron  $s$ , le terme  $\Delta T_V$  dû à l'électron  $s$  est prépondérant et on écrira  $\Delta \sigma_V = C_{th} |\Psi(0)|^2$ ,

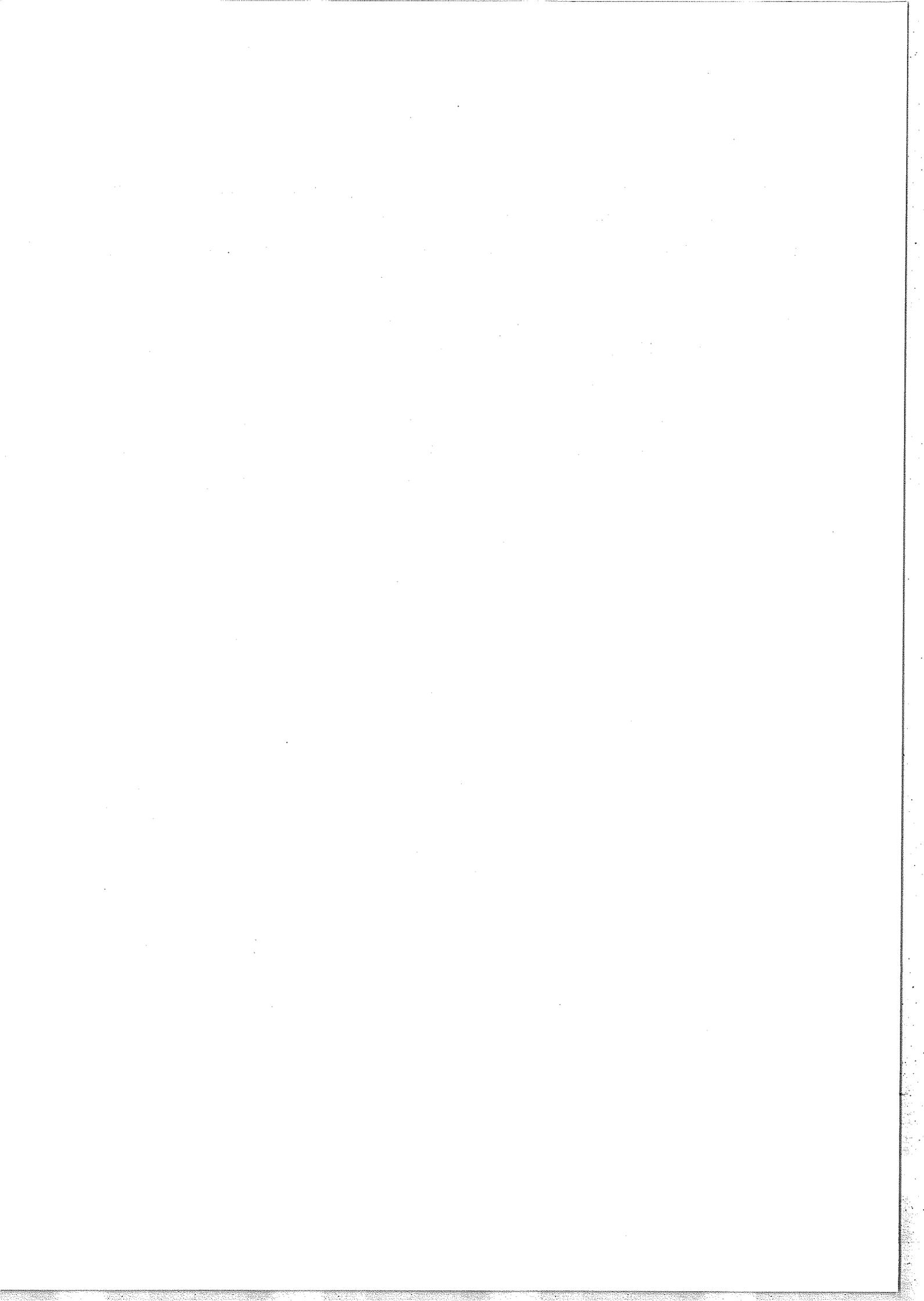
$$\text{où } C_{th} = 4\pi R_\infty \frac{a_H^3}{Z} \cdot \frac{1}{4\sigma \Gamma^2(2\sigma)} \cdot \frac{Z\alpha + (1+\sigma) K(x_0)}{Z\alpha + (1-\sigma) K(x_0)} x_0^{2\sigma} .$$

On est donc ramené à évaluer d'une part  $K(x_0)$  pour calculer  $C_{th}$  et, d'autre part, la densité électronique  $|\Psi(0)|^2$ . En ce qui concerne la partie électrique on pourra se rapporter à l'article de revue de Bauche et Champeau [41]. En ce qui concerne la constante théorique  $C_{th}$  :

- Broch, en 1945, et plus tard Crawford et Schwallow (1949) montrent que les résultats dépendent peu des différentes formes de potentiel électrostatique à l'intérieur du noyau ;
- Humbach [86] (1952) tabule les constantes  $C_{th}$  pour les différentes valeurs de  $Z$  en supposant la distribution de charge uniforme à l'intérieur du noyau ainsi que le noyau sphérique de rayon  $R = R_0 A^{1/3}$  avec  $R_0 = 1,4$  fermi ;
- Bodmer [98] (1953) montre que lorsque l'énergie de l'électron est telle que sa longueur d'onde associée reste inférieure ou comparable aux dimensions du noyau,  $K(x_0)$  est déterminée par la connaissance de  $\langle r^2 \rangle$  (carré moyen du rayon des charges nucléaires) ;
- Meligy [99] (1959), Ionesco Pallas [100] (1960), Fradkin [101] (1962) montrent que  $\Delta\sigma_V$  ne dépend que de  $\Delta\langle r^2 \rangle$  et que les termes dépendants du modèle sont négligeables ;
- Plus récemment Seltzer [102] (1969) montre que  $\Delta\langle r^2 \rangle$  doit être remplacé par une combinaison linéaire de quantité  $\Delta\langle r^{2N} \rangle$   $N = 1, 2$  etc... Dunlap [103] (1972) propose d'utiliser  $\Delta\langle r^{1+\sigma} \rangle$ .

Cependant de telles corrections sont en pratique négligeables devant les erreurs commises sur l'évaluation des autres facteurs et nous continuons d'écrire :

$$\Delta\sigma_V = \varphi(Z) |\Psi(0)|^2 \Delta\langle r^2 \rangle$$



ANNEXE II



## DÉPLACEMENT ISOTOPIQUE DANS LA RAIE DE RÉSONANCE D<sub>2</sub> DU RUBIDIUM. INVERSION DES VALEURS DE $\langle r^2 \rangle$ DES ISOTOPES <sup>85</sup>Rb ET <sup>87</sup>Rb

C. BRECHIGNAC, S. GERSTENKORN et P. LUC  
*Laboratoire Aimé Cotton, C.N.R.S. II, 91405-Orsay, France*

Reçu le 12 mai 1975

The isotope shift <sup>85</sup>Rb–<sup>87</sup>Rb in the D<sub>2</sub> resonance line of Rb I was determined by means of high resolution spectroscopy. This shift, positive and equal to  $+2.51 \pm 0.1$  mK, shows that the value of  $\langle r^2 \rangle_{85}$  ( $\langle r^2 \rangle$  = mean square value of the charge distribution), related to the lightest stable isotope is larger than that of the heavier isotope <sup>87</sup>Rb. By analogy, taking into account the variations of the binding energies per nucleon, one can predict the same behaviour for the radioactive isotope <sup>83</sup>Rb ( $\langle r^2 \rangle_{83} > \langle r^2 \rangle_{85}$ ). Finally we have to expect  $\langle r^2 \rangle_{83} \approx \langle r^2 \rangle_{89}$ , although the difference of masses is six units.

Le déplacement isotopique <sup>85</sup>Rb–<sup>87</sup>Rb de la raie de résonance D<sub>2</sub> du Rb I a été déterminé par spectroscopie interférentielle à haute résolution. Ce déplacement, trouvé positif et égal à  $+2,51 \pm 0,1$  mK, montre que la valeur de  $\langle r^2 \rangle_{85}$  ( $\langle r^2 \rangle$  = carré moyen de la distribution des charges) correspondant à l'isotope le plus léger est plus grand que celui correspondant à l'isotope le plus lourd,  $\langle r^2 \rangle_{87}$ . Par analogie avec les variations des énergies de liaison par nucléon, on peut prévoir un phénomène analogue pour l'isotope radioactif <sup>83</sup>Rb ( $\langle r^2 \rangle_{83} > \langle r^2 \rangle_{85}$ ); de plus, on doit s'attendre à observer  $\langle r^2 \rangle_{83} \approx \langle r^2 \rangle_{89}$ , bien que la différence de masse de ces deux isotopes soit 6 unités.

### 1. Introduction

La mesure du déplacement isotopique (DI) <sup>85</sup>Rb–<sup>87</sup>Rb dans la raie de résonance D<sub>1</sub> ( $\lambda = 7947$  Å, <sup>2</sup>S<sub>1/2</sub>–

<sup>2</sup>P<sub>1/2</sub>) a fait l'objet de trois publications récentes; le tableau I donne les résultats obtenus, ainsi que les méthodes utilisées par les différents auteurs. Nous avons adjoint également les mesures anciennes de

Tableau I  
 Déplacements isotopiques mesurés dans les raies D<sub>1</sub> et D<sub>2</sub>. Résultats des travaux antérieurs

D <sub>1</sub> $\lambda = 7947$ Å (mK)	D <sub>2</sub> $\lambda = 7800$ Å (mK)	Méthodes	Année références
+2,8 ± 1	+2,0 ± 1	Tube de Geissler. Fabry–Pérot photographique	1936 [1]
+3,5 ± 0,5		Jet atomique. Balayage par effet Stark	1968 [2]
+2,59 ± 0,1	+2,68 ± 0,1	Jet atomique en émission. Fabry–Pérot photoélectrique	1971 [3]
+2,57 ± 0,1		Jet atomique. Absorption d'un rayonnement laser. Balayage par effet Zeeman	1972 [4]

Kopfermann et H. Krüger (1936).

La position observée des centres de gravité des structures hyperfines  $^{85}\text{Rb}$  et  $^{87}\text{Rb}$  est celle qui correspondrait à l'inversion  $\langle r^2 \rangle_{85} > \langle r^2 \rangle_{87}$ ; en effet l'isotope 85 est déplacé par rapport à l'isotope 87 vers les grandes longueurs d'onde. Par convention cette situation est représentée par le signe + dans le tableau I. Cependant avant de conclure, étant donné la petitesse de l'effet de volume — du même ordre de grandeur que les effets de masse — il apparaissait nécessaire de vérifier la mesure effectuée par Beacham et Andrew [3] sur la raie  $D_2$ : ces auteurs signalent la présence dans leurs conditions expérimentales d'importantes "anomalies" dans la distribution des intensités des composantes hyperfines. Or, la transition  $D_2$  est, *a priori*, plus intéressante que la transition  $D_1$ : le niveau supérieur  $^2P_{3/2}$  (électron  $p_{3/2}$ ) possède théoriquement un déplacement isotopique de volume d'un ordre de grandeur [5] inférieur à celui du niveau  $^2P_{1/2}$  (électron  $p_{1/2}$ ), de telle sorte que la totalité de l'effet de volume observée dans la transition  $D_2$  ( $^2S_{1/2} - ^2P_{3/2}$ ) peut être attribué au niveau fondamental  $^2S_{1/2}$  avec plus de sûreté. L'intérêt de la mesure précise du déplacement isotopique dans le cas du rubidium réside dans le fait que l'un des isotopes ( $^{87}\text{Rb}$ ) possède une couche complète de neutrons ( $Z = 37, N = 50$ ), et récemment nous avons montré [6] qu'il existe une relation entre les énergies de liaison par nucléon et le déplacement isotopique relatif (DIR). Cette relation permet de prévoir une "inversion" des rayons nucléaires (plus précisément de  $\langle r^2 \rangle$ , valeur moyenne du carré de la distribution des charges) au voisinage des couches complètes ( $N = 50$ , cas du strontium [7] et  $N = 82$ , cas du cerium [8]). Nous avons donc repris les mesures sur la raie  $D_2$  à l'aide d'une technique, qui, bien que classique (cathode-creuse et spectromètre Fabry-Pérot photoélectrique [9] permet néanmoins d'obtenir une excellente précision de l'ordre d'une fraction de mK.

Nous indiquerons ensuite les arguments (discussion sur la valeur de l'effet spécifique de masse) qui nous incitent à conclure que, dans le cas du rubidium comme dans le cas du strontium, nous sommes bien en présence d'une inversion des rayons nucléaires  $\langle r^2 \rangle$ , ce qui permet de prévoir la position des centres de gravité des structures hyperfines des isotopes radioactifs  $^{83}\text{Rb}$  et  $^{89}\text{Rb}$ .

## 2. Montage expérimental

C'est un spectromètre Fabry-Pérot photoélectrique classique [10], constitué par un Fabry-Pérot analyseur précédé d'un monochromateur Ebert-Fastie. Nous indiquons ci-dessous brièvement les conditions expérimentales spécifiques à notre problème.

(a) Source. C'est une cathode-creuse du type Schüller refroidie à l'azote liquide, le gaz porteur étant du néon et l'intensité du courant dans la source étant de l'ordre de 10 mA. Le rubidium (soit naturel, soit l'isotope  $^{85}\text{Rb}$  enrichi à plus de 99,5%) était sous forme de chlorure; la quantité utilisée est de 1 à 2 mg par essai; la durée de vie d'une de ces cathodes était supérieure à 50 heures dans certains cas.

(b) Prémonochromateur. La fonction d'appareil du prémonochromateur est donnée par la fig. 1. C'est une fonction trapèze; la position des composantes hyperfines est située dans la zone de 300 mK indiquée sur la fig. 1; on évite ainsi le déplacement des centres de gravité des quatre groupes de composantes hyperfines observées à travers le Fabry-Pérot (fig. 2); l'ordre de grandeur de ces déplacements a été récemment évalué [11].

(c) Etalonnage des spectres donnés par le Fabry-Pérot analyseur. Il est obtenu à l'aide d'un interféromètre de Michelson auxiliaire à "bras repliés" (à l'aide d'un prisme de Kösters [12]), le balayage des ordres du Fabry-Pérot étant effectué par variation de

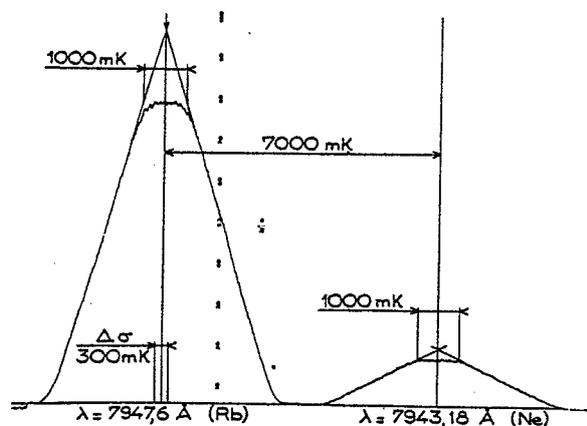


Fig. 1. Fonction d'appareil du prémonochromateur, choisie de forme trapézoïdale afin de transmettre sans altérations les intensités des composantes hyperfines de la raie  $D_2$  ( $\Delta\sigma = 300$  mK, structure totale).

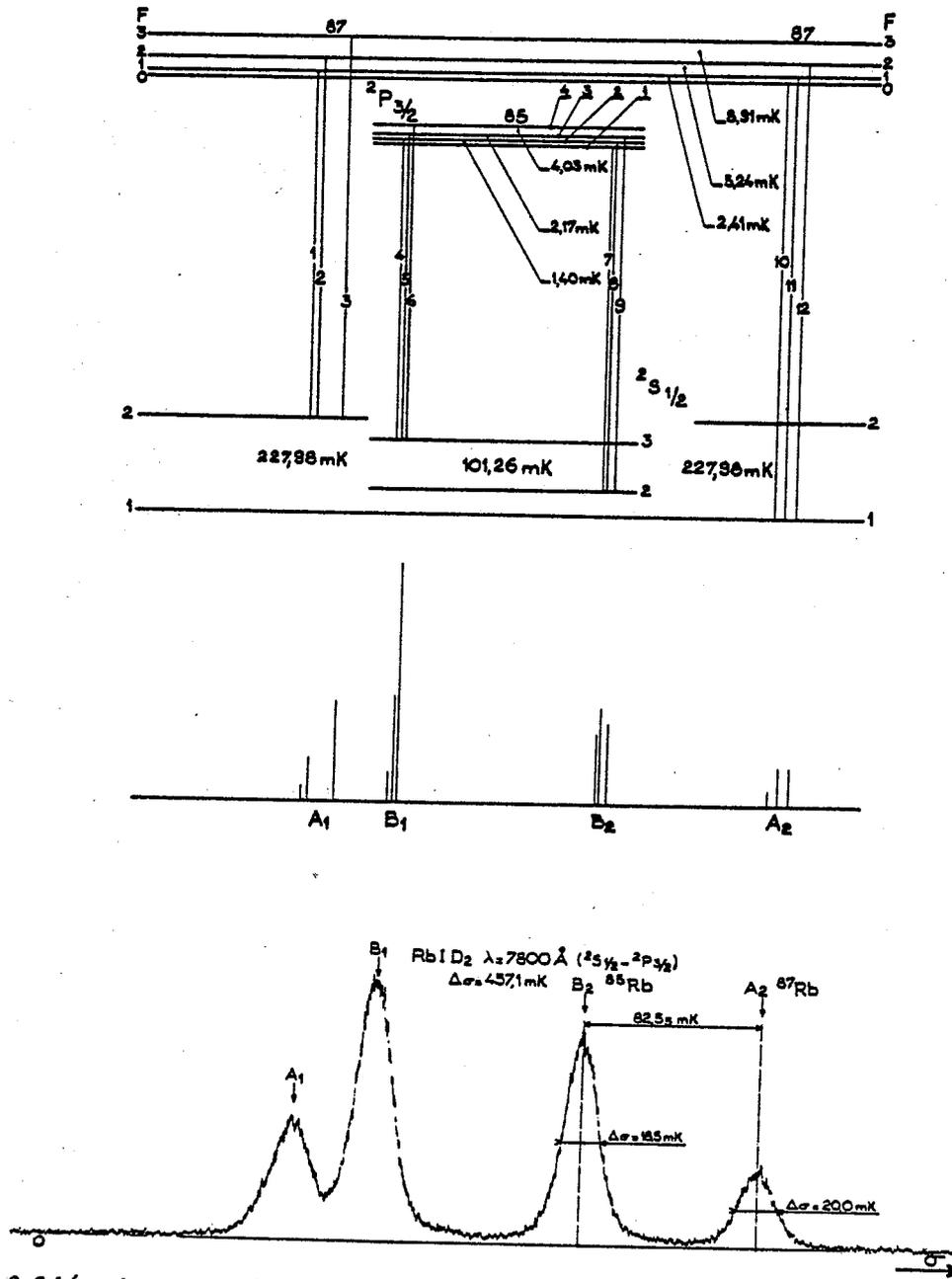


Fig. 2. Schéma des structures hyperfines de la raie  $D_2$  ( $\lambda = 7800 \text{ \AA}$ ) des deux isotopes 85 et 87 du rubidium.

l'indice de l'air entre les lames de l'étalon Fabry-Pérot.

