

SERIE A, N°  
N° D'ORDRE :

# THÈSES

126

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES  
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS  
CENTRE D'ORSAY  
POUR OBTENIR

LE grade DE DOCTEUR. ES-SCIENCES PHYSIQUES

PAR

DUONG HONG TUAN

Etude du déplacement isotopique dans le  
1<sup>re</sup> THÈSE. — spectre d'arc du Baryum. Détermination  
des moments quadrupolaires des isotopes impairs  
135 et 137 du Baryum.

2<sup>e</sup> THÈSE. — PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ.

Soutenues le

devant la Commission d'examen.

MM. KASTLER ..... *Président.*

JACQUINOT .....  
BROCHARD ..... } *Examineurs.*

JACKSON



## FACULTE DES SCIENCES DE L'UNIVERSITE DE PARIS

## - P R O F E S S E U R S -

Doyen ....M. ZAMANSKY

BRELOT	T Analyse supérieure	CHAMPETIER	T chimie macromoléculaire
PRÉNANT	T anatomie et histologie comparée	CUVILLIER	T micropaléontologie
GRASSE	T évolution des êtres organisés	JUNG	T géologie
PREVOST	T chimie organique	TRILLAT	T microscopie et diffraction électronique
WYART	T minéralogie & cristallog.	WIEMANN	T chimie organique et struc.
TEISSIER	T zoologie	JACQUINOT	T spectroscopie & physique céleste (Orsay)
MANGENOT	T biologie végétale (Orsay)	VASSY	T physique de l'atmosphère
AUGER	T physique quantique & relativité	DESTOUCHES	T théorie physique
MONNIER	T physiologie générale	AMIEL	T chimie générale
PIVETEAU	T paléontologie	HOCART	T minéralogie & cristallog.
ROCARD	T physique (ENS)	MATHIEU JP.	T physique optique
CARTAN	T mathématiques (ENS)	COUTEAUX	T cytologie
LAFFITTE	T chimie générale	MAY	T zoologie
N...	T géométrie supérieure	CHOQUET	T théorie des fonctions et topologie
COULOMB	T physique du globe	FELDMANN	T biologie végétale marine
Melle COUSIN	T biologie animale SPCN	GUINIER	T physique des solides (Orsay)
CHRETIEN	T chimie minérale	JOST	T physiologie comparée
BOCQUET	T zoologie	FORTET	T calcul des probabilités & physique mathématique
KASTLER	T physique ENS	SCHWARTZ	T calcul dif. & intégral
EPHRUSSI	T génétique	CHOUARD	T physiologie végétale
RIVIERE	T géologie SPCN & sédimento. (Orsay)	MALAVARD	T aviation (techn. aéron.)
GAUTHERET	T biologie végétale PCB	NORMANT	T synthèse organique
LUCAS R.	T recherches physiques	BENARD	T chimie minérale
THOMAS A.	T biologie cellulaire	BUVAT	T botanique ENS
ARNULF	T optique appliquée	DUGUE	T statistiques mathémat.
MORAND	T physique enseignement	SOULAIRAC	T psychophysiologie
SOLEILLET	T physique PCB	ULRICH	T physiologie végét. appl.
FORTIER	T mécanique expérimentale des fluides	MARECHAL	T optique théor. & appliq.
DRACH	T zoologie	KIRRMANN	T théories chimiques
QUENEY	T météorologie & dynamique atmosphérique	CHAEFAUD	T botanique
GALLIEN	T embryologie	Melle LE BRETON	T physiologie de la nutrit.
EICHHORN	T botanique	LELONG	T application de l'analyse à la géométrie
DE CUGNAC	T biologie végétale SPCN	DEVILLERS	T anatomie & histologie comparée
Melle CAUCHOIS	T chimie physique	EHRESMANN	T topologie algébrique
THELLIER	T physique du globe	FRANCON	T physique SPCN
L'HERITIER	T biologie générale (Orsay)	GLANCEAUD	T géographie phys. & géologie dynamique
GRIVET	T radioélectricité (Orsay)	DODEMENT	T mathématiques MGP
PONCIN	T mécanique générale	PISOT	T techniques mathématiques de la physique
DUBREIL	T arithm. & théorie des nombres		

QUELET	T chimie organique	ROCH	T géologie
CAGNIARD	T géophysique appliquée	SCHATZMANN	T astrophysique
LENNUIER	T physique MGP	TERMIER	T géologie générale
RIZET	T génétique (Orsay)	ZAMANSKY	T mathématiques générales
ROUTHIER	T géologie appliquée	LUCAS	T géologie
Mme TONNELAT	T physique théorique	ALLARD	T chimie physique
DIXMIER	T mathématiques MPC	BERTHELOT	T physique des particules fondamentales (Orsay)
SOUCHAY	T chimie générale	BRICARD	T météorologie & physique de l'atmosphère (Orsay)
AICRAIN	T électrotechnique générale	Mme ALBE FESSARD	T psycho-physiologie
BRUSSET	T chimie systématique	FRIEDEL	T physique des solides (Orsay)
LEVY M.	T physique théorique des hautes énergies (Orsay)	JULIA M.	T études des moléculaires naturelles complexes
Mme CHAIX	T chimie biologique	LENDER	T biologie animale SPCN (Orsay)
Mme HUREL PY	T biologie végétale PCB	MAGAT	T physico-chimie des radio- éléments
PANNETIER	T chimie générale	Mlle QUINTIN	T électrochimie
BRUN	T mécanique des fluides I	MONOD	T chimie du métabolisme
LEDERER	T chimie biologique (Orsay)	BENOIT	T physio. animale (Orsay)
Mme DUBREIL	T mathématiques (agrégat.)	DE POSSEL	T analyse numérique
Mme LELONG	T mathématiques II (ENS)	CHARLOT	T chimie analytique
BELLAIR	T géologie (SPCN)	LEMEE	T écologie végétale (Orsay)
COTTE	T physique électricité	GUERIN	T chimie MPC (Orsay)
DUBOIS J.E.	T chimie organique	CHATELET	T chimie (PCB)
LAMOTTE	T zoologie (ENS)	JEAN	T physique nucléaire (Orsay)
MICHEL A.	T chimie minérale (Orsay)	MATTLER	T physique (SPCN)
OLMER	T énergétique générale	BERGERARD	T zoologie (Orsay)
ROUAULT	T électricité (Orsay)	BERTIN	T électronique (Orsay)
GAUTHIER	T mécanique appliquée	BOUSSIÈRES	T radiochimie
BARCHEWITZ	T chimie physique	Mme COUTURE	T thermodyn. & méca phys.
BROSSEL	T physique atomique	ELLEMBERGER	T géologie des grandes ré- gions du globe (Orsay)
BUSER	T physiologie comparée	FRANC	T biologie animale (PCB)
CAMUS	T physiologie végétale	SCHNELL	botanique tropicale
CASTAING	T physique II thermodynamique (Orsay)	STLKOWSKI	T physiologie végétale
CURIEN	T minéralogie & cristallog.	ACHER	T chimie biologique
MOYSE	T physiologie végétale (Orsay)	BAUDOIN	T biologie animale (PCB)
Mme CHARNIAUX-	évolution des êtres orga- nisés	BEAUMONT	biologie animale SPCN
COTTON	T zoologie	BLAMONT	géophysique ionosphère
POSSOMPES	T chimie quantique	BOUREAU	T botanique
PULLMANN	T physique nucléaire & radio- activité (Orsay)	CURIE D.	physique (MGP)
TEILLAC	T biologie-physico-chimique (Orsay)	DURAND DELGA	T géologie
TONNELAT	T chimie organique (Orsay)	FREON	T chimie organique (Orsay)
VILLE	T économétrie	HELLER	T physiologie végétale
WILLEMART	T chimie (PCB)	TORTRAT	T calcul des probabilités
DODE	T chimie (Orsay)	CAILLEUX	T géologie (SPCN)
FREYMANN	T recherches physiques	MAGNAN	physique électricité
GUINOCHET	T biologie végétale (SPCN) (Orsay)	DAUDEL	T mécanique ondulatoire appliquée à la chimie théorique & à la physique nucléaire