(d) Récepteur. C'est un tube photoélectrique RCA 7102 (maximum de rendement quantique de la photocathode situé vers  $8000 \text{ \AA}$ ), refroidi à l'aide d'un

mélange de carboglace-acétone. Les données sont recueillies à volonté soit sur un potentiomètre enregistreur du type MECI soit sur bandes perforées à l'aide d'un voltmètre digital.

### 3. Résultats des mesures

#### 3.1. Mesures d'intensités

L'utilisation du rubidium naturel dont le rapport d'abondance est bien connu [13] ainsi que la mesure des intensités par planimétrie de groupes de composantes hyperfines  $A_1$ ,  $B_1$ ,  $B_2$  et  $A_2$  (fig. 2) donne une idée du taux d'autoabsorption dans la source. Ces mesures sont rendues difficiles par suite de la nécessité de tenir compte de l'influence mutuelle des pieds des composantes complexes  $A_1$ ,  $B_1$ ,  $B_2$  et  $A_2$ . Aussi, nous avons repris certaines mesures à l'aide d'un échantillon enrichi à plus de 99,5% en  $^{85}\text{Rb}$ , où le problème de la détermination du fond est plus facile à résoudre, la structure observée se réduisant cette fois aux deux composantes  $B_1$  et  $B_2$  (fig. 3).

Le tableau II donne les intensités mesurées à partir d'enregistrements obtenus dans des conditions où l'effet de l'autoabsorption est réduit à sa plus faible valeur possible (nombre d'atomes présent dans la source aussi petit que possible, faible courant dans la source), tout en étant compatible pour obtenir un tracé avec un rapport signal/bruit acceptable (fig 3). Pour comparer nos mesures avec celles observées dans le jet atomique en émission, nous avons adopté la valeur  $\rho = 2,59$  pour le rapport d'abondance  $^{85}\text{Rb}/^{87}\text{Rb}$ , valeur plus récente [13] que celle retenue par Beacham et Andrew ( $\rho = 2,66$ ).

Les résultats obtenus montrent que, dans nos conditions expérimentales on retrouve aux erreurs de mesure près, le rapport d'abondance ainsi que les rapports théoriques des intensités des groupes de composantes complexes  $A_1/A_2$ ,  $B_1/B_2$  et  $B_2/A_2$  (tableau III). Dans le cas où la source est un jet atomique en émission, ces rapports sont toujours inférieurs aux rapports théoriques (tableau III, dernière colonne). Cette différence peut-elle être attribuée à la présence d'autoabsorption, malgré la faible épaisseur optique d'un jet atomique? Dans ce cas il ne serait pas nécessaire d'invoquer une rupture du couplage  $LS$  [3]. Néanmoins, à l'intérieur de chacune des composantes complexes  $A_1$ ,  $B_1$ ,  $B_2$  et  $A_2$  une distribution "anormale" des intensités des composantes hyperfines ne peut être exclue, *a priori*, à l'aide de notre technique; en effet la largeur Doppler des raies excités par notre source ne permet pas de résoudre chacune des quatre composantes complexes.

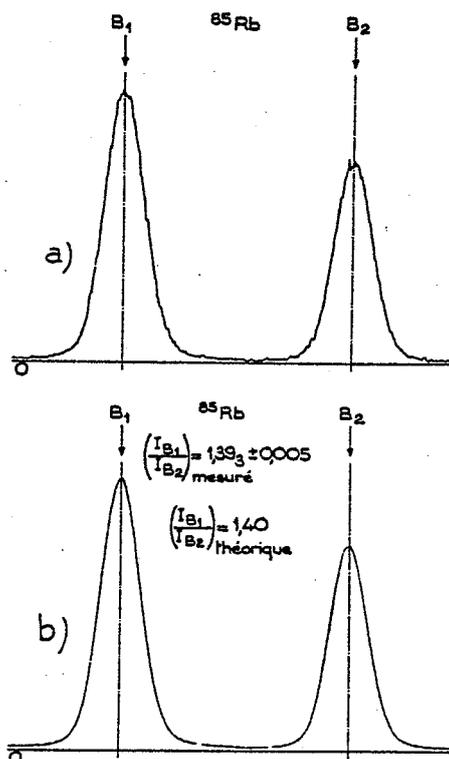


Fig. 3. Structure hyperfine de la raie  $D_2$  obtenue à l'aide d'un échantillon enrichi à 99,5% en  $^{85}\text{Rb}$ . (a) Enregistrement des composantes complexes  $B_1$  et  $B_2$  du doublet de la raie  $D_2$ . (b) Reconstitution par calcul de la structure du doublet à partir: (1) du profil d'une composante pure (composante C) de la raie  $D_1$  (fig. 4), (2) des composantes hyperfines 7, 8, 9 (schéma fig. 2) formant la composante complexe  $B_2$  (fig. 6) et des composantes hyperfines 4, 5, 6 (schéma fig. 2) formant la composante complexe  $B_1$ . Le rapport mesuré des intensités ( $1,393 \pm 0,005$ ) est en excellent accord avec le rapport des intensités théoriques (1;40).

Cependant, pour la mesure de la position des centres de gravité de ces composantes complexes, qui seule importe dans la détermination du déplacement isotopique, le fait de retrouver le rapport d'abondance ainsi que les rapports théoriques entre les différents groupes de composantes complexes plaide plutôt en faveur d'une distribution des intensités des composantes individuelles en accord avec les intensités théoriques. Tel n'est pas le cas de la détermination du déplacement isotopique effectué par Beacham et Andrew.

En effet, pour le calcul du déplacement isotopique ce sont les intensités théoriques qui ont été considérées

Tableau II

Comparaison des intensités des composantes hyperfines observées en cathode-creuse et dans le jet atomique en émission [3]

Composantes hyperfines	Intensités théoriques	Composantes complexes	Intensités théoriques (composantes complexes)	Intensités observés	
				cathode creuse	jet en émission
1	0,031	1 2 A <sub>1</sub> 3	0,624	0,63 ± 0,05	0,52 ± 0,03
2	0,156				
3	0,437				
4	0,123	4 5 B <sub>1</sub> 6	1,555	1,50 ± 0,05	1,12 ± 0,07
5	0,432				
6	1,000				
7	0,333	7 8 B <sub>2</sub> 9	1,111	1,07 ± 0,05	0,90 ± 0,1
8	0,432				
9	0,346				
10	0,062	10 11 A <sub>2</sub> 12	0,374 <sup>a)</sup>	0,374 <sup>a)</sup>	0,374 <sup>a)</sup>
11	0,156				
12	0,156				

a) Standard interne.

Tableau III

Rapports des intensités des composantes complexes observées en cathode-creuse dans le jet atomique en émission [3]

Rapport des composantes	Théorie	Rapports observés	
		cathode creuse	jet atomique
$(B_1 + B_2)/(A_1 + A_2)$	2,59	2,6 ± 0,2	2,28 ± 0,15
$A_1/A_2$	1,66	1,70 ± 0,1	1,38 ± 0,08
$B_2/A_2$	2,87	2,85 ± 0,15	2,4 ± 0,3
$B_1/A_2$	4,02	4,0 ± 0,2	3,0 ± 0,2
$B_1/B_2$	1,40	1,40 ± 0,1	1,25 ± 0,11
$B_1/B_2$ (enrichi)	1,40	1,39 ± 0,01	—

et non les intensités observées; alors que la mesure des positions résultent d'une distribution d'intensités "anormales". C'est cette difficulté qui nous a incité, en partie, à reprendre la mesure du déplacement isotopique de la raie D<sub>2</sub>, à l'aide d'une source autre que le jet atomique en émission. Enfin, ajoutons que dans le cas de la raie D<sub>1</sub> ( $\lambda = 7947 \text{ \AA}$ ), raie moins intense que la raie D<sub>2</sub>, la distribution des intensités observées soit dans le jet atomique en émission, soit dans notre source (fig. 4) est en bon accord avec la distribution des intensités donnée par la théorie: les valeurs du

déplacement isotopique pour la raie D<sub>1</sub> donnés par les deux dernières mesures (tableau I) sont d'ailleurs en excellent accord (2,59 et 2,57 mK).

### 3.2. Mesures de positions

*A priori*, les quatre composantes complexes A<sub>1</sub>, B<sub>1</sub>, B<sub>2</sub> et A<sub>2</sub> devraient présenter un profil asymétrique (voir schéma fig. 2); ceci impliquerait une détermination laborieuse des centres de gravité de ces composantes complexes. Cependant, dans le cas de la raie

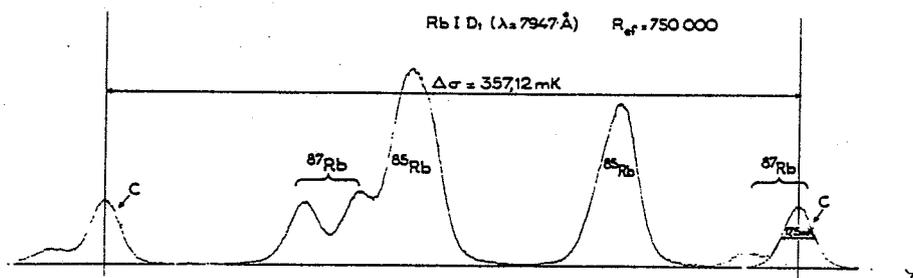


Fig. 4. Enregistrement de la raie  $D_1$  ( $\lambda = 7947 \text{ \AA}$ ) permettant d'obtenir à l'aide de la composante C, le profil de la fonction d'appareil (la composante C étant pure dans la raie  $D_1$ ).

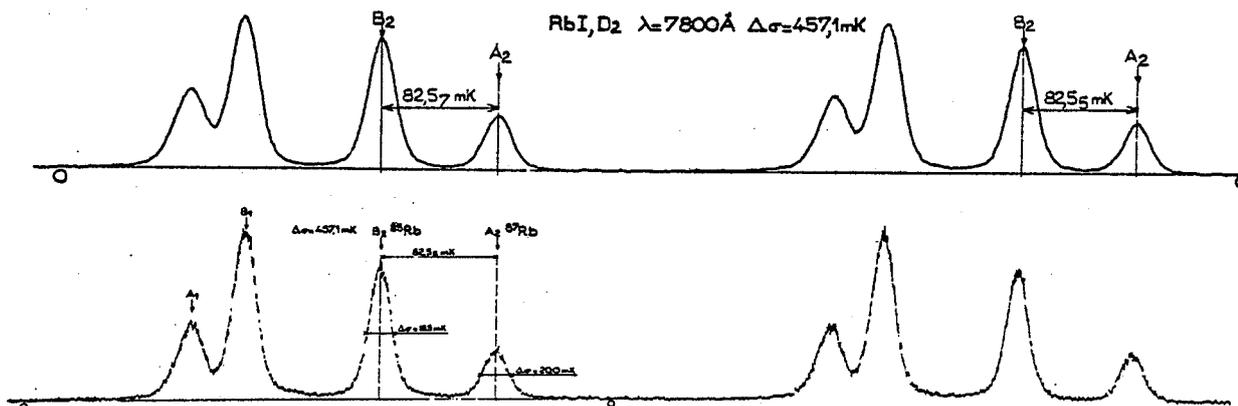


Fig. 5. Enregistrement de la raie  $D_2$  à l'aide d'une cathode creuse: (a)  $I = 25 \text{ mA}$  dans la source, (b)  $I = 10 \text{ mA}$ . La distance  $B_2A_2$  qui détermine le déplacement isotopique est sensiblement égale dans les deux cas, bien que la résolution effective soit plus faible dans le cas (a) que dans le cas (b) (élargissement Doppler).

$D_2$ , les composantes complexes  $B_2$  ( $^{85}\text{Rb}$ ) et  $A_2$  ( $^{87}\text{Rb}$ ) se présentent sous une forme parfaitement symétrique (fig. 2 et fig. 5), aux erreurs de pointés près ( $\pm 0,05 \text{ mK}$ ). Cela est dû au fait que les distances entre les composantes hyperfines 7, 8, 9 ( $B_2$ ) d'une part et 10, 11, 12 ( $A_2$ ) d'autre part sont d'un ordre de grandeur inférieur à la largeur des raies émises par la source. Connaissant la fonction d'appareil, grâce au profil pur de la composante C de la raie  $D_1$  (fig. 4) ainsi que les structures hyperfines relatives aux deux isotopes 85 et 87 de niveau  $^2P_{3/2}$  (mesures très précises par résonance de Senitzky et Rabi [14]), nous avons calculé la différence  $\Delta$  entre le centre de gravité des composantes complexes  $B_2$  et  $A_2$  et l'axe de symétrie (en trait plein) de ces deux composantes complexes (fig. 6 et fig. 7). Les courbes de la fig. 8 résumant le résultat de ce calcul: l'erreur commise  $\Delta \approx 0,01 \text{ mK}$  pour les largeurs de raie variant de 14 à 20 mK reste toujours inférieure aux erreurs de pointe

( $\pm 0,05 \text{ mK}$ ) et reste donc indécélable sur nos enregistrements. Ce calcul a été effectué point par point à l'aide d'un ordinateur UNIVAC 1106. Ceci nous a permis d'essayer un certain nombre de fonctions d'appareil, en particulier l'étude de l'influence des "pieds", ainsi que la présence simulée d'une faible autoabsorption. Dans tous ces cas, la conclusion obtenue est la suivante: l'erreur commise sur l'évaluation du centre de gravité par rapport à l'axe de symétrie des composantes reste toujours inférieure à 0,01 mK.

En résumé, la mesure de la distance entre les axes de symétrie des composantes  $B_2$  et  $A_2$  fournit directement la distance entre les centres de gravité des composantes complexes  $B_2$  et  $A_2$ : la correction  $\Delta$  à effectuer étant de  $2 \times 0,01 \text{ mK} = 0,02 \text{ mK}$ . Cette conclusion reste valable, même en présence d'un taux d'autoabsorption pas trop élevé, ce que nous avons vérifié expérimentalement en enregistrant la raie  $D_2$  à l'aide

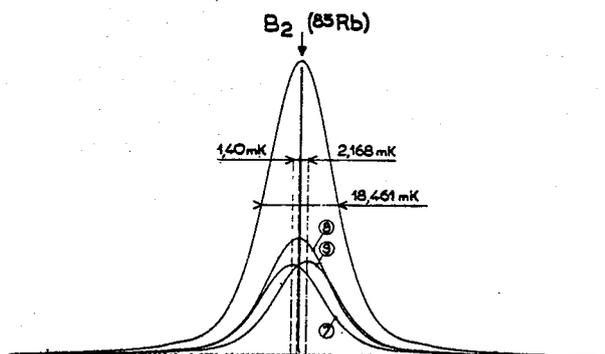


Fig. 6. Reconstitution du profil de la composante complexe B<sub>2</sub> (<sup>85</sup>Rb). En trait plein figure l'axe de symétrie de la composante complexe B<sub>2</sub>.

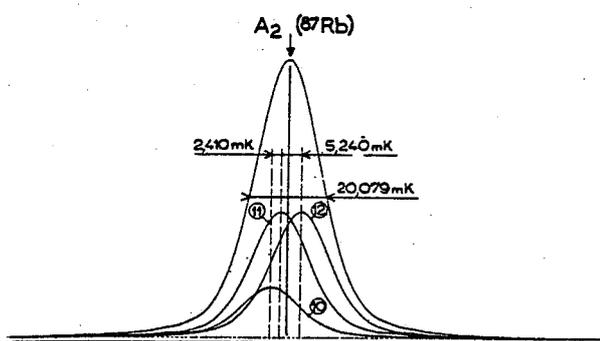


Fig. 7. Reconstitution du profil de la composante complexe A<sub>2</sub> (<sup>87</sup>Rb). En trait plein figure l'axe de symétrie de la composante complexe A<sub>2</sub>.

d'un courant dans la source s'élevant jusqu'à 50 mA. Cette circonstance favorable permet donc l'enregistrement de la raie D<sub>2</sub> avec un excellent rapport signal/bruit (fig. 5); elle explique également les résultats étonnants obtenus par Kopfermann et Krüger dès 1936, mais avec une précision moindre, il est vrai.

### 3.3. Détermination du déplacement isotopique <sup>85</sup>Rb-<sup>87</sup>Rb

Par définition, le déplacement isotopique mesuré dans une transition comportant des isotopes de masses impairs, est la distance séparant les centres de gravité des structures hyperfines relatives à chacun des isotopes. Dans le cas du rubidium nous disposons des données très précises, obtenues par résonance magnétique, à la fois sur les structures hyperfines de l'état fondamental <sup>2</sup>S<sub>1/2</sub> [15] et des états excités <sup>2</sup>P<sub>1/2</sub>.

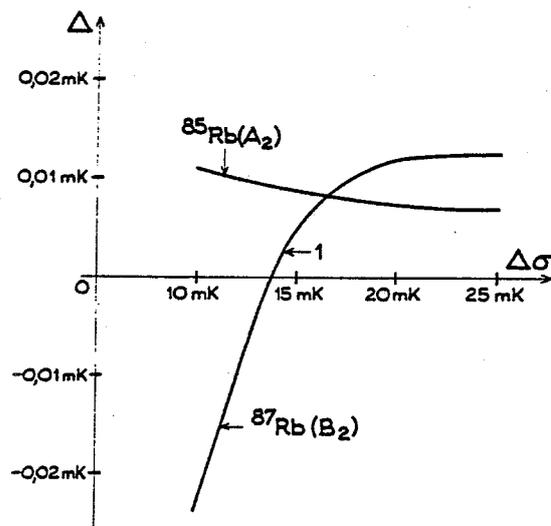


Fig. 8. Erreurs commises sur le centre de gravité des composantes complexes B<sub>2</sub> et A<sub>2</sub> par rapport à l'axe de symétrie de ces composantes en fonction de la largeur des composantes hyperfines individuelles.

<sup>2</sup>P<sub>3/2</sub> [16]; il est donc facile de calculer la relation entre la distance des centres de gravité des composantes complexes B<sub>2</sub> et A<sub>2</sub> et le déplacement isotopique Δσ(<sup>85</sup>-<sup>87</sup>). Tout calcul fait on trouve:

$$\Delta\sigma(85-87) = d - (80,05 \pm 0,01 \text{ mK}).$$

La distance  $d$  étant la distance mesurée expérimentalement. A cette fin, nous avons utilisé trois étalons Fabry-Pérot d'épaisseurs différentes correspondant respectivement à 317, 357 et 457 mK d'intervalle spectral libre. La finesse reflectrice de cet étalon est de l'ordre de 90, la surface utilisée sur l'étalon est de 1 cm<sup>2</sup> environ. Le nombre total de mesure est de 70, ce qui nous a donné le résultat suivant:

$$d = 82,54 \text{ mK} \pm 0,1 \text{ mK}.$$

L'erreur donnée  $\pm 0,1$  mK correspond à l'erreur quadratique moyenne  $\sigma = [\sum_i (x_i - \bar{x})^2 / n]^{1/2}$ . Tenant compte de la correction  $\Delta$  de l'ordre de 0,02 mK il vient:

$$\Delta\sigma(85-87) = (82,54 + 0,02) \text{ mK} - 80,05 = 2,51 \text{ mK}.$$

Finalement on obtient:

$$\Delta\sigma_m(85-87) = 2,51 \text{ mK} \pm 0,1 \text{ mK}.$$

Compte tenu de l'erreur admise, ce résultat reste, d'une part, encore compatible avec celui de Beacham et Andrew ( $2,68 \pm 0,1 \text{ mK}$ ) et, d'autre part, montre qu'il n'y a pas différence sensible entre les déplacements isotopiques des niveaux  $^2P_{1/2}$  et  $^2P_{3/2}$ .

#### 4. Interprétation du déplacement isotopique

4.1. Rappelons que le déplacement isotopique mesuré  $\Delta\sigma(85-87)$  est la somme de trois termes:

$$\Delta\sigma_m(85-87) = \Delta\sigma_v + \Delta\sigma_B + \Delta\sigma_{sp},$$

où  $\Delta\sigma_v$  représente l'effet de volume due à la variation de  $\langle r^2 \rangle$  lorsque l'on passe d'un isotope à l'autre,  $\Delta\sigma_B$  est l'effet de Bohr normal: ( $\Delta\sigma_B = 1,89 \text{ mK}$  pour  $\lambda = 7800 \text{ \AA}$ ), enfin  $\Delta\sigma_{sp}$  est l'effet spécifique de masse.

Tenant compte de la valeur mesurée ( $+2,51 \text{ mK}$ ) on obtient:

$$\Delta\sigma_v = (2,51 - 1,89) \text{ mK} - \Delta\sigma_{sp} = +0,62 \text{ mK} \pm 0,1 \text{ mK} - \Delta\sigma_{sp}.$$

S'il est possible de montrer que l'effet spécifique de masse  $\Delta\sigma_{sp}$  est négatif, on pourrait en conclure que  $\Delta\sigma_v$  est sûrement positif, ce qui équivaudrait à montrer que la valeur moyenne du carré de la distribution des charges  $\langle r^2 \rangle$  se trouve inversée lorsque l'on passe de l'isotope le plus léger au plus lourd, c'est à dire que l'on a:  $\langle r^2 \rangle_{85} > \langle r^2 \rangle_{87}$ .

#### 4.2. Signe de $\Delta\sigma_{sp}$

Pour évaluer  $\Delta\sigma_{sp}$  nous disposons de deux voies. L'une est représentée par l'inégalité empirique donnée par Bruch *et al.* [17]:  $|\Delta\sigma_{sp}| \leq 1,4 \Delta\sigma_B$ ; l'autre est de considérer la valeur théorique calculée par Bauche [18] et trouvée égale à  $-1,6 \text{ mK}$ .

Etant donné la faible valeur de l'effet total observé, l'utilisation soit de l'inégalité de Bruch *et al.*, soit de la valeur théorique entraîne une incertitude trop grande dans la détermination de  $\Delta\sigma_{sp}$ . C'est pourquoi nous proposons le processus suivant: dans le cas du strontium, l'effet spécifique de masse  $\Delta\sigma_{sp}$  est connu

[17] et trouvé égal  $-0,10 \text{ mK}$  pour la transition  $^2S_{1/2} - ^2P_{3/2}$ , et ceci pour une différence de deux unités de masse. Or la raie D<sub>2</sub> correspond à la même séquence isoélectronique que celle du Sr II ( $\lambda = 4077 \text{ \AA}$ ,  $^2S_{1/2} - ^2P_{3/2}$ ). D'après les règles générales, gouvernant les effets spécifiques de masse, on peut en déduire que  $\Delta\sigma_{sp}$  de la raie D<sub>2</sub> du rubidium est également négatif et du même ordre de grandeur.

#### 4.3. Relations entre les déplacements isotopique relatif et les variations des énergies de liaison par nucléon [6]

Les courbes de la fig. 9 représentent respectivement les variations des énergies de liaison ( $E$  en keV) par nucléon [19] en fonction du nombre de neutrons dans le cas du strontium et du rubidium.

Pour ces deux éléments  $E$  est maximum pour  $N = 50$  (couche complète). Si l'on suppose, *a priori*, que le rapport  $\delta_{13} \langle r^2 \rangle / \delta_{12} \langle r^2 \rangle$  de la variation du carré moyen de la distribution des charges, lorsque l'on passe des isotopes  $N - 4$  à  $N$  ( $N = 50$ ), est égal au rapport de la variation des énergies de liaison, il devrait être possible de vérifier cette hypothèse, par le calcul de l'effet spécifique de masse. Les données de la fig. 10 dues au travail de Heilig [20] sur les raies de résonance du strontium II permet d'effectuer cette vérification.

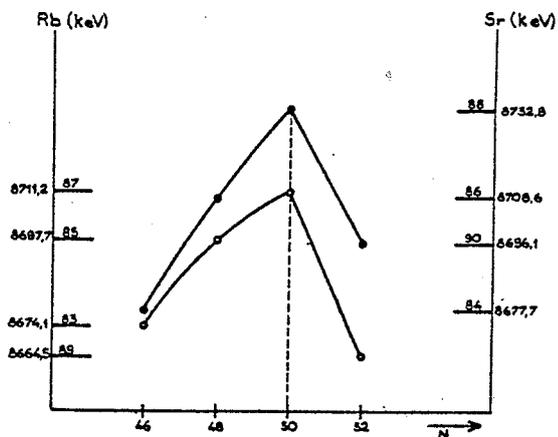


Fig. 9. Variations des énergies de liaison  $E$  par nucléon dans le cas des isotopes du rubidium et du strontium en fonction du nombre des neutrons ( $N$ ). On remarque la similitude des variations: le maximum des énergies de liaison correspond dans les deux cas au nombre magique  $N = 50$  (effet de fermeture de couche).

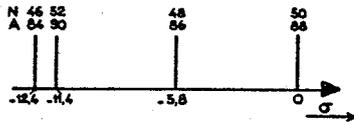


Fig. 10. Déplacement isotopique observé dans la raie d'émission du strontium D<sub>2</sub>, λ = 4077 Å (<sup>2</sup>S<sub>1/2</sub>-<sup>2</sup>P<sub>3/2</sub>) [20].

En effet on peut écrire:

$$\Delta\sigma_m(88-84) = \Delta\sigma_v(88-84) + (4/88.84)k = 12,4 \text{ mK},$$

$$\Delta\sigma_m(86-88) = \Delta\sigma_v(86-88) + (2/88.86)k = 5,8 \text{ mK}.$$

(1)

D'après notre hypothèse on a:

$$\rho_v = \frac{\Delta\sigma_v(88-84)}{\Delta\sigma_v(88-86)} = \frac{E_{88}-E_{84}}{E_{88}-E_{86}} = \frac{8732,7 - 8677,7}{8732,7 - 8706,7} = 2,28.$$

Compte tenu de l'incertitude sur les énergies de liaison E de l'ordre de ±0,1 keV on obtient ρ<sub>v</sub> = 2,28 ± 0,03.

La résolution du système (1) donne k = 13.500 mK d'où

$$\Delta\sigma_B(88-84) + \Delta\sigma_{sp}(88-84) = +7,24 \text{ mK},$$

or Δσ<sub>B</sub>(88-84) est égal à 7,2 mK pour la raie D<sub>2</sub>, il en résulte Δσ<sub>sp</sub> ≈ 0. Cette conclusion suppose que les valeurs mesurées [20] sont connues avec une incertitude inférieure à 0,1 mK. Il y a donc bon accord avec notre hypothèse et l'ordre de grandeur de l'effet spécifique de masse déduite des atomes muoniques (-0,1 mK). De plus, il y a bien inversion des rayons <r<sup>2</sup>> dans le cas du strontium [7] et les variations de <r<sup>2</sup>>, sont bien en sens inverse de celles des énergies de liaison.

Dans le cas du rubidium, les variations des énergies de liaison ont la même allure que dans le cas du strontium. Nous pouvons maintenant considérer 2 valeurs extrêmes de l'effet spécifique de masse dans la raie D<sub>2</sub>: l'une la valeur théorique calculée par Bauche égale à -1,6 mK (les valeurs théoriques sont en général trop grandes en valeur absolue), l'autre enfin Δσ<sub>sp</sub> ≈ 0 par comparaison avec le strontium. La fig. 11 donne les positions relatives des trois isotopes N-4 (A = 83 radioactif), N-2 et N(N=50) en fonction de l'effet spécifique de masse dans les deux

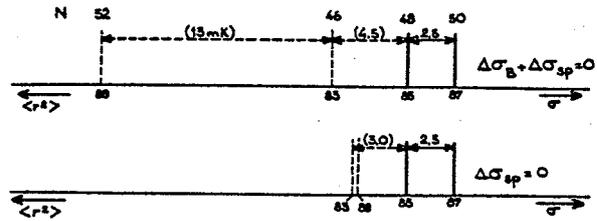
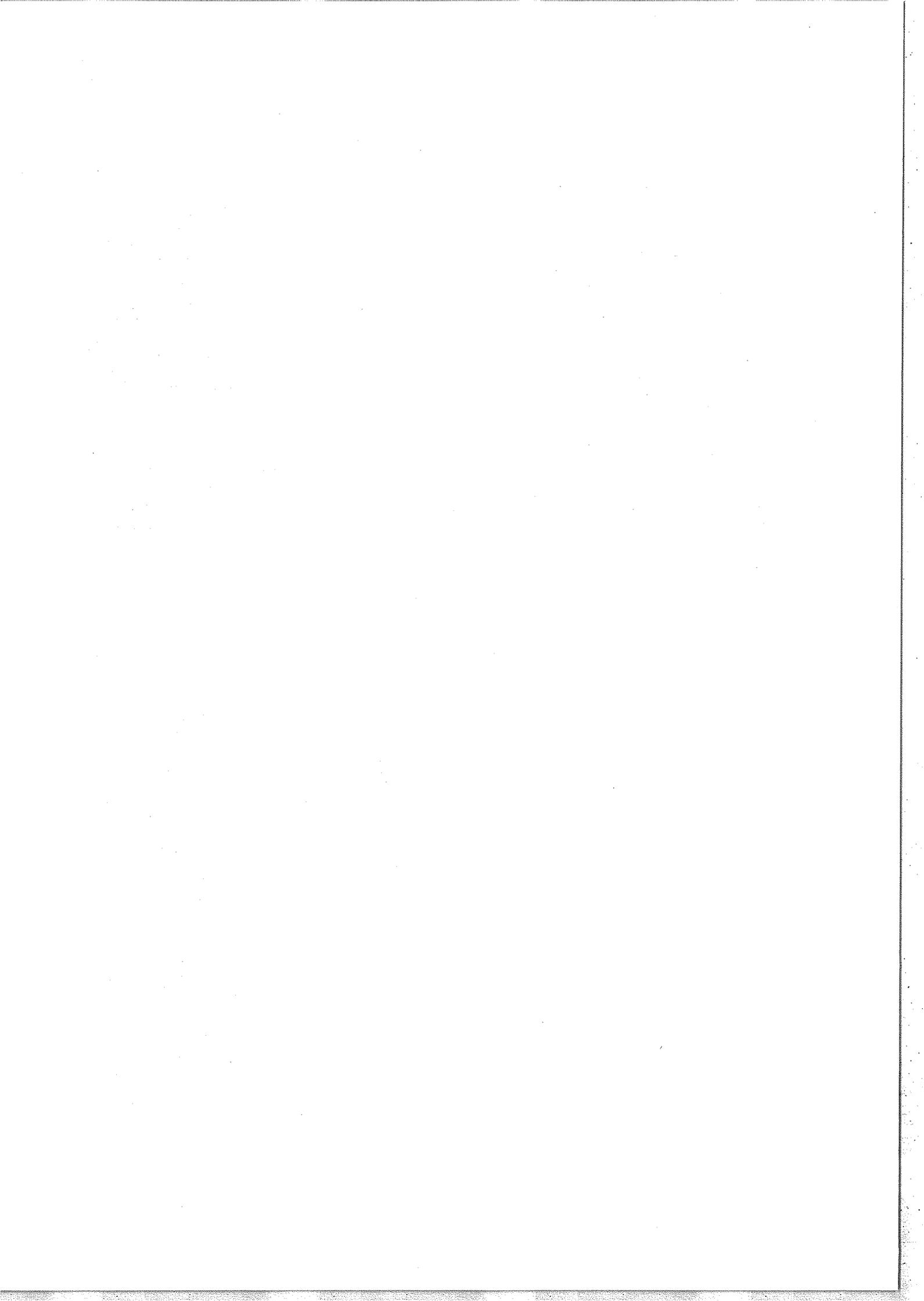


Fig. 11. Déplacements isotopiques dans la raie d'arc du rubidium D<sub>2</sub>, λ = 7800 Å (<sup>2</sup>S<sub>1/2</sub>-<sup>2</sup>P<sub>3/2</sub>). Positions prévues des isotopes radioactifs 83 et 89 dans les deux cas Δσ<sub>B</sub> + Δσ<sub>sp</sub> = 0 et Δσ<sub>sp</sub> = 0.

cas limites Δσ<sub>sp</sub> = 0 et Δσ<sub>sp</sub> + Δσ<sub>B</sub> = 0 (dans ce cas Δσ<sub>sp</sub> = -1,89 mK). La position de l'isotope 89 radioactif (N = 52) possédant deux neutrons en dehors de la couche complète est donnée à titre d'indication. Comme dans le cas du strontium, on devrait observer un "retournement" complet de la structure.