ROLLET	T chimie minérale	Melle FOURCROY	biologie végétale SPCN
Melle JOSIEN	T chimie SPCN	Mme CHOQUET-	T mécanique analytique &
CHEVALLEY	T géométrie algébrique &	BRUHAT	mécanique céleste
ARNOULT	T électronique (Orsay)	Melle VEIL	T physiologie générale
CHAPELLE	T physique I (Orsay)	LWOFF	T microbiologie
DELANGE	T mathématiques I (Orsay)	SIESTRUNCK	T mécanique physique & expé-
DENY	T mathématiques gles -	NERON	T mathématiques (MPC)
GERMAIN	T mécanique théorique des		(Orsay)
	fluides	Mme PECKER-	
LACOMBE	T métallurgie des métaux nu-	WIMEL	T astrophysique
	cléaires (Orsay)	BALKANSKY	physique MPC
BROCHARD	T physique MSP (Orsay)	LE CORRE	T électricité
CABANNES	T mécanique générale	DELCROIX	T physique théorique (Orsay)
LESIEUR	T mathématiques I (Orsay)	GOURDIN	physique théorique des
MAZET	T mécanique générale (Orsay)		hautes énergies (Orsay)
CAIRE	géographie phys. & géol.	LEHMANN	T physique expérimentale des
	dynamique		hautes énergies
COMOLET	mécanique des fluides	NATAF	T physique nucléaire & radio-
GORABOEUF	T physio animale (Orsay)		activité (Orsay)
DELLOUE	T physique de l'exosphère	ECHALIER	biologie animale PCB
GORENFLOT	botanique II (Orsay)	BARRAUD	physiologie cellulaire
HOUILLOIN	biologie animale PCB	LIORET	P physiologie végétale
JULLIEN J.	chimie SPCN (Orsay)		(Orsay)
MALGRANGE	T techniques math. de la phys.	DARS	géologie structurale &
	(Orsay)		géologie appliquée
OLIVIER	anthropologie	CAMEFORT	T botanique (agrégation)
NOZERAN	T botanique II (Orsay)	VICHNIEWSKY	T mécanique industrielle
BLANC-LAPIERRE	T physique ENS (Orsay)	BLAQUIERE	électronique (Orsay)
CHEVAUGEON	T botanique (Orsay)	ARNOUS	T physique théorique
KAHANE	T mathématiques (Orsay)	TATIBOUET	chimie (CSU Orléans)
SAMUEL	T math. ENS féminines	MALLIAVIN	T mathématiques propédeutique
KOURGANOFF	T astronomie (Orsay)		(Orsay)
THIRY	T mécanique céleste	GAUDEMAR	chimie propédeutique
ABELES	physique SPCN	PEREZ Y JORBA	physique expérimentale des
AMAT	T physique PCB		hautes énergies (Orsay)
AUBOIN	T géologie	DAVID	T chimie (agrégation Orsay)
Mme BENOIST-	T physique nucléaire & radio-	BROUSSE	T mécanique théorique
GUEUTAL	activité (Orsay)	ROSCH	T astronomie
BOUGIS	biologie marine Villefran-	GUY	T physique expérimentale
	che s/ Mer.	LAZARD	mathématiques MPC
BRUHAT	T mathématiques MPC	MOREL Pierre	physique MPC
BRUNN	T géologie historique (Orsay)	ARSAC	programmation
CHABBAL	T physique MGP (Orsay)	LEFEBVRE	chimie MPC
DEHEUVELS	T mathématiques propédeutique	CHAPEVILLE	biochimie
D'ESPAGNAT	T physique théorique (Orsay)	BENOIT	physique CPEM
FURON	T géologie SPCN	RIO	chimie CPEM
Mme GANS	T génétique	JAUZEIN	géologie ENS
GENEVES	biologie végétale PCB	PREVOST G.	biologie végétale CPEM
GUILBERT	physique CSU Orléans	FAVARD P.	biologie animale CPEM
HUPE	T pétrographie	VILKAS	chimie CPEM
HOLLANDE	T biologie générale	Melle FICINI	chimie CPEM
LIONS	T analyse numérique	LEQUEUX	astronomie
MAITTE	T chimie PCB	COHEN TANNOUJJI	physique MPC
MEYER	physique propédeutique	TAVERNIER	physique CPEM
NICOLAS	géologie appliquée	Mme ROIZEN	physique CPEM
PANIGEL	biologie générale	DURAND M.	biologie animale SPCN

RAVIER	pétrographie	PASCAUD	physiologie
ROSEAU	T mécanique théorique des fluides	Mme PETIT	biologie animale CPEM
ROUBINE	électronique	BROUSSE	géologie (Orsay)
SILBER	T chimie PCB	CAGNAC	physique agrégation (Orsay)
UEBERSFELD	T électronique	LEBERRE	zoologie (Orsay)
YVON	T théories physiques	SCHAEFFER	microbiologie (Orsay)
HERVE	T mathématiques	de GENNES	physique des solides (Orsay)
JANCOVICI	physique atomique (Orsay)	RIOU	physique nucléaire expé. (Orsay)
FALK-VAIRANT	physique nucléaire -	CLAUSER	chimie biologique (Orsay)
FETIZON	chimie propédeutique -	CHEVALIER	physiologie animale (Orsay)
CERF	mathématiques (Orsay)		

LE SECRETAIRE GENERAL : R. POUILLAIN.

A mes Maîtres

Monsieur Pierre JACQUINOT

Membre de l'Institut

Monsieur D. A. JACKSON

F. R. S.

En témoignage de respectueuse gratitude



A mes parents

A tous ceux qui me sont chers



Monsieur le Professeur JACQUINOT a bien voulu m'accueillir au Laboratoire Aimé Cotton et porter constamment un très vif intérêt à mes recherches; c'est pour moi une magnifique occasion de lui exprimer ma profonde gratitude.

J'ai bénéficié constamment du soutien et de l'aide de M. le Professeur JACKSON, qui a dirigé ce travail, qu'il me soit permis de lui exprimer ma profonde reconnaissance.

Mes remerciements vont également à M. P. CONNES qui a dirigé mes premiers pas d'expérimentateur, et à M. R. CHABBAL pour leur aide et leurs conseils.

Je tiens également à remercier M. J. BLAISE et M. S. GERSTENKORN qui se sont vivement intéressés à mon travail

Qu'il me soit permis de remercier M. le Professeur MOSER, M. J. BAUCHE, MM. KLAPISCH, M. Y. BORDARIER qui ont mené l'étude de toutes les questions théoriques de ce travail.

M. le Professeur KASTLER, mon parrain au C.N.R.S. voudra bien trouver ici l'expression de toute ma gratitude.

Mes remerciements s'adressent à tous mes camarades et à tout le personnel du Laboratoire.

Mes remerciements s'adressent aussi au Centre de Calcul Blaise Pascal du C.N.R.S. et au Centre de Calcul de la Faculté des Sciences d'ORSAY.

C'est grâce à une allocation d'attaché de recherche que ce travail a pu être mené à bien.



## I N T R O D U C T I O N

L'étude du déplacement isotopique dans les spectres optiques des éléments, au voisinage des nombres magiques, présente un intérêt évident en raison du grand nombre d'isotopes stables de certains éléments, mais l'effet est difficile à mesurer en raison de sa petitesse et de la complexité de la structure des raies, due à la présence simultanée des composantes isotopiques des isotopes pairs et éventuellement des composantes hyperfines des isotopes impairs. Dans le cas du Baryum nous avons 7 isotopes stables, 5 isotopes pairs et deux isotopes impairs ( de spin nucléaire  $I = 3/2$  ), dont les abondances en % sont :

138	137	136	135	134	132	130
71,7	11,3	7,8	6,6	2,4	0,1	0,1

L'isotope 138 a le nombre de neutron magique  $N=82$ ,

La raie de résonnance du Ba I ( $\lambda = 5536^\circ$  ;  $6s^2 \ ^1S_0 - 6s6p \ ^1P_1$ ) a été analysée par plusieurs auteurs :

- KOPFERMANN et WESSEL <sup>1</sup> (1948,1951), utilisaient d'abord un jet atomique en absorption de collimation 10 : 1 et ensuite un jet atomique en émission, excité par fluorescence. Dans les deux cas la résolution était insuffisante pour mettre en évidence les composantes isotopiques et hyperfines de la raie; seules une composante intense et une aile, située du côté des grands nombres d'onde et s'étendant approximativement jusqu'à + 25 mK ( $1 \text{ mK} = 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ ) ont été observé. En supposant les structures hyperfines dues aux isotopes impairs négligeables ( pas plus grand que 1 ou 2 mK), la composante principale était attribuée à l'isotope 138 et l'aile à l'ensemble des 4 autres isotopes pairs, ayant des déplacements isotopiques, relatifs à 138, respectivement de 7,12,18 et 21 mK en raison du nombre de masse décroissant.

ARROE 2 (1950) utilisait une cathode creuse refroidie à l'azote liquide, contenant des isotopes enrichis. Les longueurs d'onde de la raie émise par les différents isotopes enrichis étaient comparées à l'aide d'un spectrographe Fabry-Pérot. Les déplacements isotopiques obtenus diffèrent totalement de ceux indiqués par KOPFERMANN et WESSEL, ils sont :

138	137	136	135	134
0	+ 5,2	+ 2,2	+ 7,4	+ 4,4 mK

- JACKSON 3 (1957), utilisant un triple jet atomique en absorption, de collimation 28 : 1, observait des composantes à

0,0	+ 3,8	+ 9,9	+ 18,4	mK
-----	-------	-------	--------	----

avec des rapports d'intensité

20 : 4,5 : 2,5 : 1

Il concluait que la large structure observée pourrait être due à des structures hyperfines, non négligeables, des isotopes impairs.

- MACK 4 (1958), tentait de réconcilier ces résultats contradictoires en admettant que la structure hyperfine du niveau  $^1P_1$  est inversée mais que le rapport des intensités est normal. La structure alors calculée, montrait une composante forte à 3mK (attribuée à l'isotope 136) et une composante -3mK. Mais ces deux composantes ne figurent pas dans la structure observée par JACKSON.

- JACKSON 5 (1958), par des observations faites avec des jets atomiques placés à l'extérieur d'un Fabry-Pérot plan, et aussi à l'extérieur d'un Fabry-Perot sphérique, et à l'intérieur d'un Fabry-Pérot sphérique, confirmait entièrement la structure de la raie analysée dans le travail antérieur en 1957.