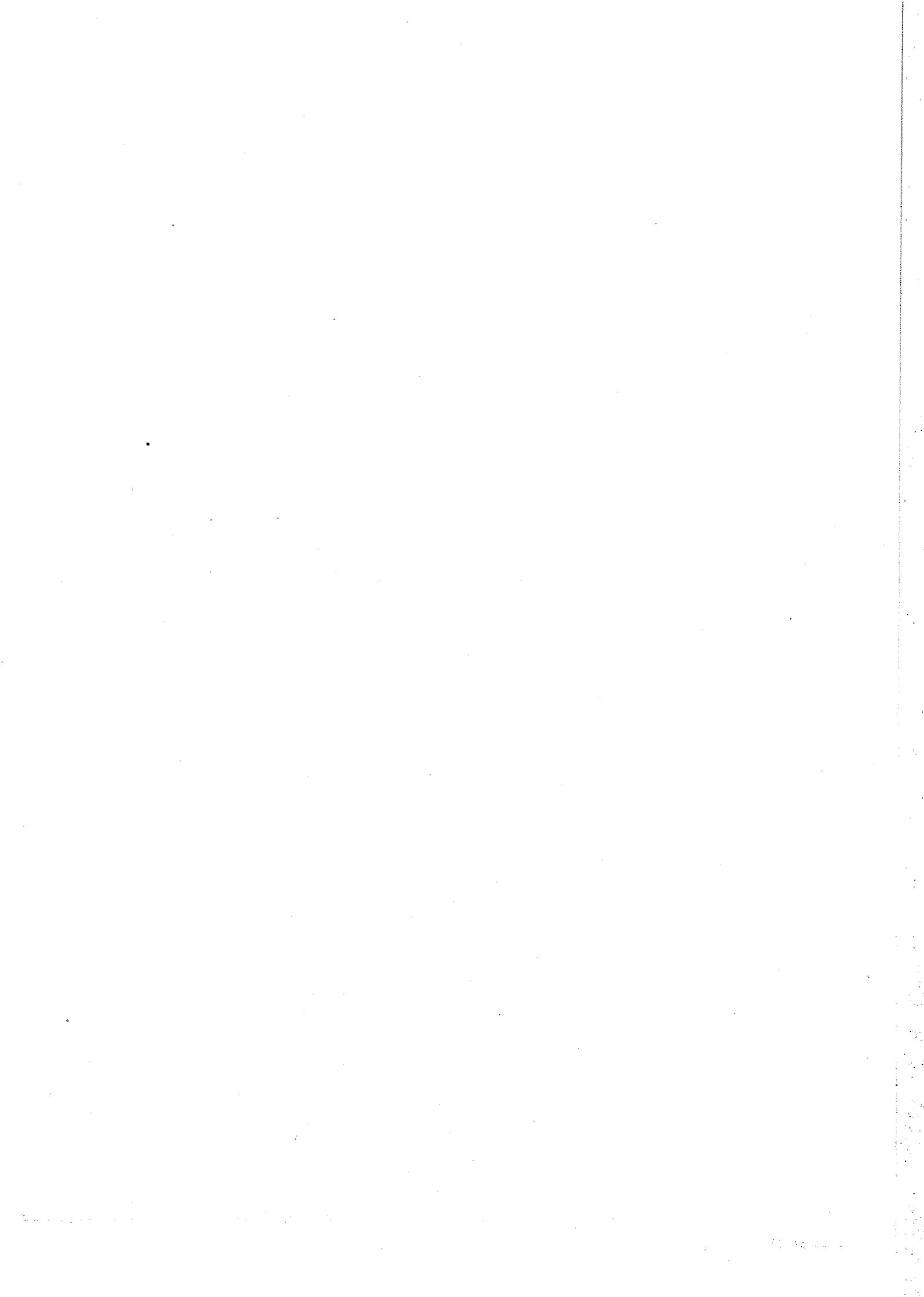
### References

- [1] H. Kopfermann et H. Krüger, Z. Physik 103 (1936) 485.
- [2] T. H. Duong, R. Marrus et J. Yellin, Phys. Letters 27B (1968) 565.
- [3] J. R. Beacham et K. L. Andrew, J. Opt. Soc. Am. 61 (1971) 231.
- [4] H. M. Gibbs et G. G. Churchill, Bull. Am. Phys. Soc. 27 avril (1972); J. Opt. Soc. Am. 62 (1972) 1130.
- [5] G. Breit, Rev. Mod. Phys. 30 (1958) 507.
- [6] S. Gerstenkorn, Compt. Rend. Acad. Sci. (Paris) 268B (1969) 1636.
- [7] R. D. Ehrlich, D. Fryberger, D. Jensen, C. Nissim-Sabat, R. J. Powers, V. L. Telegdi et C. K. Hargrove, Phys. Rev. Letters 18 (1967) 959.
- [8] R. J. Champeau et S. Gerstenkorn, Phys. Letters 26A (1968) 334.
- [9] P. Jacquinet et Ch. Dufour, J. Rech. CNRS 6 (1948).
- [10] R. Chabbal et P. Jacquinet, Rev. Opt. 40 (1961) 157.
- [11] P. Luc, Thèse, Orsay (1972).
- [12] H. T. Duong, S. Gerstenkorn et J. M. Helbert, Rev. Phys. Appl. 2 (1967) 249.
- [13] A. Nier, Phys. Rev. 79 (1950) 450.
- [14] B. Senitzky et I. I. Rabi, Phys. Rev. 103 (1956) 315.
- [15] S. Penselin, T. Moran, V. W. Cohen et G. Winkler, Phys. Rev. 127 (1962) 524.
- [16] H. Bucka, H. Kopfermann, M. Rasiwala et H. Schüssler, Z. Physik 176 (1963) 45.
- [17] R. Bruch, K. Heilig, D. Kaletta, A. Sfeudl et D. Wendlandt, J. Phys. (Paris) C 30 (1969) 51.
- [18] J. Bauche, Thèse, Orsay (1969).
- [19] A. H. Wapstra et N. B. Gove, Nuclear Data, Atomic Mass Table (1971).
- [20] K. Heilig, Z. Physik 161 (1961) 252.



ANNEXE III

---



# Etude des écarts isotopiques de la raie laser $\lambda = 4\,416 \text{ \AA}$ du Cd II

C. Brechignac

Laboratoire Aimé Cotton, C.N.R.S. II, Orsay, France

Received January 15, 1975; revised version April 21, 1975

## Abstract

Isotope shift in 4 416 Å cadmium laser. C. Brechignac (Laboratoire Aimé Cotton, C.N.R.S. II, Orsay, France).

Physica Scripta (Sweden) 12, 230-234, 1975.

The relative isotope shift  $\Delta(112-114)/\Delta(110-112)$  in the spectral line  $\lambda = 4\,416 \text{ \AA}$  ( $d^{10}p^2 P_{3/2} - d^9s^2 D_{5/2}$ ) have been measured using enriched isotopes in cadmium monomode laser. The emission profiles obtained scanning by photoelectric Fabry-Perot analyser have 4.5 mK half width. The gain compared with classical sources is of an order of magnitude both for the finesse and the ratio signal/noise. Experimental results are the following:

$$\Delta\nu(\text{Cd}_{110}) - \Delta\nu(\text{Cd}_{112}) = 53.4 \pm 0.4 \text{ mK}$$

$$\Delta\nu(\text{Cd}_{112}) - \Delta\nu(\text{Cd}_{114}) = 46.7 \pm 0.3 \text{ mK}$$

$$\Delta\nu(\text{Cd}_{110}) - \Delta\nu(\text{Cd}_{114}) = 100.2 \pm 0.5 \text{ mK}$$

Neglecting the mass shift which is presumed small

$$\delta\langle r^2 \rangle_{114-112} / \delta\langle r^2 \rangle_{112-110} = 0.87 \pm 0.02$$

this ratio value is in agreement with the variation of quantity

$$\delta(EA^{1/3})_{114-112} / \delta(EA^{1/3})_{112-110} = 0.832 \pm 0.009$$

where  $E$  is the binding energy per nucleon and from our results it is not possible to deduce sub-shells of neutrons effect for  $N=66$ .

## Résumé

Etude des écarts isotopiques de la raie laser  $\lambda = 4\,416 \text{ \AA}$  du Cd II. C. Brechignac (Laboratoire Aimé Cotton, C.N.R.S. II, Orsay, France).

Physica Scripta (Sweden) 12, 230-234, 1975.

Le déplacement isotopique relatif  $\Delta(112-114)/\Delta(110-112)$  de la raie  $\lambda = 4\,416 \text{ \AA}$  ( $d^{10}p^2 P_{3/2} - d^9s^2 D_{5/2}$ ) a été mesuré à l'aide d'une source laser monomode utilisant des isotopes de cadmium enrichi. On obtient ainsi des raies dont la largeur enregistrée, compte tenu de la fonction d'appareil du Fabry-Perot, est de 4,5 mK, ce qui permet de gagner par rapport aux sources classiques d'une part un ordre de grandeur en finesse, d'autre part un ordre de grandeur sur le rapport signal/bruit. Les résultats obtenus sont les suivants :

$$\Delta\nu(\text{Cd}_{110}) - \Delta\nu(\text{Cd}_{112}) = 53,4 \pm 0,4 \text{ mK}$$

$$\Delta\nu(\text{Cd}_{112}) - \Delta\nu(\text{Cd}_{114}) = 46,7 \pm 0,3 \text{ mK}$$

$$\Delta\nu(\text{Cd}_{110}) - \Delta\nu(\text{Cd}_{114}) = 100,2 \pm 0,6 \text{ mK}$$

ce qui conduit en négligeant le déplacement spécifique de masse

$$\delta\langle r^2 \rangle_{114-112} / \delta\langle r^2 \rangle_{112-110} = 0,87 \pm 0,02$$

Cette valeur se compare bien à la variation de la quantité

$$\delta(EA^{1/3})_{114-112} / \delta(EA^{1/3})_{112-110} = 0,832 \pm 0,009$$

où  $E$  est l'énergie de liaison par nucléon et ne permet pas de mettre en évidence un effet de sous couche pour  $N=66$ .

## 1. Introduction

La transition  $\lambda = 4\,416 \text{ \AA}$  de Cd II ( $4d^9 5s^2 D_{5/2} - 4d^{10} 5p^2 P_{3/2}$ ) correspond à un double saut d'électron  $s$  et présente donc un déplacement isotopique de volume important. Les mesures des écarts pour les différents isotopes permettent de suivre l'évolution

de la variation du carré moyen de la distribution de charge  $\delta\langle r^2 \rangle$  en fonction de la masse atomique  $A$  [1].

L'étude des écarts (110-112), (112-114) et (114-116) présente un grand intérêt pour discuter de l'influence éventuelle, sur le déplacement isotopique, de la fermeture d'une sous-couche complète en neutrons  $N=6$  (qui correspond à  $A=114$ ).

Parmi les mesures antérieures [2-3-4-5-6-7], surtout en ce qui concerne l'écart (112-114), certaines mesures [2-3-6] ne sont pas assez précises pour mettre en évidence cet effet de sous-couche; d'autres, plus précises [5-7], sont en désaccord entre elles (Tableau II). Nous avons repris cette mesure ainsi que celle de l'écart (110-112). Pour cela, nous avons utilisé comme source un laser au lieu d'une source classique (cathode creuse par exemple) ce qui permet d'obtenir des enregistrements à l'aide d'un spectromètre Fabry-Perot photoélectrique avec un excellent rapport signal/bruit. De plus, les deux isotopes à comparer, enrichis à plus de 96%, sont introduits dans deux tubes séparés placés dans la même cavité optique, ce qui diminue considérablement les erreurs, dues à l'alignement, de deux sources géométriquement indépendantes [8].

Afin d'enregistrer simultanément les spectres d'émission laser provenant de chacun des deux milieux, nous avons, dans un premier temps, utilisé un dispositif électronique pour séparer dans le temps les signaux émis par chacun d'entre eux.

Cette façon de procéder nous a fourni des valeurs très différentes du déplacement isotopique attendu et qui, de plus, varient suivant les conditions expérimentales. L'explication de ce phénomène nous a été fourni par une étude préliminaire décrite ci-après : lorsque deux raies de fréquences voisines oscillent dans la même cavité laser, les fréquences d'émission laser peuvent se rapprocher de façon importante. Nous avons observé un rapprochement pouvant atteindre le tiers de l'écart entre les deux transitions. Ceci peut être attribué à l'effet de superposition partielle des courbes de gain des deux milieux présents dans la cavité.

La mesure du déplacement isotopique n'a été possible qu'en excitant successivement chacun des milieux pendant le balayage en fréquence du Fabry-Perot.

## 2. Dispositif expérimental

Le montage expérimental est schématisé sur la figure 1. Un laser He-Cd de type classique [9] comprend deux tubes identiques, en pyrex, ayant une longueur de 1,10 m pour une longueur de décharge de 0,90 m et un diamètre intérieur de 2,5 mm, alignés dans la même cavité. Ils contiennent chacun un isotope différent de cadmium métallique dont le degré de pureté est supérieur à 96%.

La cavité laser pratiquement confocale est constituée de deux miroirs sphériques de rayon de courbure  $R = 2,50 \text{ m}$  et de pouvoir



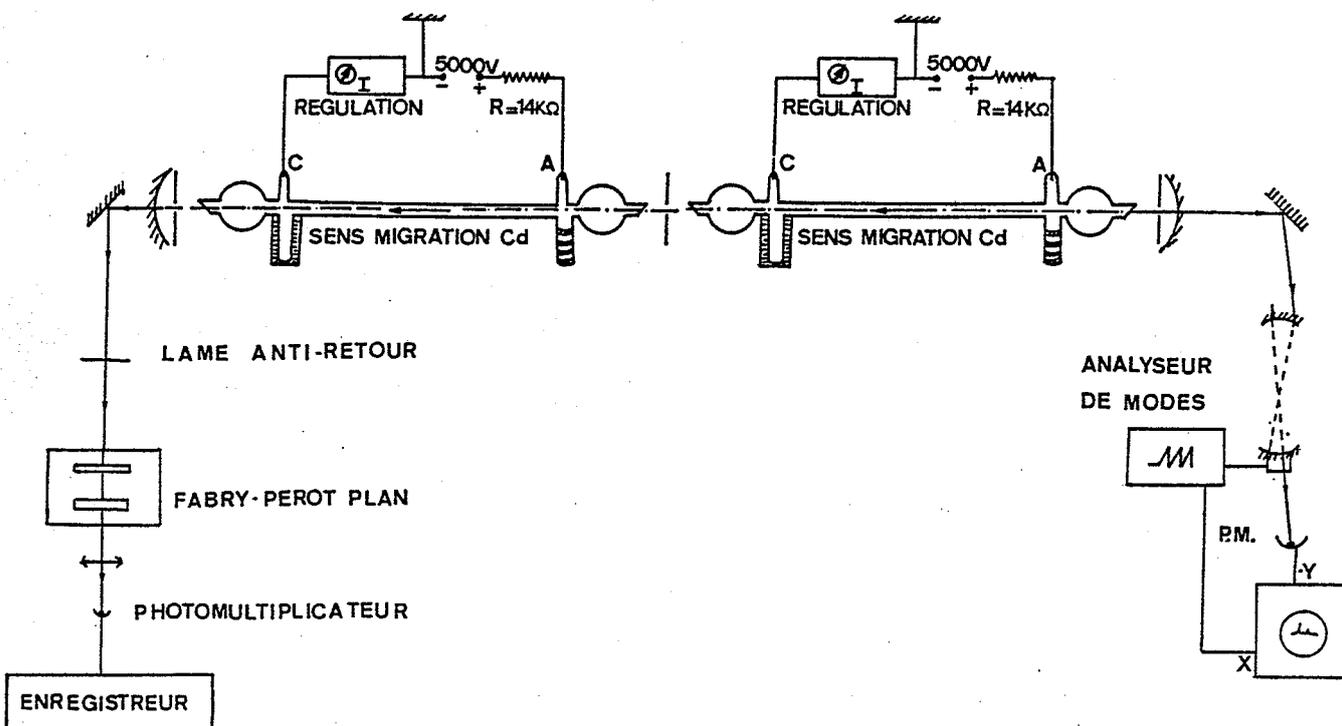


Fig. 1. Schéma général du montage.

réflecteur 98% pour  $\lambda = 4\,416 \text{ \AA}$ . Dans ces conditions l'écart entre deux modes longitudinaux successifs est de 2,2 mK. Cette valeur est faible par rapport à la largeur Doppler qui est de 34,5 mK à notre température de travail, soit 230°C (température qui fournit une pression partielle de cadmium d'environ  $10^{-2}$  torr nécessaire pour les conditions optimales de fonctionnement du laser). Un grand nombre de modes longitudinaux et transversaux seraient alors susceptibles (sans précautions particulières) d'osciller simultanément dans le profil Doppler de la raie.

L'énergie lumineuse transmise par les miroirs est envoyée d'une part dans un spectromètre Fabry-Perot plan photoélectrique à balayage pneumatique muni d'une fuite linéaire [10], d'autre part dans un analyseur de modes dont les miroirs ont un rayon de courbure  $R = 40 \text{ cm}$ . Sa cavité est réglée en  $1/4e$  ce qui correspond à un intervalle spectral libre de 6,25 mK : ainsi les faisceaux incidents et émergents ont des directions différentes, ce qui permet d'éviter les retours d'énergie dans le laser. L'analyse des modes nous a montré qu'en l'absence de diaphragme dans la cavité laser, il existe seulement quelques modes (un à quatre) qui oscillent simultanément. La compétition qui existe entre ces modes donne après enregistrement au spectromètre Fabry-Perot des profils très dyssymétriques. Nous avons dû placer dans la cavité laser des diaphragmes qui ont pour objet de réduire l'étendue du faisceau ou d'augmenter les pertes. Ainsi nous ne conservons qu'un seul mode longitudinal et éliminons au maximum les modes transversaux. Les instabilités thermiques et mécaniques du support front varient la longueur de la cavité dont l'effet principal est un déplacement de la fréquence du mode. Pour que ce déplacement aléatoire ne nous gêne pas, un des miroirs de la cavité monté sur céramique piézo-électrique se déplace en dent de scie à la fréquence de 100 Hertz. Ainsi le mode « balaye » rapidement un petit intervalle spectral centré sur le sommet de la courbe de gain du laser. Celle-ci étant très aplatie au voisinage du maximum, l'enveloppe décrite par le mode est, aux fluctuations d'intensité près, une « fonction rectangle », ici de 3,4 mK de large (figure 2). Le temps mis pour balayer un intervalle spectral libre du Fabry-Perot photoélectrique est suffisamment grand pour que la céramique ait subi un grand nombre d'oscillations. L'enregistrement final peut en première approximation être considéré comme le produit de convolution de la « fonction rectangle » avec la fonction d'appareil du spectromètre Fabry-Perot. Les profils obtenus sont alors symétriques et ont en moyenne 4,5 mK de largeur à mi-hauteur. Afin d'éviter les couplages entre la cavité laser et le Fabry-Perot plan, nous avons intercalé entre eux un dispositif optique anti-retour constitué d'un polariseur et d'une lame quart-d'onde dont les axes optiques sont à 45° de ceux du

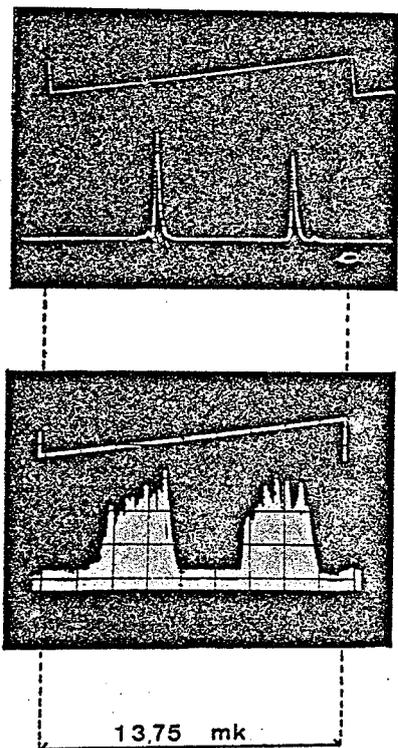


Fig. 2. Trace supérieure : dent de scie appliquée à la céramique de l'analyseur de modes réglé en  $1/4e$ . Trace inférieure : a) laser monomode; les miroirs de la cavité sont fixes; b) laser monomode; un des miroirs de la cavité se déplace en dent de scie à la fréquence 100 Hz.

Tableau I. *Ecart observés lorsque les mileux A et B sont excités simultanément*

Tube A	Tube B	Ecart observe	Deplacement isotopique
Cd 110	Cd 112	40 mK	$53,4 \pm 0,4$ mK
Cd 112	Cd 114	31,6 mK	$46,7 \pm 0,3$ mK
Cd 110	Cd 114	$99,2 \pm 0,5$ mK	$100,2 \pm 0,5$ mK

polariseur. Ce dernier est orienté parallèlement à la direction de polarisation du faisceau laser.

### 3. Mesures

3.1. Afin d'enregistrer simultanément les spectres d'émission laser provenant des mileux A et B, nous avons modulé l'excitation de ceux-ci en opposition de phase et réalisé la séparation des signaux émis par chacun d'eux grâce à une détection à portes synchrones de la modulation.

Un générateur de signaux rectangulaires permet de moduler en crénaux l'intensité du courant de décharge entre deux limites fixées à l'avance,  $I_{\max}$  et  $I_{\min}$ . La valeur moyenne de cette intensité doit être suffisante pour maintenir le mileu à la température optimale (nous avons choisi  $I = 80$  mA). L'émission laser n'a lieu que si l'intensité du courant est inférieure à 140 mA, ce qui impose une borne supérieure pour le taux de modulation  $\tau = (I_{\max} - I_{\min}) / (I_{\max} + I_{\min})$  de 75%. Nous n'avons donc pas pu utiliser une modulation à 100% qui soit symétrique en courant par rapport à  $I = 80$  mA. Le même générateur commande la détection électronique à portes qui permet de séparer temporellement les émissions des tubes A et B. Un retard à l'ouverture de la porte permet d'éliminer les effets transitoires.

On observe ainsi l'émission du tube A (contenant l'isotope A = 112) et celle du tube B (contenant l'isotope A = 114) sur deux voies séparées. La mesure des écarts entre les centres des profils enregistrés émis par les tubes A et B pour différentes valeurs du taux de modulation, nous a montré que ces écarts augmentent continûment de 33 mK à 42 mK lorsque le taux de modulation varie de 35% à 75%. Le plus grand écart mesuré reste encore assez éloigné du déplacement isotopique  $\approx 47$  mK [2-3-4-5-6-7].

Dans le but de rechercher l'origine des effets de rapprochement

observés, nous nous sommes placés dans le cas où l'écart entre les fréquences émises par les deux mileux est minimum. Ceci correspond à une excitation simultanée des tubes. La détection du signal du Fabry-Perot photoélectrique ne comporte alors qu'une seule voie. L'écart entre les centres des profils enregistrés est relativement peu sensible à la valeur commune de l'intensité du courant. Les résultats obtenus pour les différentes combinaisons des trois isotopes sont donnés sur le tableau I.

L'origine de cet effet réside probablement dans la superposition partielle des courbes de gain des deux mileux présents dans la cavité. En effet, un rapprochement n'a été observé que lorsque la limite inférieure  $I_{\min}$  de l'intensité du courant d'excitation de l'un des tubes garde une valeur non nulle. On peut donc penser que le mileu parcouru par ce courant  $I_{\min}$  reste amplificateur. Les pertes dans la cavité étant fixes, l'excitation est insuffisante pour donner lieu à une oscillation laser, mais modifie néanmoins la forme de la courbe de gain.

Lorsque les deux tubes sont excités simultanément avec la même intensité  $I = 80$  mA, la courbe de gain totale du laser présente deux maximums qui coïncident avec les centres des profils enregistrés. Un réglage fin sur le chauffage du cadmium permet d'obtenir deux profils symétriques de même largeur et de même intensité dont on mesure l'écart.

Une reconstitution simplifiée de la courbe de gain totale a été faite a priori en admettant pour la transition une largeur inhomogène de 34,5 mK et une largeur homogène  $\Gamma$  que nous avons déterminée en faisant coïncider cette reconstitution avec les résultats expérimentaux. La valeur commune obtenue pour les trois couples d'isotopes ( $\Gamma/2 = 16$  mK) est très supérieure à la largeur naturelle de la raie (2,4 mK) [11]. Cette différence ne peut être interprétée par l'effet des collisions électroniques [12] et des collisions He-Cd [13] qui conduirait à une largeur  $\gamma \approx 5$  mK.

Les effets de saturation permettent d'expliquer partiellement l'écart  $\Gamma$  et  $\gamma$ . En désignant par  $I$  le paramètre de saturation, nous avons  $\Gamma = \frac{1}{2}\gamma[1 + \sqrt{1 + I}]$  [14]. A partir de la mesure de la puissance extraite du laser et du coefficient de réflexion des miroirs, nous avons pu évaluer le paramètre de saturation  $I \approx 40$ , ce qui fournit :  $\Gamma/2 \approx 9,3$  mK.

L'emprisonnement de la radiation de résonance 2144 Å ( $5p^2P_{3/2} - 3S$ ) permettrait d'expliquer en partie, cet écart. Son effet global étant d'aplanir le sommet de la courbe de gain du laser, l'influence des « ailes » de cette courbe a dû être sous-estimée dans le calcul précédent.

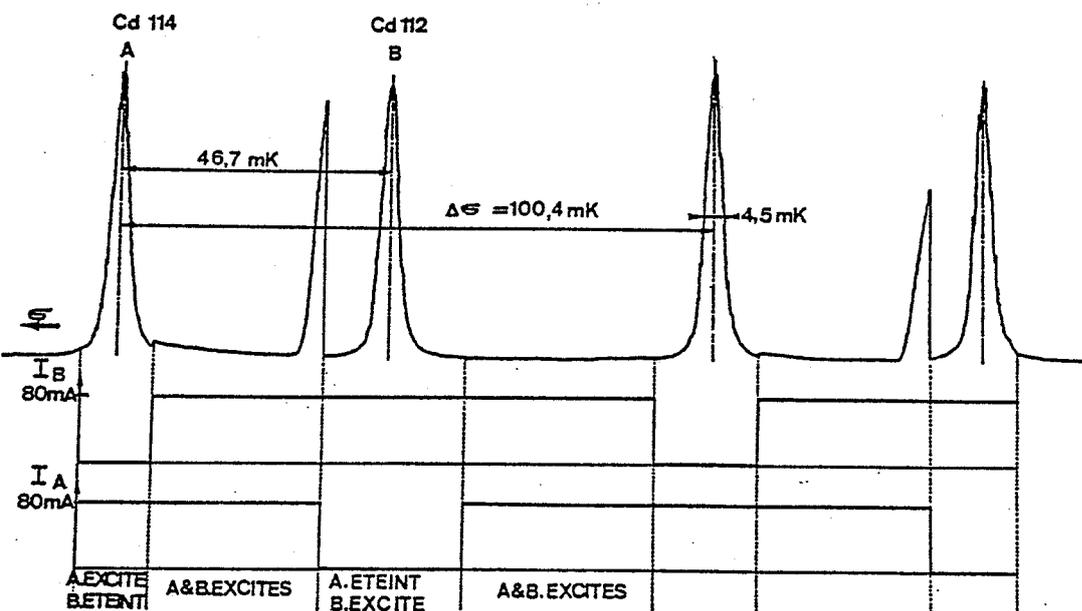


Fig. 3. Enregistrement au spectromètre Fabry-Perot photoélectrique : déplacement isotopique Cd<sub>112</sub>-Cd<sub>114</sub>. On remarque sur l'enregistrement l'effet de l'interaction des deux mileux A et B lorsqu'ils sont excités ensemble.

Tableau II. Déplacements isotopiques de la transition  $4416 \text{ \AA}$  Cd II

	A N Cadmium $Z=48$	106-108 58-60 (mK)	108-110 60-62 (mK)	110-112 62-64 (mK)	112-114 64-66 (mK)	114-116 66-68 (mK)
Effet de Bohr Woodward &		2,154	2,07 <sub>6</sub>	2,00 <sub>2</sub>	1,93 <sub>1</sub>	1,86 <sub>5</sub>
Speck		61 ± 3	51,2 ± 1,5	53,1 ± 1,5	47 ± 3	36 ± 4,5
Cloud		61,1	52,1	53,5	44,9	35,6
Blaise		63,5 ± 3	53,5 ± 2	53,0 ± 1	43,1 ± 2	36,2 ± 3
Kuhn & Ramsden		56,1 ± 0,5	52,4 ± 0,5	52,3 ± 0,4	48,8 ± 0,6	34,7 ± 0,8
Hopkins & Fowles					47,2 ± 1,2	34,6 ± 1,2
Helbert & Lecordier				53,9 ± 0,5	47,0 ± 0,5	35,4 ± 0,5
Ce travail				53,4 ± 0,4	46,7 ± 0,3	
				$\Delta(110-114) = 100,2 \pm 0,5$		

3.2. Le mode d'excitation décrit précédemment ne nous permettant pas de mesurer avec précision le déplacement isotopique, nous avons dû procéder différemment.

Pendant le balayage en fréquence du Fabry-Perot, les deux tubes amplificateurs sont excités simultanément avec un courant constant  $I=80 \text{ mA}$ . Lorsque la bande passante du Fabry-Perot s'approche de la fréquence d'émission d'un des tubes, on coupe l'excitation de l'autre et réciproquement (figure 3.). La durée d'analyse de chaque profil étant très inférieure au temps entre deux ordres successifs du Fabry-Perot (environ 10 fois), la température reste pratiquement constante et le régime transitoire provoqué par l'allumage et l'extinction des tubes est terminé lors de l'intervalle spectral libre suivant. Pendant l'analyse de chacun des profils de tube correspondant fonctionne comme s'il était seul dans la cavité laser. Nous avons utilisé pour le Fabry-Perot deux épaisseurs optiques différentes correspondant aux intervalles entre-ordres de 100,4 mK et 165,9 mK, suivant le déplacement isotopique à mesurer. Les résultats obtenus sont donnés dans le tableau II ainsi que les résultats des mesures antérieures.

Nous nous sommes affranchis des erreurs systématiques qu'entraîneraient d'une part les effets de pression [13], d'autre part le déplacement Doppler dû à la vitesse de migration des ions Cd<sup>+</sup> (les deux tubes contiennent de l'hélium à la même pression et leurs électrodes sont montées dans le même sens).

La précision des mesures est liée d'une part à la stabilité du Fabry-Perot au cours des différents ordres, d'autre part à la position des tubes à l'intérieur de la cavité laser. En effet, les axes des tubes ne sont pas exactement confondus ni entre eux, ni avec l'axe de la cavité ce qui entraîne une légère dyssymétrie dans le montage. Les angles d'incidence sur le Fabry-Perot de la lumière émise par les deux milieux ne sont pas rigoureusement identiques. Il en résulte des déplacements instrumentaux du même genre que ceux que l'on observe avec des sources classiques [8], mais beaucoup plus faibles dans notre cas. Le réglage pour obtenir l'effet laser est critique quant à la position des tubes dans la cavité, et les diaphragmes placés à l'intérieur de celle-ci permettent d'obtenir un meilleur alignement. Ce procédé nous permet de dissocier les émissions des tubes A et B, de garder l'avantage d'une cavité unique et de rapporter les écarts isotopiques au même entre-ordre du Fabry-Perot.

#### 4. Discussion

Comme le montre le tableau II, la mesure de l'écart  $\Delta(110-114)$  nous a permis de confirmer les valeurs obtenues pour les écarts  $\Delta(110-112)$  et  $\Delta(112-114)$ . La transition  $\lambda = 4426 \text{ \AA}$  du Cd II est due à un double saut d'électrons  $s(4d^9 5s^2 \ ^2D_{3/2} - 4d^{10} 5p \ ^2P_{3/2})$ ;

 Tableau III. Déplacements isotopiques relatifs de la transition  $4416 \text{ \AA}$  Cd II

	$\frac{106-018}{110-112}$	$\frac{108-110}{110-112}$	$\frac{110-112}{110-112}$	$\frac{112-114}{110-112}$	$\frac{114-116}{110-112}$
Woodward & Speck	1,15 ± 0,1	0,96 ± 0,06	1	0,88 ± 0,09	0,67 ± 0,11
Cloud	1,14	0,97	1	0,83 <sub>5</sub>	0,67
Blaise	1,15 ± 0,08	1,01 ± 0,06	1	0,89 ± 0,06	0,67 ± 0,07
Kuhn & Ramsden	1,11 ± 0,02	1,00 ± 0,02	1	0,93 ± 0,02	0,65 ± 0,02
Helbert & Lecordier			1	0,87 ± 0,02	0,64 <sub>5</sub> ± 0,02
Ce travail			1	0,87 ± 0,02	
$EA^{1/3}$	1,41 <sub>5</sub> ± 0,01	1,19 ± 0,01	1	0,832 ± 0,009	0,684 ± 0,009
$[A^{1/3}(1 + \beta^2/5)]^2$	1,09	0,83	1	1,05	1,06

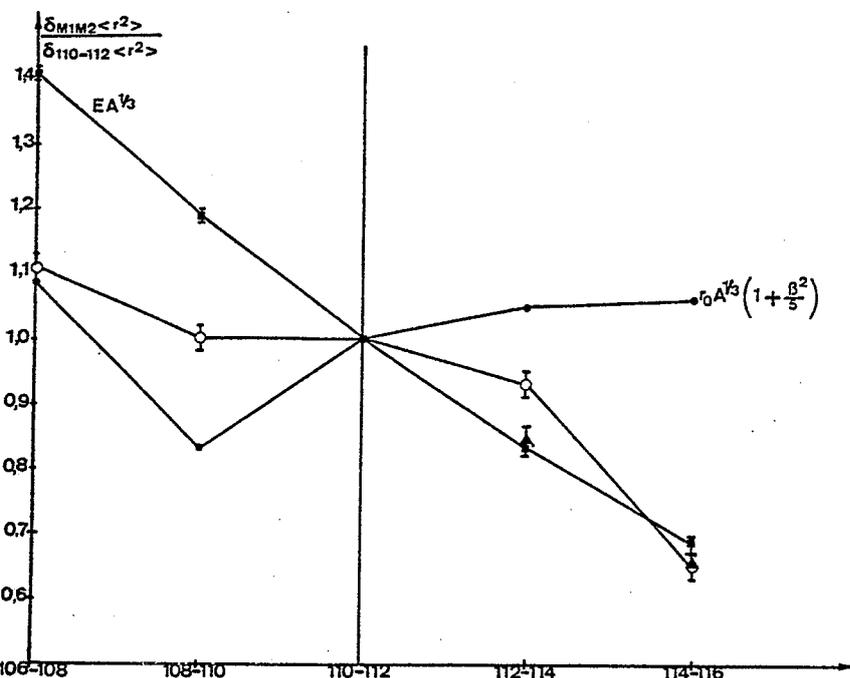


Fig. 4. Evolution des écarts relatifs  $\delta_{M_1 M_2} \langle r^2 \rangle / \delta_{110-112} \langle r^2 \rangle$  en fonction des écarts  $M_1 M_2$ . ■,  $EA^{1/3}$ ; ●,  $r_0 A^{1/3} (1 + \beta^2/5)$ ; ○, valeurs expérimentales de Kuhn and Ramsden; ▲, valeurs expérimentales Helbert-Lecordier et les nôtres.

c'est pourquoi il est raisonnable d'attribuer la majeure partie du déplacement isotopique observé diminué de l'effet de Bohr à l'effet de volume et de négliger en première approximation l'effet spécifique de masse [15].