Ainsi la structure de la raie de résonance était bien connue, mais l'attribution des composantes aux différents isotopes était incertaine. L'indétermination ne peut être levée avec certitude qu'en faisant des mesures de déplacements isotopiques avec des isotopes enrichis et des structures hyperfines des isotopes impairs. Pour les mesures de déplacements isotopiques nous avons pris soin d'éviter les erreurs systématiques dues au mélange insuffisant des composantes, car il apparaît d'après la structure observée de la raie que les composantes hyperfines peuvent s'étendre jusqu'à + 20 mK (ce qui est du même ordre que la largeur Doppler de la raie émise par une cathode creuse refroidie à l'azote liquide). L'analyse des structures hyperfines par la technique développée en 1958 par JACKSON, devait permettre par ailleurs de déterminer les valeurs des moments quadripolaires des isotopes impairs qui n'étaient pas connus.

Par la suite, il nous a paru intéressant d'étudier les déplacements isotopiques de deux autres transitions du spectre d'arc du Baryum :

$\lambda = 3072 \text{ \AA} (6s^2 \ ^1S_0 - 6s7p \ ^1P_1)$  et  $\lambda = 3501 \text{ \AA} (6s^2 \ ^1S_0 - 5d \ 6p \ ^1P_1)$ . Le

choix de ces deux raies est dû au fait qu'elles aboutissent au même niveau ( $6s^2 \ ^1S_0$ ) que celui de la raie de résonance et que parmi les raies qui remplissent cette condition elles sont les plus intenses; elles ont en outre l'avantage d'une faible structure hyperfine, pour le niveau supérieur ( $\ ^1P_1$ ) dans le cas des isotopes impairs. Cette étude nous a fourni des renseignements sur le déplacement isotopique relatif.

Enfin un calcul de l'effet de masse spécifique de la raie de résonance a été fait, permettant de déduire les valeurs des effets de volume dans les raies étudiées.

Pendant le déroulement de ce travail, étaient publiés : les déplacements isotopiques (à l'exception des isotopes  $^{132}$  et  $^{130}$ ) de la raie  $\lambda = 5536 \text{ \AA}$  par RAZUMOVSKI et TCHAIKA **6** (1962); les structures hyperfines du niveau  $6s6p \ ^3P_1$ , de  $^{135}\text{Ba}$  et  $^{137}\text{Ba}$ , par ZUPUTLITZ **7** (1963); les déplacements isotopiques (à l'exception des isotopes  $^{132}$  et  $^{130}$ ) de la raie  $5536 \text{ \AA}$ , des raies de résonance du Ba II ( $\lambda = 4934 \text{ \AA}$   $6s \ ^2P_{1/2}$ ;  $\lambda = 4554 \text{ \AA}$   $6s \ ^2S_{1/2} - 6p \ ^2P_{3/2}$ ), les structures des raies  $5536 \text{ \AA}$  et  $3072 \text{ \AA}$  du Ba I, des raies  $4934 \text{ \AA}$  et  $4554 \text{ \AA}$  du Ba II, par KELLY et TOMCHUK **8** (1964); enfin la valeur de la constante de structure hyperfine magnétique du niveau  $6s \ 6p, \ ^1P_1$ ,  $^{137}\text{Ba}$  par LURIO **9** (1964).

Les résultats de RAZUMOVSKI et CHAIKA sont en excellent accord avec les nôtres pour les isotopes pairs ( $^{136}\text{Ba}$  et  $^{134}\text{Ba}$ ), mais pour les isotopes impairs ( $^{137}\text{Ba}$  et  $^{135}\text{Ba}$ ) leurs résultats sont systématiquement plus bas que les nôtres ( $-2\text{mK}$  pour  $^{137}\text{Ba}$  et  $-0,8\text{mK}$  pour  $^{135}\text{Ba}$ ). Ceci est, peut être, dû à un mélange insuffisant des composantes (voir page 47).

Les résultats de KELLY et TOMCHUK, et de LURIO sont en bon accord avec les nôtres, les confirmant ainsi entièrement.

Les valeurs des moments quadrupolaires déduites de nos mesures de structures hyperfines du niveau  $^1P_1$ , pour les isotopes  $^{137}\text{Ba}$  et  $^{135}\text{Ba}$ , différent de celles déduites des mesures de ZUPUTLITZ, par un écart nettement en dehors du domaine d'erreur calculé d'après les erreurs expérimentales des mesures des intervalles hyperfins. Il est probable que cette différence est due à une approximation contenue dans le calcul du moment quadrupolaire (voir chapitre VI).

Dans ce qui suit nous allons exposer successivement :

- Au chapitre I : les expressions mathématiques des effets de volume et de masse dans le déplacement isotopique, proposées par les théories habituelles.
- Au chapitre II : l'application de ces expressions au cas particulier du Baryum.
- Au chapitre III : les méthodes expérimentales utilisées pour déterminer les déplacements isotopiques de tous les isotopes stables du Baryum, l'analyse des structures hyper-fines des isotopes impairs de la raie de résonance du Ba I, et les résultats obtenus.
- Au chapitre IV : une discussion sur les déplacements isotopiques obtenus en utilisant les valeurs calculées des effets de volume et de masse exposées au chapitre II .
- Au chapitre V : les procédés de calcul des moments quadripolaires des isotopes impairs.

Enfin nous rappelons dans la conclusion les résultats obtenus.

## CHAPITRE I

### I) - INTRODUCTION :

#### 1) - Passage du déplacement isotopique d'une raie au déplacement isotopique d'un niveau.

Dans ce chapitre nous cherchons à exposer les méthodes préposées pour calculer le déplacement isotopique dans les spectres atomiques.

Le déplacement isotopique observé dans une raie du spectre est par définition, la différence de longueur d'onde ou de nombre d'onde de la raie quand on passe d'un isotope, de l'atome, à un autre.

Plus précisément considérons deux isotopes d'un atome donné, de masses  $M$  et  $M'$ , que nous appellerons par la suite isotope  $M$  et isotope  $M'$ .

Supposons que l'isotope  $M$  passe du niveau de départ (1) d'énergie  $E_1(M)$  au niveau d'arrivée (2) d'énergie  $E_2(M)$ , le nombre d'onde de la raie,  $\sigma(M)$ , sera :

$$\sigma(M) = [E_1(M) - E_2(M)] : hc$$

pour l'isotope  $M'$ , passant du niveau (1), d'énergie  $E_1(M')$  au niveau (2), d'énergie  $E_2(M')$  nous avons :

$$\sigma(M') = [E_1(M') - E_2(M')] : hc$$

par définition le déplacement isotopique,  $(M, M')$ , de la raie (1 2) est

$$\Delta\sigma(M, M') = \sigma(M) - \sigma(M') = [E_1(M) - E_1(M')] - [E_2(M) - E_2(M')] / hc$$

nous supposons que  $\sigma(M)$  est le nombre d'onde de l'isotope le plus léger ( $M$ ) et  $\sigma(M')$  celui de l'autre isotope ( $M'$ ); cela ne veut pas dire - que l'on a forcément

$$\sigma(M) < \sigma(M')$$

Calculer le déplacement isotopique,  $\Delta\sigma (M, M')$ , dans une raie revient donc à évaluer chacun des termes mis entre crochet.

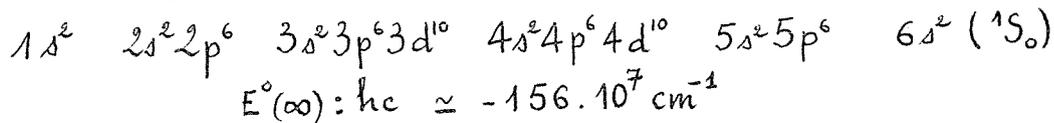
Or ces deux termes,  $\left[ E_1 (M) - E_1 (M') \right]$  et  $\left[ E_2 (M) - E_2 (M') \right]$ , sont de même nature. Ainsi le calcul du déplacement isotopique dans une raie se ramène donc au calcul de la différence entre deux termes analogues, chacun étant une différence d'énergie  $\left[ E (M) - E (M') \right]$  dans chacun des niveaux 1 et 2. Dans un but de généralisation nous supprimerons les indices 1 et 2 et nous exposerons dans le paragraphe suivant le calcul de cette différence d'énergie.

2) - Passage du déplacement isotopique d'un niveau au déplacement absolu de ce niveau : Calcul de  $\left[ E (M) - E (M') \right]$

Pour calculer cette différence, comparons  $E (M)$  et  $E (M')$  à une énergie de référence  $E^\circ(\infty)$ ; on définit  $E^\circ(\infty)$  comme l'énergie d'un atome, placé dans le même état que les isotopes  $M$  et  $M'$ , à noyau infiniment lourd et assimilé à une charge ponctuelle :

soit : 
$$E (M) = E^\circ(\infty) + \delta E (M)$$

Pour se fixer les idées donnons nous un exemple, soit l'isotope 138 du Ba correspondant à l'état suivant :



Cette valeur est calculée par la méthode HARTREE-FOCK (voir page 30)

$\delta E (M) \ll E^\circ(\infty)$  nous la considérons comme une énergie de perturbation et nous la calculerons par la méthode des perturbations; par définition  $\delta E (M)$  sera le déplacement absolu du niveau.

Pour l'isotope  $M'$ , nous avons de même :

$$E(M') = E^\circ(\infty) + \delta E(M')$$

et notre différence  $[E(M) - E(M')]$  devient :

$$[E(M) - E(M')] = \delta E(M) - \delta E(M') = \Delta \delta E(M, M')$$

dans notre exemple :  $\frac{\Delta \delta E}{hc} = 200 \text{cm}^{-1}$  pour  $M = 138$  et  $M' = 136$ .

$\Delta \delta E(M, M')$  sera, par définition; le déplacement isotopique du niveau.

Pour 3 isotopes de masse  $M, M', M''$  nous définirons encore le déplacement isotopique relatif du niveau, comme étant le rapport

$$\frac{\Delta \delta E(M, M')}{\Delta \delta E(M, M'')}$$

La fig. (1) et le tableau (1) résume ces définitions :

(1)			
Pour un niveau			
atome de masse infinie à noyau ponctuel	1 isotope de masse $M$	2 isotopes de masse $M$ & $M'$	3 isotopes de masse $M, M', M''$
$E^\circ(\infty)$	$\delta E(M)$	$\Delta \delta E(M, M')$	$\frac{\Delta \delta E(M, M')}{\Delta \delta E(M, M'')}$
Energie de référence	Déplacement absolu du niveau	Déplacement isotopique du niveau	Déplacement isotopique relatif du niveau



Au 1er ordre; énergie perturbatrice sera :

$$\delta E^{\circ}(M) = \int_{\tau} \Psi^{(0)*} \Delta H \Psi^{(0)} d\tau$$

$\Psi^{(0)}$  étant la fonction de l'atome, à noyau infiniment lourd et assimilé à une charge ponctuelle, d'où

$$(I, 1) \quad \delta E^{\circ}(M) = \int_{\tau} \Psi^{(0)*} \left[ \Delta(\text{Energie cinétique})_{\text{noyau} + \text{electrons}} \right] \Psi^{(0)} d\tau + \int_{\tau} \Psi^{(0)*} \left[ \Delta(\text{Energie d'interaction})_{\text{noyau} \text{ electrons}} \right] \Psi^{(0)} d\tau$$

la 1ère intégrale correspond à l'effet de masse et la 2ème à l'effet de volume. Nous allons voir dans ce qui suit successivement les méthodes proposées pour calculer chacun de ces termes.

### REMARQUES.

Le calcul que nous allons exposer

1°) utilise les fonctions d'onde non relativistes (sauf indication contraire)

2°) ne tient pas compte de l'interaction de configuration.

### II. - EFFET DE MASSE.

#### A. - Déplacement absolu du niveau

##### 1) - Expression mathématiques des effets de masse

La partie de l'hamiltonien correspondant à l'énergie cinétique, dans le cas d'un atome à noyau infiniment lourd, est :

$$\sum_{i=1}^N p_i^2 / 2m$$

pour un atome à N électrons, chacun de masse m.

$\vec{p}_i$  : quantité de mouvement du ième électron par rapport au noyau.

et lorsque le noyau a une masse finie  $M$ , en négligeant l'énergie de translation de l'atome :

$$\sum_{i=1}^N \frac{p_i^2}{2\mu} + (1/M) \sum_{i>j} \vec{p}_i \cdot \vec{p}_j$$

où  $\mu$  est la masse réduite :  $\mu = Mm / (M + m)$

l'hamiltonien perturbateur s'écrit :

$$\Delta H = 2M^{-1} \sum_{i=1}^N p_i^2 + M^{-1} \sum_{i>j} \vec{p}_i \cdot \vec{p}_j$$

au premier ordre :

$$\delta E^{\circ}(M) = \int_{\tau} \Psi^{(0)*} \Delta H \Psi^{(0)} d\tau$$

$\Delta H$  peut se mettre sous la forme

$$\Delta H = B + K$$

où :

$$B = 2M^{-1} \sum_{i=1}^N p_i^2 \quad \text{et} \quad K = M^{-1} \sum_{i>j} \vec{p}_i \cdot \vec{p}_j$$

Pour un niveau (S L) nous définirons les 2 effets de masse comme suit

$$\bar{B} = (\Psi_{SL}^{\circ} | B | \Psi_{SL}^{\circ}) \quad \text{est l'effet de masse normal ou effet de Bohr}$$

$$\bar{K} = (\Psi_{SL}^{\circ} | K | \Psi_{SL}^{\circ}) \quad \text{est l'effet de masse spécifique}$$

2) - Calcul des effets de masse :

a) Effet de Bohr

Pour l'évaluation de  $\bar{B}$  on montre que (10), au 1er ordre :

$$\bar{B} = - \frac{m}{M} E_{SL}^{\circ}$$

$E_{SL}^{\circ}$  étant l'énergie du niveau S, L de l'atome

à noyau infiniment lourd.

b) Effet de masse spécifique

Pour l'évaluation de  $\bar{K}$  il faut connaître  $\Psi_{sL}^{\circ}$  et calculer l'intégrale correspondante. En fait  $\Psi_{sL}^{\circ}$  ne peut être calculé de façon rigoureuse ; en pratique, on calcule une fonction d'onde approchée  $\Phi_{sL}^{\circ}$  par la méthode de HARTREE-FOCK dont nous rappellerons plus loin le principe. Supposons  $\Phi_{sL}^{\circ}$  calculée :

$$\bar{K} = M^{-1} \left( \Phi_{sL}^{\circ} \left| \sum_{i>j} \vec{p}_i \cdot \vec{p}_j \right| \Phi_{sL}^{\circ} \right)$$

On montre (10) que l'élément de matrice de l'opérateur peut se mettre sous la forme  $(m/M) k_{sL}$  où  $k_{sL}$  est un ensemble d'intégrales effectuées sur les fonctions d'onde mono-électroniques.

$$\bar{K} \simeq (m/M) k_{sL}$$

$k_{sL}$  peut être négatif ou positif.

Ainsi  $\delta E_{sL}^{\circ} = \bar{B} + \bar{K}$  peut être aussi nul, négatif ou positif.

3) - Méthode de HARTREE-FOCK (11)

a) .- Atomes à sous-couches complètes.

Dans l'approximation du champ central, la fonction d'onde  $\Phi^{\circ}$  de l'atome est donnée par un déterminant de Slater :

$$\Phi^{\circ} = \begin{vmatrix} \psi_1(1) & \dots & \psi_1(N) \\ \vdots & & \vdots \\ \psi_N(1) & \dots & \psi_N(N) \end{vmatrix}$$

Les  $\psi_i$  sont des fonctions d'onde mono-électroniques du type de champ central.

$$\psi_i(j) = \frac{1}{r_j} P(nl, r_j) Y_{l_i m_i}(\theta_j, \varphi_j) \delta(\sigma_i, m_{s_i})$$

Les  $P(nl, r)$  obéissent aux conditions :

$$P(0) = 0 ; P(r) \rightarrow 0 \text{ quand } r \rightarrow \infty$$

$$\int_0^{\infty} P^2(r) dr = 1 \quad \text{et} \quad \int_0^{\infty} P(nl, r) P(n'l, r) dr = 0$$

La méthode de HARTREE-FOCK est basée sur le principe de la méthode de variation. La fonction d'onde  $\Phi^{\circ}$  cherchée est celle qui rend minimum l'expression

$$E' = \frac{\int \Phi^{\circ*} H \Phi^{\circ} d\tau}{\int \Phi^{\circ*} \Phi^{\circ} d\tau}$$

Autrement dit, la fonction d'onde étant déterminée, toute variation  $\Delta P_j$  de  $P(nl, r_j)$  entraîne  $\Delta E' = 0$

Avec la forme de fonction d'onde choisie l'expression de  $E'$  est une combinaison linéaire d'intégrales de Slater  $F^k$  et  $G^k$ . Le principe de variation conduit alors à l'équation de FOCK sous la forme particulière aux atomes à sous couches complètes

$$(12) : F \psi_i = \epsilon_i \psi_i \quad (1)$$

où  $F$  est l'hamiltonien de HARTREE-FOCK et  $\epsilon_i$  l'énergie orbitale de la sous-couche  $i$

L'hamiltonien  $F$  dépend en fait de toutes les fonctions d'onde radiale de l'atome. L'ensemble des équations du type (1) est donc un système d'équations intégral-différentielles couplées.

Dans le livre de SLATER (13) nous trouvons un exemple pour la configuration  $1s^2 2s^2$

La résolution de ces équations intégral-différentielles peut-être faite par la méthode numérique (HARTREE) ou analytique (NESBET). Des programmes sur calculatrices électroniques ont été réalisés par divers auteurs, nous avons pu en particulier utiliser ceux de R. K. NESBET (analytique, 14) et de Ch FROESE (numérique, 15)

b) - Atomes possédant des sous-couches incomplètes.

Un seul déterminant ne suffit pas en général. L'expression de  $E'$  est encore une combinaison d'intégrales de SLATER, mais l'opérateur de HARTREE-FOCK,  $F$ , a une expression plus compliquée (16). Pour le calcul sur machine électronique il faut en général consentir à des approximations supplémentaires (17a)

c) - Raffinement de la méthode HARTREE-FOCK.

Dans la méthode de HARTREE-FOCK, la seule approximation est finalement celle du départ, qui suppose pour l'atome une fonction d'onde du type champ central, l'hamiltonien est par contre pris en compte exactement. Une correction à l'approximation initiale, est l'étude de l'interaction de configuration ( $17B$ ) prenant pour fonction d'onde une combinaison de déterminants de SLATER de configurations différentes.