Dans ces conditions les déplacements isotopiques relatifs sont proportionnels aux variations du carré moyen de la distribution de charges  $\delta\langle r^2 \rangle$  [1]. Il est donc possible de suivre l'évolution des valeurs  $\delta_{M_1 M_2} \langle r^2 \rangle$  comme référence. Dans notre cas, nous avons rapporté ces intervalles aux couples d'isotopes 110-112 (tableau III).

Les variations observées sont monotones décroissantes, comme le montre la figure 4 et l'on n'observe pas, dans le cas du cadmium, de variation brusque ou « saut » permettant de mettre en évidence avec certitude l'existence d'un effet de sous-couche fermée en neutrons pour  $N=66$  [5]. Nous rejoignons ainsi la conclusion de Kelly et Tomchuk [16] qui ont étudié la transition  $\lambda = 3\ 261\ \text{\AA}$ .

Ces variations ne peuvent pas être interprétées à l'aide des coefficients de déformation. En effet, les coefficients de déformation  $\beta$  des divers isotopes du cadmium augmentent à partir de l'isotope  $A=110$  avec la masse de ces isotopes [17]. On s'attendrait alors d'après la théorie classique de Brix et Kopferman à une évolution en sens inverse de celle observée pour les écarts (112-114) et (114-116) (figure 4). Par contre, la décroissance monotone des valeurs de  $\delta\langle r^2 \rangle$  en fonction de  $A$  à partir de  $A=110$  (vallée de stabilité) est en accord avec les variations des énergies de liaison par nucléon en fonction de la masse [18] :  $E$  diminue lorsque le volume augmente. Un accord meilleur encore est obtenu avec les variations de la quantité  $EA^{1/3}$  au-delà de la vallée de stabilité vers les grands nombres de neutrons [19]. Dans le cas du cadmium, cet accord était en défaut [5] pour l'intervalle (112-114)/(110-112). Nos mesures, effectuées à l'aide de sources laser, confirment donc la validité des mesures récentes [7] effectuées à l'aide de sources classiques et permettent de connaître les variations de  $\delta\langle r^2 \rangle$  avec une grande précision.

### Remerciements

Je voudrais remercier spécialement D. Merle dont l'efficace collaboration sur le plan expérimental a permis de mener à bien ce travail.

### Références

1. Brix, P. et Kopfermann, H., Rev. Mod. Phys. 30, 517 (1958).
2. Wodward, E. C. and Speck, D. R., Phys. Rev. 96, 529 (1954).
3. Blaise, J., Z. Physik 141, 87 (1955).
4. Cloud, W. H., Phys. Rev. Abstract 99, 623 (1955).
5. Kuhn, H. G. and Ramsden, S. A., Proc. Roy. Soc. A237, 485 (1956).
6. Hopkins, B. D. and Fowles, G. R., IEEE J. Quant. Elec. 1013 (1968).
7. Gerstenkorn, S., Helbert, J. H. and Lecordier, R., Phys. Letters. 40A, 229 (1972).
8. Champeau, R.-J., Thèse, Orsay (1969); Helbert, J. H., Thèse, Orsay (1969).
9. Silfast, W. I., Appl. Phys. Letters 5, 169 (1968).
10. Luc, P., Thèse, Orsay (1972).
11. Hodges, D. T., Appl. Phys. Letters. 17, 11 (1970).
12. Dienes, A. and Sosnowki, T. P., Appl. Phys. Letters 16, 519 (1970).
13. Klein, M. B. and Maydan, D., Appl. Phys. Letters 16, 509 (1970).
14. Baklanov, E. V. and Chebotaev, V. P., Soviet Phys. JETP 33 n° 2, 300 (1971).
15. Bauche, J., Thèse, Orsay (1969).
16. Kelly, F. M. and Tomchuk, E., Proc. Phys. Soc. LXXIV, 689 (1959).
17. Nuclear Data, A1 (1965).
18. Nuclear Data, Tables, A9 (1971).
19. Gerstenkorn, S., C. R. Acad. Sc. Paris 268, Série B, 1636 (1969).

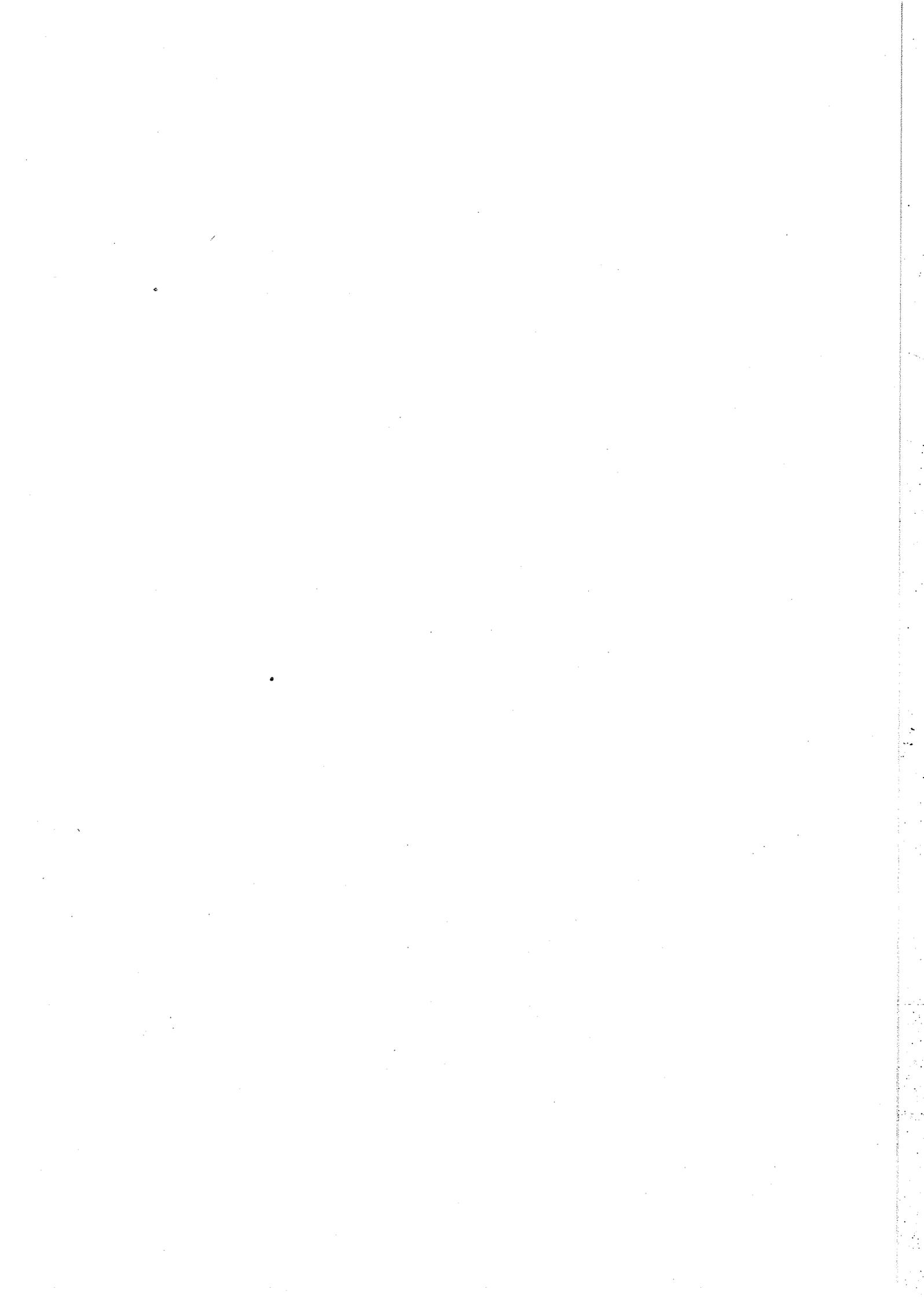
Laboratoire Aimé Cotton

C. N. R. S. II

Bât 505

F-91405 Orsay, France

ANNEXE IV



## Isotope-shift measurements in even stable isotopes of krypton (78, 80, 82, 84, 86) by means of laser techniques

C Bréchnignac and S Gerstenkorn

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, Bâtiment 505, 91405 Orsay, France

Received 21 June 1976, in final form 15 September 1976

**Abstract.** We have measured the isotope shift between  $^{86}\text{Kr}$  and  $^{84}\text{Kr}$  for six infrared laser lines. For the line at  $\lambda = 3.066\ \mu\text{m}$   $4p^56p \rightarrow 4p^56s$  we have measured the shifts 86-84, 84-82, 82-80 and 80-78; for this line there is evidence of a volume effect.

### 1. Introduction

It is well known that for isotopes having nuclei near a neutron closed shell, isotope shifts on atomic lines are irregular (Gerstenkorn 1969). Isotope shifts observed on atomic lines are due, on one hand, to mass variations and, on the other, to variations of  $\langle r^2 \rangle$  ( $\langle r^2 \rangle$  is the mean square radius of charge distribution). The observed irregularities are then related to irregular variations of  $\delta\langle r^2 \rangle$ . These irregularities cannot be interpreted by means of the classical theory of Brix and Kopferman (Kopferman 1960), in spite of the fact that variations of nuclear deformation are taken into account in this theory. This is especially true for strontium ( $Z = 38$ ,  $N = 50$ ) (Ehrlich *et al* 1967, Bruch *et al* 1969) and rubidium ( $Z = 37$ ,  $N = 50$ ) (Bréchnignac *et al* 1976) since the corresponding isotope shifts show that the variations of  $\langle r^2 \rangle$  are opposite to the variations of the nuclear mass  $A$ . For krypton ( $Z = 36$ ,  $N = 50$ ) the measurements of isotope shifts which have been published up to now are either partial (measurements performed with two separated isotopes only (V Kaufman 1967, unpublished)) or too imprecise (measurements performed with natural krypton (Rasmussen and Middelboe 1955)) to demonstrate the existence of a volume effect. This situation is due in particular to the smallness of isotope shifts in krypton (from 0 to 5 mK), typically an order of magnitude smaller than the Doppler width (at room temperature) of the lines. Therefore we have undertaken a series of measurements using a laser method (Brochard and Vetter 1966, Vetter 1970). The study concerns six even stable pure isotopes. Isotope shifts have been measured in laser transitions of krypton in the near infrared; in this spectral region, the Doppler broadening is small. The purpose of this work is to show the existence of a volume effect related to  $\langle r^2 \rangle$  variations and, moreover, to give evidence for possible anomalies of isotopes shifts in the vicinity of a neutron closed shell.

## 2. Principle of the experiment

The principle of the experiment has already been published (Vetter 1970). The basic idea is to record directly the light emitted by a single-mode laser oscillating on a transition of the element under study when the laser cavity is made tunable; under these conditions the laser operates both as a source and as a spectrometer. The profile of the laser output is recorded as a function of the length of the cavity and one then obtains a gain profile centred on the Doppler profile of the transition. In order to measure isotope shifts smaller than the Doppler width, the two isotopes are placed in two discharge tubes positioned along the axis of the cavity and they are excited alternately during the frequency scanning. If the time to scan the free spectral range of the cavity is large compared to the time of the excitation of the discharge tubes, one records two distinct profiles. The frequency difference between the centres of the two lines can be measured by comparison with the free spectral range of the cavity, i.e. the interval between two following TEM<sub>00</sub> orders of the cavity (figure 1). Under these conditions, it is possible to measure shifts which can be either much smaller or much larger than the Doppler width. To determine the magnitude and the sign of these shifts unambiguously one uses different lengths of laser cavity (the experimental set-up is shown in figure 2).

As the first step we have studied the conditions of excitation of Kr laser lines with discharge tubes which are typically 400 mm long and have 2.5 mm inside diameter. Between 1.4  $\mu\text{m}$  and 5  $\mu\text{m}$  14 lines were observed. The corresponding transitions are shown in figure 3. The identification was made by using a grating spectrometer allowing a relative accuracy of  $10^{-4}$ . Except for the transition  $6p[{}^3_2]_1 \rightarrow 6s[{}^3_2]_2$  all the lines were excited in pure krypton (pressure  $2 \times 10^{-2}$  Torr, current 2 and 10 mA);  $p \rightarrow d$  transitions were also obtained in a mixture of Kr and He (typical pressure ratio  $p_{\text{He}}/p_{\text{Kr}} = 5$ ). The laser lines at  $\lambda = 1.44268 \mu\text{m}$  and  $\lambda = 1.47655 \mu\text{m}$  which have already been observed (Andrade *et al* 1967) were first classified as transitions sharing the  $6s[{}^3_2]_1$  level. In fact a theoretical parametric study of low excited levels (J Bauche and M Coulombe, private communication) shows that there is a possibility of wrong identification between  $6s[{}^3_2]_1$  and  $4d[{}^3_2]_1$ ; this

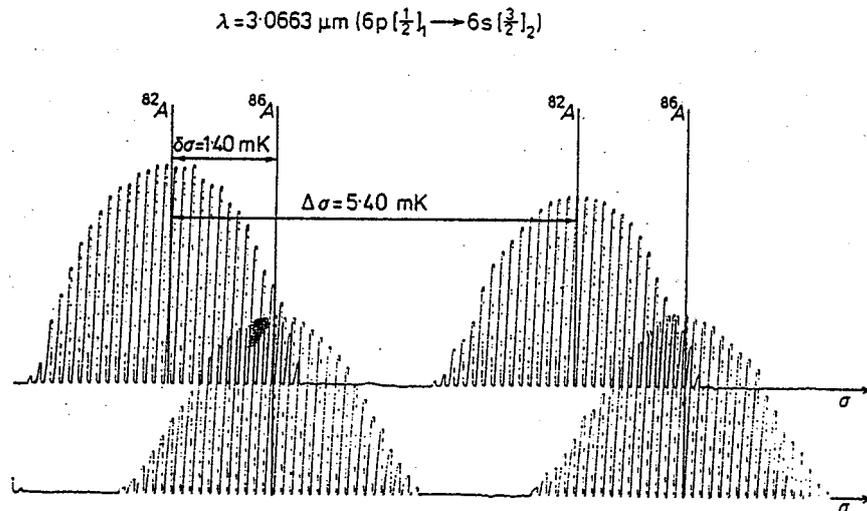


Figure 1. Recorded profiles for the two isotopes  $A = 82$  and  $A = 84$  of krypton.  $\Delta\sigma$ , free spectral range of the laser cavity;  $\delta\sigma$ , isotope shift.

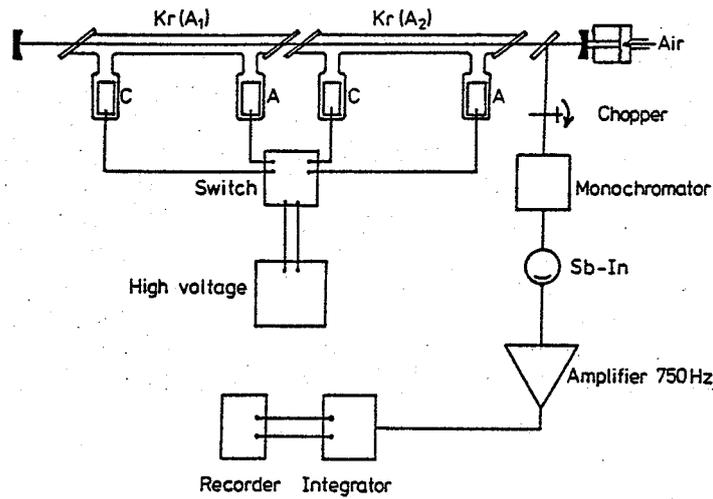


Figure 2. Scheme of the experimental set-up.

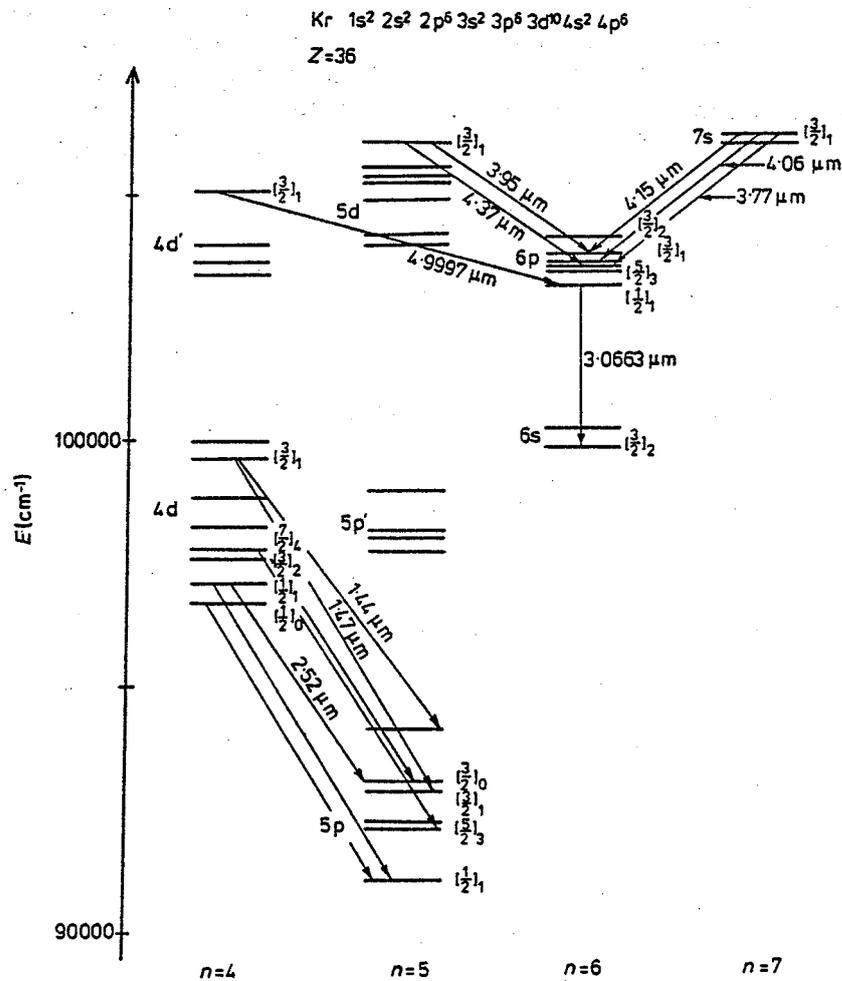


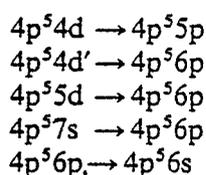
Figure 3. Energy level diagram of krypton. Each observed laser transition is numbered with the corresponding wavelength.

is confirmed by the fact that these lines oscillate under the same conditions as the other  $4d \rightarrow 5p$  transitions.