B.) - DEPLACEMENT ISOTOPIQUE DU NIVEAU

Nous avons vu que pour un niveau (S, L) :

$$\delta E_{SL}^{\circ}(M) = B + K$$

$$\text{où } \bar{B} = -\frac{m}{M} E_{SL}^{\circ} \text{ et } \bar{K} = \frac{m}{M} k_{SL}$$

Par définition, le déplacement isotopique,  $\Delta \delta E_{SL}(M, M')$  vaut :

$$\Delta \delta E_{SL}(M, M') = \delta E_{SL}(M) - \delta E_{SL}(M')$$

d'où

$$\begin{aligned} \Delta \delta E_{SL}(M, M') &= \left(-\frac{m}{M} E_{SL}^{\circ} + \frac{m}{M} k_{SL}\right) - \left(-\frac{m}{M'} E_{SL}^{\circ} + \frac{m}{M'} k_{SL}\right) \\ &= \left(\frac{m}{M'} - \frac{m}{M}\right) E_{SL}^{\circ} + \left(\frac{m}{M} - \frac{m}{M'}\right) k_{SL} \end{aligned}$$

soient

$$E_{SL}^{\circ} = -|E_{SL}^{\circ}| \text{ et } k_{SL} = \pm |k_{SL}|$$

Deux cas peuvent se présenter

$$1^{\circ}) \quad E_{SL}^{\circ} = -|E_{SL}^{\circ}| \text{ et } k_{SL} = -|k_{SL}|$$

Dans notre convention  $M < M'$ , le 1er terme dû à l'effet de masse de Bohr est positif, le 2ème terme dû à l'effet de masse spécifique est négatif. Dans ce cas donc les deux effets de masse sont de sens contraire, et  $\Delta \delta E_{SL}(M, M')$  est soit nul, soit négatif, soit positif.



III. - EFFET DE VOLUME.

A. Déplacement absolu d'un niveau.

1) - Passage du déplacement absolu d'un niveau pour un atome à N électrons, au déplacement absolu pour un électron.

a) Noyau non déformé.

Nous avons à calculer la variation de l'énergie potentielle des électrons dans le champ nucléaire entre le cas du noyau ponctuel et celui du noyau à extension finie.

Nous négligerons les interactions d'origine non électrostatique, l'interaction électrons-noyau est alors équivalente à l'interaction électrons-protons.

Considérons alors un atome à N électrons, chacun de charge (-e) autour d'un noyau à Z protons, chacun de charge (+e)

Par rapport à un système d'axes donnés (fig. 3.), nous avons

$r_i$ : distance du ième électron à l'origine

$r_p$ : distance du ième proton à l'origine

$r_{ip}$ : distance entre le ième proton et le ième électron

Les variables angulaires nécessaires pour compléter la définition des positions de l'électron et de proton sont celles utilisées classiquement  $(\theta, \varphi)$

Pour un noyau, assimilé à une charge ponctuelle, à l'énergie potentielle des électrons dans le champ nucléaire correspond le terme

$$U^0 = - \sum_{i=1}^N \frac{Ze^2}{r_i}$$

Pour un noyau à extension finie :

$$U = \sum_{i=1}^N \left( - \sum_{I=1}^Z \int_{\mathcal{V}} \varphi^* \frac{e^2}{r_{Ii}} \varphi dt \right)$$

où

$\varphi$  : fonction d'onde des protons

$\mathcal{V}$  : le " volume nucléaire "

L'hamiltonien perturbateur sera :

$$\Delta H = \sum_{i=1}^N \left[ \left( - \sum_{I=1}^Z \int_{\mathcal{V}} \varphi^* \frac{e^2}{r_{Ii}} \varphi dt \right) + \frac{Ze^2}{r_i} \right]$$

au 1er ordre la variation d'énergie sera :

$$\delta E^0 = \iint \Theta^* \left\{ \sum_{i=1}^N \left[ \left( - \sum_{I=1}^Z \int_{\mathcal{V}} \varphi^* \frac{e^2}{r_{Ii}} \varphi dt \right) + \frac{Ze^2}{r_i} \right] \right\} \Theta dt$$

où  $\Theta$  est la fonction d'onde totale de l'atome ; dans l'approximation de Born- Oppenheimer,

$\Theta$  est un produit d'une fonction d'onde de protons ( $\varphi$ ) et d'une fonction d'onde des électrons ( $\Psi$ ), nous pouvons alors séparer les paramètres électroniques et nucléaires.

Ainsi, si la fonction d'onde est du type déterminant de SLATER ( voir page 12) construit

sur les fonctions d'onde mono-électroniques  $\psi_i$ , nous aurons :

$$\delta E^0 = \sum_{i=1}^N \delta E_i^0 \quad \text{où} \quad \delta E_i^0 = (\psi_i | f_i | \psi_i)$$

où :

$$f_i = \left( - \sum_{I=1}^Z \int_{\mathcal{V}} \varphi^* \frac{e^2}{r_{Ii}} \varphi dt \right) + \frac{Ze^2}{r_i}$$

$\delta E_i^0$  sera le déplacement absolu pour un électron.

Selon les théories habituelles  $f_i$  est supposé nul partout sauf dans le volume nucléaire où il a la valeur :

$$f_i = V(r_i) + \frac{Ze^2}{r_i}$$

de sorte que  $\delta E_i^0$  devient :

$$\delta E_i^0 = \int_{\mathcal{V}} \psi_i \left[ V(r_i) + \frac{Ze^2}{r_i} \right] \psi_i dt$$

Supposons l'intégration sur les variables angulaires effectuées, nous réécrivons  $\delta E_i^0$  sous forme plus classique.

$$\delta E_i^0 = \int_{\psi(r)} \left[ V(r_i) + \frac{Ze^2}{r_i} \right] \psi_i^e(r_i) r^2 dr.$$

Comme les vitesses des électrons sont grandes au voisinage du noyau, on fait un calcul plus précis de  $\delta E_i^0$  en remplaçant

$$[r^2 \psi_i^e] \text{ par } [\phi_1^e(r_i) + \phi_2^e(r_i)]$$

où  $\phi_1(r_i)$  et  $\phi_2(r_i)$  sont les parties radiales de la fonction d'onde relativiste de l'électron  $i$ , calculées pour un champ central.

Finalement :

$$\delta E_i^0 = \int_{\psi(r)} \left[ V(r_i) + \frac{Ze^2}{r_i} \right] [\phi_1^e(r_i) + \phi_2^e(r_i)] dr.$$

La quantité  $[(\phi_1^e + \phi_2^e)/r^2]$ , n'est non nulle en  $r=0$  que pour les électrons  $s$  et  $p_{1/2}$ ; ces électrons seront donc les seuls pour lesquels  $\delta E_i^0$  sera appréciable.

Calcul du déplacement absolu pour un électron.

J.E. ROSENTHAL et G. BREIT (18a) ont donné l'expression de  $\delta E_i^0$  prenant les hypothèses suivantes :

1°)  $\mathcal{V}$  est une sphère de rayon

$$2^\circ) V(r) = \left[ -\frac{n+1}{n} + \frac{1}{n} \left(\frac{r_0}{r}\right)^n \right] \frac{Ze^2}{r}$$

$n=2$  correspond à une distribution de charge uniforme à l'intérieur de la sphère,  $n=-1$  correspond à un noyau assimilé à une charge ponctuelle

Pour un électron  $s$

$$(I, s) \quad \frac{\delta E_s^0}{hc} = \frac{4\pi R_\infty}{Z} a_H^3 \psi(0)^2 \frac{1+\rho}{[\Gamma(2\rho+1)]^2} \frac{(n+1) y_0^{2\rho}}{2\rho(2\rho+n+1)(2\rho+1)} \text{ cm}^{-1}$$

R : constante de Rydberg

$a_H$  : rayon de la première orbite de Bohr de l'hydrogène ;  $a_H = \frac{h^2}{4\pi^2 m e^2}$

$\rho = (1 - Z^2 \alpha^2)^{-1/2}$  où  $\alpha$  : constante de structure fine ;  $\alpha = \frac{2\pi e^2}{hc}$

$$y = \frac{2 Z r}{a_H} \quad \text{et} \quad y_0 = \frac{2 Z r_0}{a_H}$$

$\psi^2(\rho)$  : densité de charge non relativiste au noyau

Pour un électron  $l$  :

$$(I,3) \quad \delta E_l^0 = \frac{2k(k-\rho')}{T^2(2\rho'+1)} \cdot \frac{(n+1) \cdot y_0^{2\rho'}}{2\rho'(2\rho'+n+1)(2\rho'+1)} \left\{ \left[ (l+1)^2 - a^2 \right]^{-1/2} - \left[ l^2 - a^2 \right]^{-1/2} \right\}$$

$\delta$  : séparation de structure fine correspondante au  $l$  particulier

$$\rho' = (k^2 - Z^2 \alpha^2)^{1/2}$$

$k = +1, -2, +2, -3, \dots$  pour les états  $P_{1/2}, P_{3/2}, D_{3/2}, D_{5/2}$

b) - Cas du noyau déformé.

BRIX et KOPFERMANN (19), WILETS (20), HILL et FORD (20), BODMER (21,22) ont calculé l'effet isotopique dû à la déformation du noyau dans le cas d'un noyau qui aurait la forme d'une ellipsoïde de révolution d'axe Oz.

La loi de variation du rayon vecteur,  $r(\theta)$  (fig 4) d'un point de la surface étant :

$$r(\theta) = r_s \left[ 1 + \beta \left( \frac{3}{2} \cos^2 \theta - \frac{1}{2} \right) \right]$$

$r_s$  est le rayon de la sphère de même volume (au 2ème ordre près en  $\beta$ )

Dans le cas d'un ellipsoïde allongé suivant l'axe de révolution, de demi-axes  $a$  et  $b$

$$a = r_s (1 + \beta); \quad b = r_s (1 - \beta/2); \quad (\beta > 0)$$

Dans ces hypothèses,  $(\delta E_s^\circ)_\beta$  étant le complément de déplacement absolu d'un électron  $s$  apporté par la déformation du noyau et  $(\delta E_s^\circ)_{r_0}$  étant le déplacement dû à un noyau sphérique, nous avons (18b):

$$(\delta E_s^\circ)_{r_0} / (\delta E_s^\circ)_\beta \approx \frac{5}{\rho(2\rho+3)} \cdot \frac{1}{\beta^2}$$

B. - Déplacement isotopique d'un niveau.

1) - Passage du déplacement isotopique d'un électron au déplacement isotopique pour un niveau.

Soient  $\delta E_{SL}^\circ(M)$  et  $\delta E_{SL}^\circ(M')$  les déplacements absolus d'un niveau (S L) pour deux isotopes M et M'. Le déplacement isotopique du niveau (SL) sera :

$$\Delta \delta E_{SL}^\circ(M, M') = [\delta E_{SL}^\circ(M) - \delta E_{SL}^\circ(M')]$$

chacun des  $\delta E_{SL}^\circ$  étant

$$\delta E_{SL}^\circ = \sum_{i=1}^N [\delta E_{SL}^\circ]_i$$

d'où

$$\Delta \delta E_{SL}^\circ(M, M') = \sum_i [\Delta \delta E_{SL}^\circ(M, M')]_i$$

$[\Delta \delta E_{SL}^\circ(M, M')]_i$  étant le déplacement isotopique pour un électron  $i$ , égal à

$$[\Delta \delta E_{SL}^\circ(M, M')]_i = [\delta E_{SL}^\circ(M) - \delta E_{SL}^\circ(M')]_i$$

2) - Calcul du déplacement isotopique pour un électron (s)

a) Noyau non déformé.

En utilisant la valeur du déplacement absolu pour un électron  $s$ , nous avons :

$$[\Delta \delta E_{SL}^\circ(M, M')]_s = \frac{4\pi R_{\infty}}{Z} a_H^3 \psi_{(0)}^2 \frac{(1+\rho)(n+1)}{2\rho(2\rho+1)(2\rho+n+1)} \cdot \frac{1}{T^2(2\rho+1)} \left(\frac{2Z}{a_H}\right)^{2\rho} [r_0^{2\rho}(M) - r_0^{2\rho}(M')]$$

Ce déplacement isotopique n'est calculable qu'en se donnant une loi de variation du rayon nucléaire en fonction du nombre de masse, la loi la plus simple est :

$$r_0 = 1,2 M^{1/3} 10^{-13} \text{ cm.}$$

Pour une distribution de charge uniforme, et en utilisant la relation

$$\psi(0) = \frac{ZZ_a^2}{n_a^3} \cdot \frac{dn_a}{dn}, \text{ la relation précédente devient alors :}$$

$$[\Delta \delta E_{SL}^0(M, M')]_A = \frac{Z_a^2}{n_a^3} \cdot \frac{dn_a}{dn} \left\{ \frac{4R_{\infty} \cdot (p+1)}{(2p+1)(2p+3)T^2(2p+1)} y_0^{2p} \frac{M-M'}{M} \right\}$$

On définit la constante de déplacement isotopique pour un électron s :

$$C_{Hh} = \left\{ \frac{4R_{\infty} \cdot (p+1)}{(2p+1)(2p+3)T^2(2p+1)} \cdot y_0^{2p} \frac{M-M'}{M} \right\}$$

dans notre convention ( $M < M'$ ),

$$C_{Hh} < 0 \quad \text{et} \quad [\Delta \delta E_{SL}^0(M, M')]_S < 0$$

les valeurs numériques de  $C_{Hh}$  sont données par HUMBACH (23) pour les valeurs de Z de 30 à 99 et une valeur correspondante de M, en supposant que  $M-M' = 2$  et que  $r_0 = 1,4 M^{1/3} 10^{-13} \text{ cm.}$

D'autres valeurs sont données par BRIX et KOPFERMANN (24) (et IONESCO PALLAS) (27) en supposant  $M-M' = 2$  et  $r_0 = 1,2 M^{1/3} 10^{-13} \text{ cm.}$

b). - Noyau déformé.

Dans le cas de l'ellipsoïde que nous venons de considérer, pour un électron (s) le déplacement isotopique est (30)

$$[\Delta \delta E_{SL}^0(M, M')]_A = \frac{Z_a^2}{n_a^3} \cdot \frac{dn_a}{dn} \cdot C_{iso}$$

où :

$$C_{iso} = C_{Hh} + C_{\beta} ; \quad C_{\beta} = \left[ \frac{3}{10} (2p+3) \cdot M \cdot \frac{\partial \beta^2}{\partial N} \right] C_{Hh}$$

N : nombre de neutrons

pour  $\rho \approx 1$

$$\left[ \Delta \delta E_{SL}^{\circ}(M, M') \right]_d = \frac{Z_a^2}{n_a^3} \cdot \frac{d n_a}{d m} \cdot C_{th} \left[ 1 + \frac{3}{2} M \frac{\delta \beta^2}{\delta N} \right]$$

REMARQUE.

$Q_0$  étant le moment quadripolaire intrinsèque du noyau :

$$(I b) \quad \frac{C_{\alpha}}{C_{th}} = \frac{5}{24} \cdot \frac{2p+3}{Z^2 r_0^4} M \frac{\delta(Q_0^2)}{\delta N}$$

où

$$r_0 = 1,2 M^{1/3} \cdot 10^{-13} \text{ cm}$$

$$Q_0 = \frac{I+1}{I} \cdot \frac{2I+3}{2I-1} Q$$

$Q$  étant le moment quadripolaire mesuré par les méthodes optiques.

C.) - Raffinement du calcul du déplacement isotopique pour un électron (S)

Le calcul du déplacement isotopique exposé utilise les fonctions d'onde calculées pour un champ nucléaire coulombien (noyau assimilé à une charge ponctuelle); or le champ nucléaire effectif est moins attractif que le champ coulombien, il en résulte que la densité de charge de l'électron au noyau, et par conséquent le déplacement isotopique, sont surestimés.

CRAWFORD et SCHAWLOW (25) ont calculé le facteur correctif pour un champ nucléaire du type puits de potentiel et pour  $Z = 81$ ; ce facteur est alors de l'ordre de  $1/2$ .

Pour un champ nucléaire quelconque le facteur correctif ne peut-être calculé par la méthode des perturbations, car son calcul nécessite la connaissance explicite des fonctions d'onde, qui ne sont pas calculables. Une méthode due à K.E. BROCH (26) permet de tourner cette difficulté. IONESCO-PALLAS (27) utilisant cette méthode a calculé le déplacement isotopique pour un électron s, en tenant compte des effets suivants :

- 1°) effet de distorsion des fonctions d'onde
- 2°) effet dû à ce que l'électron est lié au noyau (négligé dans le calcul de BREIT et ROSENTHAL)
- 3°) effet de surface dû à la forme particulière de la distribution des charges (distribution uniforme ou non)
- 4°) effet JOHNSON - TELLER
- 5°) effet de déformation

le déplacement isotopique pour un électron  $s$  est alors

$$[\Delta\delta E(M, M')] = \frac{Z_a^2}{n_a^3} \frac{dn_a}{dn} Q(n) \cdot C_{iso}$$

$Q(n)$  : facteur tenant compte de la correction (2) ; en général  $Q(n) \simeq 1$

$$C_{iso} = C_{th} \left[ S_1 + \left(\frac{3}{2}\right) M \frac{\partial \beta^e}{\partial N} \cdot S_2 \right]$$

$S_1$  et  $S_2$  étant peu différents de 0,76.

Finalement :

$$(I,4) \quad [\Delta\delta E(M, M')]_d \simeq \frac{Z_a^2}{n_a^3} \cdot \frac{dn_a}{dn} \cdot C_{th} \cdot \left[ 1 + \frac{3}{2} M \frac{\partial(\beta^2)}{\partial N} \right] 0.76$$

Nous rapprochons cette formule de celle de BREIT et des autres auteurs cités :

$$(I,5) \quad [\Delta\delta E(M, M')]_d = \frac{Z_a^2}{n_a^3} \cdot \frac{dn_a}{dn} \cdot C_{th} \left[ 1 + \frac{3}{2} M \frac{\partial \beta^2}{\partial N} \right] ; \rho \simeq 1$$

c) Déplacement isotopique d'une transition.

Le déplacement isotopique de chacun des niveaux est négatif dans notre convention. Mais la différence des déplacements isotopiques de chacun des niveaux de la transition, peut être négative ou positive. Pour un niveau l'effet de volume est de sens contraire à l'effet de Bohr mais pour une transition cette conclusion n'est pas toujours valable.