The transition  $6p[\frac{3}{2}]_1 \rightarrow 6s[\frac{3}{2}]_2$  at  $\lambda = 3.06633 \mu\text{m}$  oscillates under very different conditions; the pressure of Kr is the same as for other transitions ( $2 \times 10^{-2}$  Torr) but this line appears with a pressure of He between 3 and 5 Torr and so all the others transitions do not oscillate. The presence of this rather high pressure of helium in the tubes can shift the line. In order to get an idea of the magnitude of this pressure shift we have performed a separate experiment in which the two tubes were filled with the same isotope of krypton and with rather different helium pressures. We have obtained, under these conditions, a shift of  $0.4 \text{ mK Torr}^{-1}$ . Thus, it is essential, for isotope-shift measurements of this line, to control accurately the equality of the pressures in the two discharge tubes. This was done by using two high-precision pressure meters whose accuracy is  $2 \times 10^{-2}$  Torr.

### 3. Isotope-shift measurements

Since it uses gain profiles, this method of measurement of isotope shifts is suitable only if we are able to avoid the simultaneous oscillation of lines sharing a common level. To select one of the lines by competition, the best method is to use narrow-bandwidth mirrors for the laser cavity and to vary excitation conditions. (Another solution using a selective prism inside the cavity makes its optical length imprecise and was not used here.) For the two isotopes 84–86 one transition of each type



has been measured. The transition  $6p[\frac{1}{2}]_1 \rightarrow 6s[\frac{3}{2}]_2$  at  $\lambda = 3.06633 \mu\text{m}$  which is *a priori* the most favourable on which to study the volume effect, has been investigated for all pairs of isotopes. Experimental results are indicated in tables 1 and 2.

Isotope-shift values are generally smaller than 1 mK except for the transition  $4d[\frac{1}{2}]_1 \rightarrow 5p[\frac{3}{2}]_2$ . The same observations have been made in argon, and for transitions  $3d[\frac{1}{2}]_1 \rightarrow 4p[\frac{3}{2}]_2$  and  $3d[\frac{1}{2}]_0 \rightarrow 4p[\frac{1}{2}]_1$  the shift is about 16 mK (for  $\Delta A = 2$ ), while the shifts are between 1 and 2 mK for transitions  $5p \rightarrow 5s$  (Brochard *et al* 1967). This is probably due to a large specific-mass effect related to the 3d electron in argon and to the 4d electron in krypton.

Table 1. Isotope shift in six IR lines of krypton:  $\Delta\sigma_B$ , normal mass shift;  $\Delta\sigma_{SM}$ , specific-mass effect;  $\Delta\sigma_v$ , volume effect;  $\Delta\sigma_{exp}$ , experimental values.

$\lambda$ ( $\mu\text{m}$ )	Identification	$\Delta\sigma_{exp}$ (mK)	$\Delta\sigma_B$ (mK)	$\Delta\sigma_{SM} + \Delta\sigma_v$ (mK)
2.523378	$4d[\frac{1}{2}]_1 \rightarrow 5p[\frac{3}{2}]_2$	$3.80 \pm 0.03$	0.61	$3.19 \pm 0.03$
3.0663	$6p[\frac{1}{2}]_1 \rightarrow 6s[\frac{3}{2}]_2$	$0.70 \pm 0.02$	0.495	$0.20 \pm 0.02$
3.9557	$5d[\frac{3}{2}]_1 \rightarrow 6p[\frac{3}{2}]_2$	$-0.04 \pm 0.04$	0.385	$-0.43 \pm 0.04$
4.0685	$7s[\frac{3}{2}]_1 \rightarrow 6p[\frac{3}{2}]_1$	$-0.34 \pm 0.03$	0.373	$-0.71 \pm 0.03$
4.1515	$7s[\frac{3}{2}]_1 \rightarrow 6p[\frac{3}{2}]_2$	$-0.72 \pm 0.05$	0.366	$-1.09 \pm 0.05$
4.9996	$4d'[\frac{3}{2}]_1 \rightarrow 6p[\frac{1}{2}]_1$	$0.95 \pm 0.03$	0.30	$0.65 \pm 0.03$

Isotopic shift  $\Delta\sigma = \Delta\sigma_B + \Delta\sigma_{SM} + \Delta\sigma_v = \sigma_{86} - \sigma_{84}$ .

Table 2. Isotope shift for the line  $\lambda = 3.0663 \mu\text{m}$  of krypton for the different couples of even stable isotopes.

	$\sigma_{86} - \sigma_{84}$	$\sigma_{84} - \sigma_{82}$	$\sigma_{82} - \sigma_{80}$	$\sigma_{80} - \sigma_{78}$
$\Delta\sigma_{\text{exp}}$ (mK)	$0.704 \pm 0.02$	$0.695 \pm 0.02$	$0.76 \pm 0.03$	$0.81 \pm 0.02$
$\Delta\sigma_{\text{B}}$ (mK)	0.495	0.519	0.545	0.573
$\Delta\sigma_{\text{SM}} + \Delta\sigma_{\text{v}}$ (mK)	$0.21 \pm 0.02$	$0.18 \pm 0.02$	$0.215 \pm 0.03$	$0.237 \pm 0.02$

Isotopic shift for isotopes  $A = 78, 80, 82, 84, 86$ .

#### 4. Volume effect in the $6p[\frac{1}{2}]_1 \rightarrow 6s[\frac{3}{2}]_2$

Among all laser transitions studied here the  $6p[\frac{1}{2}]_1 \rightarrow 6s[\frac{3}{2}]_2$  should have the largest volume effect (due to the 6s electron). However, experimental values of the isotope shift for this transition are of the same order of magnitude as for other transitions where the volume effect is expected to be smaller. If  $\Delta\sigma_{\text{exp}}$  is the experimental result,  $\Delta\sigma_{\text{B}}$  the normal mass shift,  $\Delta\sigma_{\text{SM}}$  and  $\Delta\sigma_{\text{v}}$ , respectively the specific-mass effect and the volume effect and  $K$  is an electronic constant, we can write

$$\Delta\sigma_{\text{exp}}(A_1, A_2) = \Delta\sigma_{\text{B}} + \Delta\sigma_{\text{SM}} + \Delta\sigma_{\text{v}} = \frac{A_1 - A_2}{A_1 A_2} K + \Delta\sigma_{\text{v}}$$

Taking the isotope shift for the pair (84, 86) as a reference, we have compared the measured ratio  $\Delta\sigma_{\text{exp}}(A_1, A_2)/\Delta\sigma_{\text{exp}}(84, 82)$  to the ratio  $[(A_1 - A_2)/A_1 A_2] (84 \times 82/2)$ ; these two quantities should be equal in the absence of volume effects (table 3). Within the accuracy of the measurements, these ratios are not significantly different except for the pair (78, 80). In fact one can ascertain in this case that the measured quantity  $\Delta\sigma_{\text{exp}}(78, 80)/\Delta\sigma_{\text{exp}}(84, 82) = 1.17 \pm 0.06$  is more than the quantity  $(84 \times 82)/(78 \times 80) = 1.10$  (the value obtained if we had only the mass shift). To go further, we have to visualize the possible variations of volume effect with the variations of specific-mass effect. In the following the values of normal mass shifts (Bohr effect) whose calculation is trivial, are subtracted from all the isotope-shift values. Let us consider figure 4; the y coordinate corresponds to a hypothetical value of  $\Delta\sigma_{\text{SM}}(78, 80)$  the corresponding x coordinate represents the values of  $\Delta\sigma_{\text{v}}(78, A)$  deduced from the residual experimental shifts  $\Delta\sigma'_{\text{exp}}(78, A)$  by subtraction of

$$\Delta\sigma_{\text{SM}}(78, A) = \frac{A - 78}{78A} \frac{78 \times 80}{2} y$$

Table 3. Comparison of experimental values of the relative isotope shift with their theoretical values assuming absence of any volume effect.

$(A_1, A_2)$	(84, 86)	(84, 82)	(82, 80)	(80, 78)
$\frac{\Delta\sigma_{\text{exp}}(A_1, A_2)}{\Delta\sigma_{\text{exp}}(84, 82)}$	$1.01 \pm 0.06$	1	$1.09 \pm 0.07$	$1.17 \pm 0.06$
$\frac{A_1 - A_2}{A_1 A_2} \frac{84 \times 82}{2}$	0.954	1	1.05	1.10

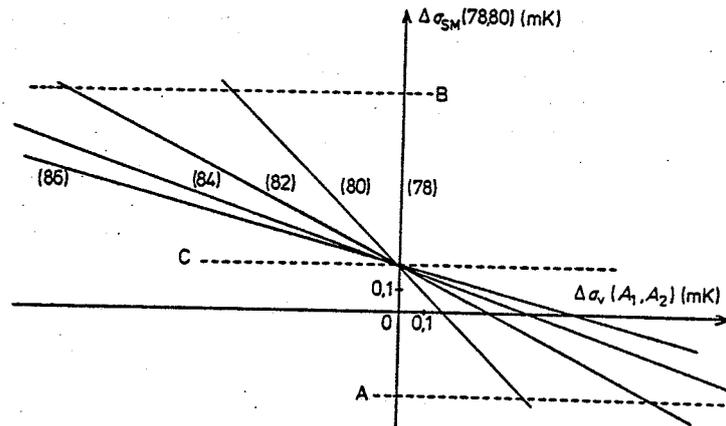


Figure 4. Illustration of the variation of the volume effect for the line  $\lambda = 3.066 \mu\text{m}$  ( $6p[\frac{1}{2}]_1 \rightarrow 6s[\frac{3}{2}]_2$ ) of krypton deduced from our experimental data against hypothetical values of specific-mass shift. A, B, C correspond to three particular values of specific-mass shift (78–80) (see the text).

calculated from this hypothetical value. Thus we have obtained a set of straight lines (80), (82), (84), (86) corresponding to the different values of the mass number  $A$  according to the relationship

$$x = \Delta\sigma_v(78, A) = \Delta\sigma'_{\text{exp}}(78, A) - \frac{A - 78}{A} \frac{80}{2} y$$

where

$$y = \Delta\sigma_{\text{SM}}(78, 80).$$

Moreover, we have represented three particular cases as horizontal straight lines on this graph:

(i) If one takes the theoretically calculated value for the specific-mass shift in this line (evaluated from Hartree–Fock calculations  $\Delta\sigma_{\text{SM}}(78, 80) = -0.38 \text{ mK}$ ) then the values of the volume effect are inverted with respect to those deduced on the basis of the classical  $r = r_0 A^{1/3}$  law (line A).

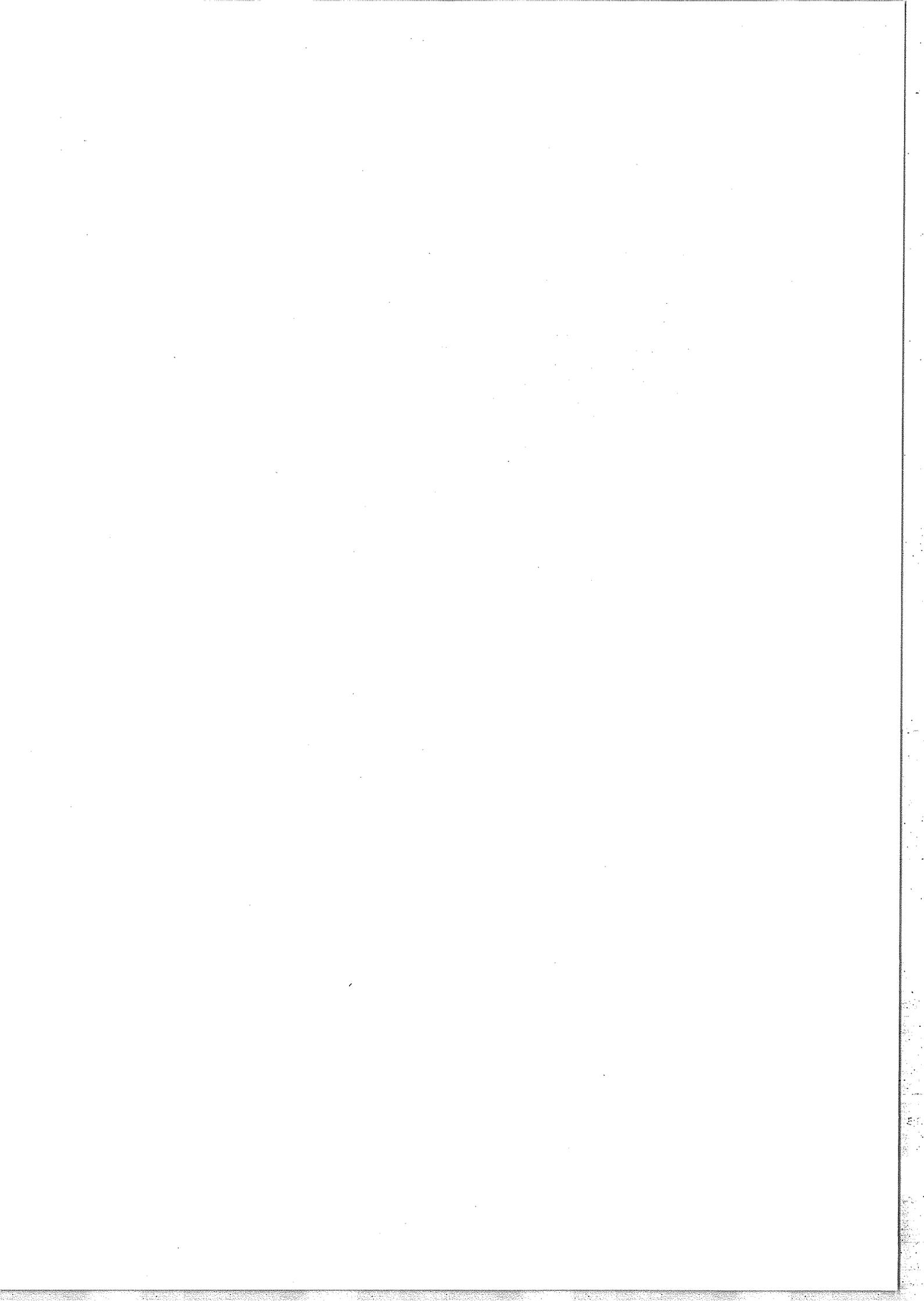
(ii) If the specific-mass shift is deduced on the basis of  $r = r_0 A^{1/3}$  for the volume effect (the electron density at the origin obtained either by relativistic Hartree–Fock calculations or by the Fermi–Segre relation is  $-0.033 \text{ au}$  and  $C_{\text{th}}$  obtained using Humback (1952) calculations gives about  $24.5 \text{ mK}$ , then the volume effect is  $0.8 \text{ mK}$ ) then the specific-mass shift is too large to be plausible (line B).

(iii) If one assumes a variation of mean square charge radius similar to that shown by the nuclear binding energies to deduce the volume effect, then the specific-mass shift has to be a substantial proportion of the observed shift (line C) which seems to be reasonable.

In spite of the smallness of isotopic shifts in the infrared laser lines of krypton (generally less than  $1 \text{ mK}$ ) the accuracy of the experiment is high enough to demonstrate the existence of the volume effect and furthermore to show that there is a possibility of an inversion between mean square values of the charge distribution as in the cases of Rb and Sr (Ehrlich *et al* 1967, Bruch *et al* 1969). To attempt to confirm whether or not there is such an inversion we are undertaking measurements of isotope shifts in  $5p \rightarrow 5s$  transitions of krypton, for which the volume effect is larger, using a saturated-absorption technique.