" ODD-EVEN STAGGERING "

Expérimentalement on observe que la position de la composante de l'isotope impair au lieu d'être équidistante de celles des deux isotopes pairs qui l'encadrent, se trouve en général systématiquement plus proche de l'isotope pair le moins lourd; c'est cet effet qui est désigné sous le nom " odd even staggering "; à notre connaissance cet effet n'a pas encore reçu d'explication

D) - Effets d'écran des électrons optiques entre eux.

D'après ce que nous avons vu, le déplacement isotopique d'un niveau de l'atome est la somme des déplacements isotopiques dus à chacun des électrons du cortège électronique ( électrons du coeur et électrons de valence). Le calcul du déplacement isotopique pour une raie nécessite ainsi ceux des déplacements isotopiques de chacun des électrons figurant dans le cortège électronique des niveaux de la transition. Il ne peut donc être fait que si nous connaissons les fonctions d'onde mono-électroniques relativistes de tous les électrons du cortège électronique. En fait nous ne disposons pas de ces données.

Une première approximation consiste à supposer que pour les deux niveaux intéressés le déplacement absolu du coeur est le même. Dans ces conditions le problème se ramène au calcul des déplacements isotopiques des électrons optiques pour chacun des niveaux de la transition. Même dans ces conditions nous ne pouvons pas résoudre le problème, car nous ne savons calculer que le déplacement isotopique d'un seul électron situé dans un champ central.

Une deuxième approximation serait de considérer que le déplacement isotopique d'un ensemble d'électrons est égal à la somme des déplacements isotopiques mono-électronique

L'expérience montre que cette hypothèse ne correspond pas exactement à la vérité on traduit ce fait par la notion de constante d'écran (28). Pour la définir on choisit un niveau de référence auquel on attribue un déplacement isotopique nul.

BRIX (29) KOPFERMANN (30), BLAISE (31), ont donné les valeurs expérimentales des constantes d'écran dans les atomes de mercure, Plomb, Néodyme, Osmium, Ytterbium, Europium, et Gadolinium pour les électrons s, p, d :

$$e_s = \frac{[\Delta\delta E (M, M')]_{s^2}}{[\Delta\delta E (M, M')]_s} \approx 1,6$$

$$e_p = \frac{[\Delta\delta E (M, M')]_{sp}}{[\Delta\delta E (M, M')]_s} \approx 0,9$$

$$e_d = \frac{[\Delta\delta E (M, M')]_{sd}}{[\Delta\delta E (M, M')]_s} \approx 0,8$$

$\Delta\delta E (M, M')$  étant ici le déplacement isotopique calculé par rapport au niveau de référence choisi.

CHAPITRE II.

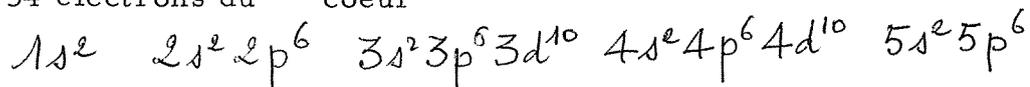
APPLICATION AU CAS DU BARYUM

I) Caractéristiques du Baryum.

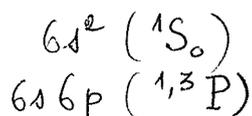
1) - Caractéristiques électroniques.

Le cortège électronique du Baryum comprend 56 électrons que nous divisons en deux groupes :

- les 54 électrons du " coeur "



- les 2 électrons de valence dont nous considérons les états suivants :



2) - Caractéristiques nucléaires. (cf page 1)

II) - Effet de Bohr.

La différence dans les nombres d'ondes d'une raie donnée par deux isotopes à cause de l'effet Bohr est

$$\Delta \bar{B} = \frac{m (M_1 - M_2)}{M_1 M_2} \sigma$$

Le tableau suivant donne les valeurs de l'effet de Bohr dans les raies des spectres I du Baryum ( pour  $M_1 = 136$  ;  $M_2 = 138$ ) qui nous intéressent :

Nom de la Transition	longueur d'onde en Å	Nombre d'onde en K	Effet de Bohr en mK
$6s^2 ({}^1S_0) - 6s6p ({}^1P_1)$	5535,48	18.060,26	- 1,0 <sub>5</sub>
$6s^2 ({}^1S_0) - 6s7p ({}^1P_1)$	3071,58	32.547,08	- 1,8 <sub>8</sub>
$6s^2 ({}^1S_0) - 5d6p ({}^1P_1)$	3051,11	28.554,26	- 1,6 <sub>6</sub>

III) - Effet de masse spécifique.

1) - Niveaux en couplage LS.

Nous avons à calculer

$$\bar{K} = M^{-1} (\Phi | \sum_{i>j} \vec{p}_i \cdot \vec{p}_j | \Phi)$$

Nous regardons  $\vec{p}$  comme un opérateur tensoriel de rang 1 et nous utilisons la relation (32)

$$(l'm' | p_q^1 | lm) = \frac{\hbar}{2\pi i} [(l'm' | C_q^1 | lm) \cdot F]$$

où :

$$F = \int_0^\infty [R(n'l', r) \left( \frac{1}{r} \frac{d}{dr} r + \frac{l(l+1) - l'(l'+1)}{2r} \right) R(nl, r)] r^2 dr$$

Cette relation montre que les éléments de matrice de l'opérateur  $p^{(1)}$  sont proportionnels à ceux de l'opérateur  $C^{(1)}$ , les  $C^{(k)}$  étant les opérateurs tensoriels de rang k utilisés dans le calcul de l'interaction Coulombienne Q entre électrons (33) :

Ceci nous dispense de chercher les coefficients angulaires des éléments de matrice de l'opérateur  $K$  qui sont identiques à ceux des intégrales de SLATER de rang 1 déjà calculés pour l'interaction coulombienne.

La condition de non-nullité des éléments de matrice de  $K$  est donc donnée dans Condon et Shortley (p. 176):

$$l' = l \pm 1$$

REMARQUE :

1. - Lorsqu'on prend comme unité de longueur le rayon de la 1ère orbite de Bohr ( $a_H$ ) l'intégrale  $F$  devient (10) :

$$F = (1/a_H) J(n'l', nl)$$

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

2. - L'expression de la partie de  $K$  relative à l'interaction d'un électron d'une couche incomplète avec les électrons d'une couche complète est indépendante du terme  $\chi_{SL}$  de l'atome (33) Le tableau suivant donne les coefficients angulaires de  $J^2$  qui nous intéressent :

COUCHE INCOMPLETE

COUCHE COMPLETE	s	p	d
$s^2$	0	1/3	0
$p^6$	1	0	2/5
$d^{10}$	0	2/3	0

Entre deux couches complètes nous aurons donc :

	$s^2$	$p^6$	$d^{10}$
$s^2$	0	2	0
$p^6$	2	0	4
$d^{10}$	0	4	0

Pour la partie de  $\overline{K}$  relative à l'interaction entre couches incomplètes les coefficients angulaires sont tabulés dans un grand nombre de cas (33). Nous donnons ci-après les expressions de  $\overline{K}$  pour les niveaux qui nous intéressent dans le cas du Baryum.

$$\underline{6s^2 \ ^1S_0}$$

$$K = -2 \frac{m}{M} R_{\infty} \left\{ \sum_{n=2}^5 \sum_{n'=1}^6 2J^e(np, n's) + \sum_{n=3}^4 \sum_{n=2}^5 4J^e(nd, n'p) \right\}$$

$$K = -2 \frac{m}{M} R_{\infty} \left\{ \left[ \sum_{n=2}^5 \sum_{n'=1}^5 2J^e(np, n's) + \sum_{n=3}^4 \sum_{n=2}^5 4J^e(nd, n'p) \right] + \left[ \sum_{n=2}^5 J^e(np, 6s) + \frac{1}{3} (\pm J^e(6p, 6s) + 2 \sum_{n=3}^4 J^e(6p, nd)) \right] \right\}$$

Le signe + correspondant à  $^3P$  et le signe - à  $^1P$

3. - La fonction R, intervenant dans les intégrales J est :

$$R(nl, r) = P(nl, r) / r$$

Nous rappelons que dans la méthode de HARTREE-FOCK, la fonction d'onde mono-électronique s'écrit :

$$\psi(nl, r) = (P(nl, r) / r) Y_{l m}(\theta, \varphi) \delta(\sigma, m_s)$$

2) - Niveaux perturbés.

a). Cas de  $\underline{6s^2 \ (^1S_0)}$

Perturbation par  $np^2 \ (^1S_0)$

Les interactions de configurations les plus importantes pour corriger la valeur de  $\overline{K}$  seront celles de  $np^2 ({}^1P)$  et  $n p n' p ({}^1P)$ , (34).