**References**

- Andrade O, Gallardo M and Bochasten K 1967 *Appl. Phys. Lett.* 11 99  
Bauche J 1969 *Thesis* University of Paris-Orsay  
Bréchnignac C, Gerstenkorn S and Luc P 1976 *Physica* 82BC 409  
Brochard J, Cahuzac Ph and Vetter R 1967 *C.R. Acad. Sci., Paris B* 265 467  
Brochard J and Vetter R 1966 *C.R. Acad. Sci., Paris B* 262 681  
Bruch R, Heilig K, Daletta D, Steudel A and Wendlandt D 1969 *J. Physique* 30 Suppl CI-51  
Ehrlich R D, Fryberger D, Jensen D, Nissim-Sabat C, Powers R J, Telegdi V L and Hargrove C K  
1967 *Phys. Rev. Lett.* 18 959  
Gerstenkorn S 1969 *C.R. Acad. Sci., Paris B* 268 1636  
Humbach W 1952 *Z. Phys.* 33 590  
Kopferman 1960 *Nuclear Moments* (New York: Academic)  
Rasmussen and Middelboe 1955 *K. Danske Vidensk. Selsk. Mat.-Fys. Meddr.*  
Vetter R 1970 *Thesis* University of Paris-Orsay



ANNEXE V



Measurements of isotope shift in visible lines of KrI  
by saturation absorption techniques

C. Bréchnignac

Laboratoire Aimé Cotton - C.N.R.S. II - Bât. 505  
Campus d'Orsay - 91405 Orsay - France

Abstract :

We have measured the isotope shifts for all even isotopes of neutral krypton  $A = 78$  to  $A = 86$  for the two visible lines  $\lambda = 557$  nm and  $\lambda = 556$  nm by a Doppler free saturated absorption experiment. There is evidence for a non regular position of the different isotopes which can be related to the variations of several nuclear properties along the series of krypton isotopes.

Short title of not more than 50 letters for use at the head of the printed page :

Isotope shifts in krypton.

Cet article est accepté pour parution dans "Journal of Physics B"

## 1. Introduction

Elements having nuclei near the neutron-closed shell  $N = 50$  exhibit irregular variations for field effect with the mass number  $A$  (Gerstenkorn 1969). Then the regular law  $\langle r^2 \rangle$  proportional to  $A^{2/3}$  ( $\langle r^2 \rangle$  is mean square radius of charge distribution) is not verified. In order to investigate these irregularities we have measured isotope shifts in neutral krypton ( $Z = 36$ ) for all even stable isotopes from  $A = 78$  to  $A = 86$ . For the line  $4p^5 6p [1/2]_1 \rightarrow 4p^5 6s [3/2]_2$  at  $\lambda = 3066$  nm we have shown in previous measurements the evidence for a volume effect, but in spite of the accuracy of the measurements (0.03 mK) the values of the shifts (about 0.8 mK) were too small to demonstrate the possibility of irregular variations of the field shift (Bréchnac, Gerstenkorn 1976). To go further we have tried to reach a lower  $s$  level for which the field (or volume) effect is expected to be large, but even for the lines  $4p^5 5p \rightarrow 4p^5 5s$  in the visible, isotope shifts are one order of magnitude smaller than the Doppler width at room temperature. In this perspective, we have performed a Doppler-free saturated-absorption experiment by using a C.W. jet-stream dye laser. Measurements on the lines at  $\lambda = 557$  nm and  $\lambda = 556,2$  nm show that there is evidence for a non regular position of the different isotopes of krypton. In particular the position of isotope 84 is rather surprising. One can relate this position to the variations of several nuclear properties along the series of krypton isotopes.

## 2. Experimental set-up and procedure

With our experimental techniques we have recorded directly the homogenous profiles related to the five stable even isotopes of krypton. The five isotopes were held in an active cell which was electrically excited in order to populate the  $5s$  levels of interest.

The experimental arrangement represented on figure 1 is identical in its principle to the one described by Smith and Hänsch (Smith and Hänsch 1971). It consists mainly of a single mode tunable C.W. jet-stream dye laser using Rhodamine 110. The main laser beam saturates the absorption in the active cell and a weaker part, provided

by reflexion on a beam-splitter, probes the non-linear interaction. The two beams counterpropagate in the cell at a small angle. The saturating beam is modulated at 750 Hz by a mechanical chopper and the saturated-absorption signal is detected on the probe beam by use of a lock-in detection. A ratiometer system is used before the lock-in amplification in order to reduce the noise due to intensity fluctuations of the laser beams.

The frequency scanning of the laser is calibrated by use of a multipath Fabry-Perot etalon which provides reference fringes spaced by 20.8 MHz (i.e. 0.69 mK) (Cahuzac 1973). In order to look for the best experimental conditions, we have first recorded profiles with a single pure isotope of krypton. For lines involving the first excited metastable level of krypton  $5s [3/2]_2$  the saturated absorption profile consists of the expected narrow resonance superimposed on a broad background. This background comes from the velocity redistribution due to elastic collisions and its width is the normal Doppler width. Its magnitude would have been too large to permit high precision measurements and an attenuation of this background was necessary before spectroscopic studies. We have reduced its magnitude by adding xenon into the discharge ; under these conditions, xenon acts as a quencher and the background is greatly reduced (Vetter and all. 1975), (Damaschini and all. 1976). For other lines involving resonant levels with s electrons, such as  $4p^5 5s [3/2]_1 \rightarrow 4p^5 5p' [3/2]_2$  at  $\lambda = 587,9 \text{ nm}$  only occurs a broad background due to radiation trapping and isotope shift measurements have not been possible.

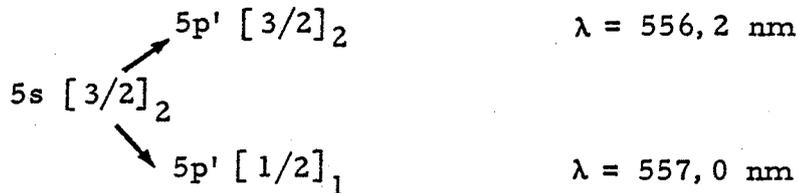
### 3. Isotope shift measurements

A large number of recordings (about 50) were made in various experimental conditions by changing :

- the partial pressures of the five isotopes that we mixed in the cell from highly enriched samples,
- the discharge current which chiefly acts on the 5s populations,

- the intensity of the saturating beam (by adding attenuators in order to change the value of the saturation parameter )  
(Baklanov and Chebotaev 1972)..

In table I are presented the results of the measurements concerning the following lines starting from the first metastable level



A typical recording is shown in figure 2 (experimental parameters were as follows : total pressure of krypton : 25 mtorr, pressure of xenon : 5 mtorr, discharge current: 10 mA, saturation parameter  $\chi \approx 2$ ). It consists of five well separated narrow resonances the measured F.W.H.M. of which is 15 MHz ; this width is due to the natural one  $\gamma_0 = 7 \text{ MHz}$  (Gruzdev P.F. and Loginov A.V. 1975), given by the upper level, and to saturation and pressure broadenings (leading to an homogenous full-width  $\frac{\gamma}{2}(\sqrt{1 + \chi} + 1)$  at low saturation) but also to residual Doppler effect (provided by the small angle between the two laser beams). Moreover the jitter of the laser (5 MHz typically) is not fully negligible. The accuracy of the measurements is  $\pm 1 \text{ MHz}$  : it is essentially limited by the non regularity of the frequency scanning of the laser and by the stability of the multipath Fabry-Perot which is used as a frequency marker. A systematic correction has been made in order to take into account a weak drift of the Fabry-Perot.

#### 4. Interpretation - Field effect in krypton

##### 4.1. - Coherence of isotope shift measurements. King's plot

It is clear (table I) that, to the accuracy of measurements, the measured shifts take the same values for the two lines  $\lambda = 557 \text{ nm}$  and  $\lambda = 556,2 \text{ nm}$ . This result is not surprising, since the two lines have almost the same wavelength (hence the same Bohr effect

$\Delta\sigma_B = \frac{m(M_2 - M_1)}{M_1 M_2} \sigma$ ) and since the field effect and the specific mass effect must not differ significantly in the two upper levels  $5p'[3/2]_2$  and  $5p'[1/2]_1$  (Bauche J. 1969). Therefore in the following we have only considered the transition  $5p^5 5s [3/2]_2 \rightarrow 5p^5 5p' [1/2]_1$  corresponding to  $\lambda = 557$  nm.

We now compare the measurements relative to  $\lambda = 557$  nm to the measurements that we have obtained with an other method for the infrared line  $5p^5 6s [3/2]_2 \rightarrow 5p^5 6p [1/2]_1$  at  $\lambda = 3066$  nm (Bréchnac C. and Gerstenkorn S. 1976). Isotope shift for a line  $\lambda$  and for a pair of isotopes ( $A_i, A_j$ ) can be written as the sum of the two terms relative to field shift and mass shift

$$\Delta\sigma_{ij}^\lambda = \Delta\sigma_v + \Delta\sigma_M = E^\lambda C_{ij} + K^\lambda \frac{A_i - A_j}{A_i A_j}$$

we have plotted on figure 3 the linear relation between  $x = \Delta\sigma_{ij}^\lambda \frac{A_i A_j}{A_i - A_j}$  (for  $\lambda = 557$  nm) and  $y = \Delta\sigma_{ij}^{\lambda'} \frac{A_i A_j}{A_i - A_j}$  (for  $\lambda' = 3066$  nm) according to the equation

$$y = \frac{E^{\lambda'}}{E^\lambda} x + K^{\lambda'} - K^\lambda \frac{E^{\lambda'}}{E^\lambda} \quad (\text{King's straight line 1963}).$$

The slope of this straight line is the ratio of field effect for these transitions. We obtain  $\frac{E^{3066}}{E^{557}} = \frac{\Delta\sigma_v^{3066}}{\Delta\sigma_v^{557}} = 0.18 \pm 0.15$ .

This value is consistent with the calculated value 0.26 which we obtained by Hartree Fock calculations for electron density at the origin  $\Sigma |\psi_{ns}^0|^2$ . For  $x = 0$  we obtain a relation between the mass shifts related to the two lines, but the accuracy is too low to ascertain a definitive conclusion.

#### 4.2. - Irregularities in Field effect.

The results that we have obtained for the two lines 557 nm and 3066 nm are coherent (King's plot) therefore to study the field effect, we have used the results concerning the line at  $\lambda = 557$  nm for which the field effect is more important.

For  $\lambda = 557 \text{ nm}$  we have compared the different ratios  $\frac{\Delta\sigma}{\Delta\sigma_B}$  (table II); in the absence of field effect these ratios must be equal. We observe the equality for the three pairs (78,80) (80,82) (84,86) but not for the pair (82,84) for which the ratio is significantly smaller ( $0.96 \pm 0.01$  instead of  $1.05 \pm 0.01$ ). This result shows not only the existence of a volume effect but also an irregularity in the variations of  $\delta \langle r^2 \rangle$  with respect to a classical regular law  $r_0 A^{1/3}$  (Kopfermann 1958).

We have evaluated the field shifts  $\Delta\sigma_v$  for the pairs (86,84) (84,82) (80,78) by the way of classical theory where nuclear deformation is taken into account.  $\Delta\sigma_v (M_i M_j) = C_{th} \sum |\psi_{ns}^0|^2 \left[ 1 + \frac{3}{2} A \frac{\delta\alpha^2}{\delta A} \right]$ . The electron density at the origin obtained either by Hartree Fock calculations or from the Fermi Segré relation concerning the hyperfine structure of the first metastable level [ ] is  $-0.13 \text{ a. u.}$ .

The nuclear theoretical constant  $C_{th}$  calculated by Humbach (1952) on the basis of  $r = r_0 A^{1/3}$  is  $24.5 \text{ mK}$  for the pair (80,82) the nuclear deformation coefficients are indicated in figure 4 (Nolte E. 1971).

In figure 4 we have indicated our measurements  $\Delta\sigma'$  the evaluated field shifts  $\Delta\sigma_{volpur}$  calculated from the classical theory  $r = r_0 A^{1/3}$  and field shifts  $\Delta\sigma_v$  evaluated from the classical theory where nuclear deformations coefficients are taken into account for the pairs (78,80) (80,82) (82,84) (84,86).

Even if the specific mass shift is not negligible there is no value of specific mass shift which can explain the difference between our experimental results  $\Delta\sigma'$  and the calculated shifts  $\Delta\sigma_v$ . In spite of the fact that the variations of nucleus deformation are taken into account the classical theory is unable to interpret our experimental results. If we assume now that the variations of nuclear deformation play effectively a role in the variations of the field effect in krypton,  $\Delta\sigma_{volpur}$  must vary less rapidly than the variations of  $r_0 A^{1/3}$  for isotopes having a number of neutrons just less than the magic number  $N = 50$ .

This is not surprising if one compares the case of krypton to the cases of strontium, rubidium, barium, cerium and others for which the values of  $C_{th}$  calculated by Humbach on the basis of  $r_0 A^{1/3}$ , are also too large for isotopes having a neutron number  $N < 50$  or 82 to interpret field isotope shifts.

#### Acknowledgments

I would like to thank D. Merle for her technical assistance in this work.

Table I

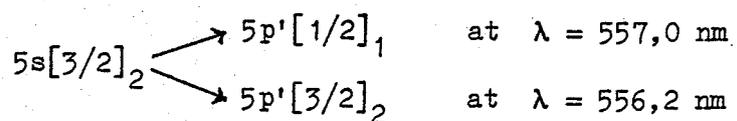
	80 - 78	82 - 80	84 - 82	86 - 84
$\Delta\sigma$ 556,2 nm	$3.33 \pm 0.03$ mK	$3.13 \pm 0.03$ mK	$2.76 \pm 0.03$ mK	$2.86 \pm 0.03$ mK
$\Delta\sigma$ 557,0 nm	$3.33 \pm 0.03$ mK	$3.15 \pm 0.03$ mK	$2.75 \pm 0.03$ mK	$2.87 \pm 0.03$ mK
$\Delta\sigma_B$ 557,0 nm	3.155 mK	3.001	2.858	2.725
$\Delta\sigma' = \Delta\sigma_V + \Delta\sigma_{SM}$ 557,0 nm	$0.17_5 \pm 0.03$ mK	$0.15 \pm 0.03$ mK	$-0.11 \pm 0.03$ mK	$0.14_5 \pm 0.03$ mK

$\Delta\sigma$ 3066 nm	$0.81 \pm 0.02$ mK	$0.76 \pm 0.03$ mK	$0.69_5 \pm 0.02$ mK	$0.70_5 \pm 0.02$ mK
$\Delta\sigma' = \Delta\sigma_V + \Delta\sigma_{SM}$ 3066 nm	$0.24 \pm 0.02$	$0.22 \pm 0.03$	$0.18 \pm 0.02$	$0.21 \pm 0.02$

Table II

	(78, 80)	(80, 82)	(82, 84)	(84, 86)
$\frac{\Delta\sigma}{\Delta\sigma_B}$ 557 nm	$1.06 \pm 0.01$	$1.05 \pm 0.01$	$0.96 \pm 0.01$	$1.05 \pm 0.01$

Table I : Measured isotope shifts  $\Delta\sigma$  in Kr I by saturated absorption techniques for the lines



results for the line  $6s[3/2]_2 \rightarrow 6p[1/2]_1$  at  $\lambda = 3066 \text{ nm}$  (Bréchnac, Gerstenkorn, 1976).

$\Delta\sigma$ ,  $\Delta\sigma_B$  and  $\Delta\sigma'$  are the measured shift, the normal mass shift, and the residual shift respectively.

Table II : Ratios between measured shift  $\Delta\sigma$  and normal mass shift  $\Delta\sigma_B$  for the different pairs of krypton isotopes for the line  $\lambda = 557 \text{ nm}$ .

References

- Baklanov E. V. and Chebotaev V. P. 1972 Soviet Phys. J E T P 35 287-91
- Bauche J. Thesis 1969 Orsay
- Bréchnignac C. and Gerstenkorn S. 1976 J. Phys. B (to be published)
- Cahuzac Ph. 1973 Physica 67 567-84
- Damaschini R., Cahen J., Brochard J. and Vetter R. 1976 J. Phys. B  
9 211-14
- Gerstenkorn S. 1969 C. R. Acad. Sc. Paris 268 1636
- Grudzev P. F. and Loginov A. V. 1975 Opt. Spektrosk 38 1056-58
- Humbach W. 1952 Zeitschrift für Physik 133 589-614
- King W. H. 1963 J. Opt. Soc. Am. 53 683
- Kopfermann H. 1958 Nuclear Moments Acad. Press. Inc., N. Y.
- Nolte E. 1971 Thesis Freiburg
- Nuclear Data Tables 1971 9 Acad. Press., N. Y. and London
- Smith P. W. and Hänsch T. 1971 Phys. Rev. Lett. 26 740-43
- Vetter R., Damaschini R., Cahen J. and Brochard J. 1975 J. Phys. B  
8 275-77

Figure I : Simplified block diagram of the experimental set up. Beam splitters (a) (b) (c) provide respectively the beams for multipath Fabry Perot and ratiometer system.

Figure II : Typical recording

- The upper trace shows reference fringes provided by the multipath Fabry Perot. The space between two fringes is 20.8 MHz (i. e. 0.69 mK).
- The lower trace shows saturated absorption profiles related to the five even isotopes of krypton for the transition  $5s[3/2]_2 \rightarrow 5p'[1/2]_1$  at  $\lambda = 557,0$  nm.

Figure III : King diagram of the isotope shifts of the lines 3066 nm and 557,0 nm of Kr I .

Figure IV<sub>a</sub> : Variations of nuclear deformation coefficients  $\beta$  versus the mass number  $A$  for different isotopes of krypton (Nolte E. 1971).

Figure IV<sub>b</sub> : Isotope shifts for the pair (78,80) (80,82) (82,84) (84,86)

- $\Delta\sigma'$  residual measured isotope shift
- $\Delta\sigma_{\text{volpur}}$  calculated by  $r_0 A^{1/3}$
- $\Delta\sigma_v$  calculated by classical theory where nuclear deformation is taken into account.

$\lambda = 5570,28 \text{ nm}$   $[5s[3/2]_2 \rightarrow 5p'[1/2]_1]$