Ici encore les calculs des éléments non diagonaux de  $Q$  et de  $\overline{K}$  sont simultanés :

$$\begin{aligned} (6s^2 {}^1S_0 | Q | np^2 {}^1S_0) &= -\frac{1}{\sqrt{3}} G^1(np, 6s) \\ (6s^2 {}^1S_0 | K | np^2 {}^1S_0) &= 2 \frac{m}{M} R_\infty \frac{1}{\sqrt{3}} J^2(np, 6s) \end{aligned}$$

finalement :

$$\overline{K}([6s^2]) = \cos^2\theta \overline{K}(6s^2) + \sin^2\theta \overline{K}(np^2) + \frac{4}{\sqrt{3}} \frac{m}{M} R_\infty \sin\theta \cos\theta J^2(np, 6s)$$

en supposant que :

$$\psi([6s^2]) = \cos\theta \psi(6s^2 {}^1S_0) + \sin\theta \psi(np^2 {}^1S_0)$$

Perturbation par  $np, n' p ({}^1S_0)$

Le même processus de calcul s'applique

$$\begin{aligned} (d^2 {}^1S_0 | Q | np n' p {}^1S_0) &= -\sqrt{\frac{2}{3}} R^1(pp', dd) \\ (d^2 {}^1S_0 | K | np n' p {}^1S_0) &= 2 \frac{m}{M} R_\infty \sqrt{\frac{2}{3}} J(np, 6s) J(n'p, 6s) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \overline{K}([6s^2]) &= \cos^2\theta \overline{K}(6s^2) + \sin^2\theta \overline{K}(np, n'p) \\ &\quad + 4 \sqrt{\frac{2}{3}} \frac{m}{M} R_\infty \sin\theta \cos\theta J(np, 6s) J(n'p, 6s) \end{aligned}$$

b). Cas de  $6s6p ({}^1, {}^3P)$

Comme dans le cas précédent, nous nous sommes intéressés seulement à la perturbation par  $dp ({}^1, {}^3P)$ .

$$(dp {}^1, {}^3P | Q | dp {}^1, {}^3P) = -\sqrt{2} \left[ \frac{1}{5} R^2(dp, sp) \pm \frac{1}{3} R^1(dp, ps) \right]$$

L'élément non diagonal de l'interaction coulombienne est donné par G. RACAHA (35) :

Le signe (+) correspondant à  ${}^1P$  et le signe (-) à  ${}^3P$

On en déduit l'expression corrigée pour  $\overline{K}$

REMARQUE.

Nos calculs traitent des interactions entre configurations " non spectroscopiques " c'est-à-dire des configurations bâties sur les fonctions d'onde calculées par la méthode de HARTREE-FOCK pour les niveaux  $6s^2(^1S_0)$  et  $6s6p(^1,^3P)$  ; de ce fait, par exemple, le niveau  $5d\ 6p(^1P)$  calculé ne correspond en rien au niveau spectroscopique  $5d\ 6p(^1P)$  réellement observé.

3) - Application numérique.

a). Calcul des fonctions d'onde par la méthode de HARTREE-FOCK.

Les fonctions d'onde analytiques de Ba I ont été calculées par

MM. C. MOSER, J. BAUCHE, M. KLAPISCH.

avec le programme de R.K. NESBET sur la calculatrice I.B.M. 704 du Centre Blaise-Pascal (C.N.R.S.).

Dans la méthode analytique les fonctions d'onde radiales monoélectroniques sont données par les combinaisons linéaires :

$$P(nl, r) = \sum_i c_{nl,i} N_{li} r^{u_{li}} e^{-Z_{li} r}$$

où  $N_{li}$  est la constante de normalisation de la fonction de base  $r^{u_{li}} e^{-Z_{li} r}$

et  $c_{nl,i}$  le coefficient déterminé par la méthode HARTREE-FOCK.

Le tableau (2)\* donne la liste des  $(N_{li}, Z_{li})$  commun aux calculs sur  $6s^2(^1S_0)$  et  $6s\ 6p(^1,^3P)$ . Le tableau (3)<sup>i</sup> donne la liste des  $c_{nl,i}$ . Outre les valeurs des  $c_{nl,i}$  le programme de NESBET donne aussi l'ensemble des intégrales de SLATER nécessaire pour le calcul de l'interaction de configuration.

\* Les tableaux 2, 3, 4, 5, 6 de ce paragraphe sont donnés en annexe qui peut être obtenu au Laboratoire Aimé COTTON - C.N.R.S. (Bellevue).

b). Calcul des intégrales J

Les intégrales J ont été calculées avec le programme 007 fait par J. BAUCHE sur la calculatrice UNIVAC 1107 de la Faculté des Sciences.

Le tableau (4)\* donne les valeurs des intégrales J:

c). Calcul de l'interaction de configuration.

Les tableaux (5)\* et (6)\* donnent les valeurs de  $\sin \theta$  pour les interactions de configurations  $6s^2(^1S_0)$  avec  $np^2(^1S_0)$ ; et  $6s^2(^1S_0)$  avec  $n p n' p (^1P) ^1P(^1S_0)$ .

L'application numérique, pour l'interaction de  $6s6p(^1P)$  avec  $5d6p(^1P)$ , donne une valeur entièrement négligeable dans nos approximations, puisque  $\sin \theta = 0,004$  et  $0,003$  pour  $^3P$  et  $^1P$

d). Résultats.

Nature de la transition.	longueur d'onde en Å	Nombre d'onde, en K	Effet de masse spécifique en mK
$6s^2(^1S_0) - 6s6p(^1P_1)$	5535,48	18.060,26	-0,2
$6s^2(^1S_0) - 6s6p(^3P)$	7911,34	12.636,62	-0,2 <sub>5</sub>

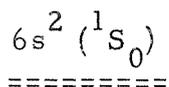
Pour une différence de masse 1.

REMARQUE.

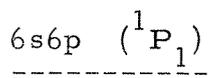
Nous rappelons que dans un niveau

$$K = -2 \frac{m}{M} R_{\infty} [f(J)]$$

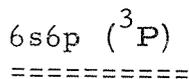
Il nous semble intéressant de donner ci-après les différentes valeurs de  $f$  (J) pour les niveaux  $6s^2(^1S_0)$ ;  $6s6p(^1,^3P)$  en faisant apparaître la part due au " coeur " et celle due aux électrons de valence.



Electrons du " coeur "	:	+ 2666,546732
Electrons de valence	:	+ 0,552606
Correction due à la perturbation.	:	- 0,025788
<u>f (J)</u>	:	<u>2667,073550</u>



Electrons du " coeur "	:	+ 2666,719253
Electrons de valence	:	+ 0,384000
Correction due à la perturbation	:	- 0,000246
<u>f (J)</u>	:	<u>2667,103499</u>



Electrons du "coeur "	:	+ 2666,707038
Electrons de valence	:	+ 0,406078
Correction due à la perturbation.	:	- 0,000246
<u>f (J)</u>	:	<u>2667,113362</u>

Nous voyons que d'une configuration à l'autre, la contribution des électrons du " coeur " n'est pas la même.

#### IV) - Effet de Volume.

Les déplacements isotopiques des électrons  $p_{3/2}$ ,  $d_{5/2}$  sont entièrement négligeables devant celui de l'électrons  $p_{1/2}$  (36).

Le déplacement absolu de l'électron  $p_{1/2}$  par rapport à celui de l'électron  $s$  peut être calculé d'après les relations (I,2) et (I,3) :

$$\frac{\delta E(np_{1/2})}{\delta E(ns)} = \frac{2(1-\rho)}{1+\rho} \frac{\{[4-Z^2\alpha^2]^{1/2} - 1 - (1-Z^2\alpha^2)^{1/2}\}^{-1}}{(4Z_a^2 \frac{dn_a}{dn}) n_a^3} \frac{\delta}{R_\infty}$$

dans le cas du Baryum II :

$$Z = 56 \quad \rho = (1-Z^2\alpha^2) = 0,92 \quad n_a^3 = 19,9 \quad Z_a^2 \frac{dn_a}{dn} \approx 4 \quad \delta = 1690 \text{ cm}^{-4}$$

il vient :

$$\frac{\delta E(np_{1/2})}{\delta E(ns)} \approx 4/100$$

Déplacement isotopique d'un électron  $ns$ .

Nous avons d'après (I4) et (I5); c'est-à-dire " au 1er ordre ", et au 2° ordre

$$\Delta \delta E(ns) = \frac{Z_a^2}{n_a^3} \cdot \frac{dn_a}{dn} \cdot c_{th} \left[ 1 + \frac{3}{10} (2\rho+3) M \frac{\partial \beta^2}{\partial N} \right]$$

et :

$$\Delta \delta E(ns) \approx \frac{Z_a^2}{n_a^3} \cdot \frac{dn_a}{dn} \cdot c_{th} \left[ 1 + \frac{3}{2} M \frac{\partial \beta^2}{\partial N} \right] \cdot 0,76$$

D'après l'équation (Ib) nous avons

$$\frac{3}{10} (2\rho+3) M \cdot \frac{\partial \beta^2}{\partial N} = \frac{5}{24} \cdot \frac{2\rho+3}{Z^2 r_0^4} M \cdot \frac{\partial \beta_0^2}{\partial N}$$

où

$$Q_0 = \frac{I+1}{I} \cdot \frac{2I+3}{2I-1} \cdot Q$$

Dans le cas du Baryum I nous prendrons pour l'électron  $6s$ :

$$n_a^3 = 4,2 \quad ; \quad Z_a^2 \frac{dn_a}{dn} = 4 \quad ; \quad c_{th} = -100 \text{ mk} \quad ; \quad M = 135 \quad ; \quad I = \frac{3}{2}$$

$$^{135}Q = 0,2 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 \quad ; \quad ^{137}Q = 0,3 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 \quad ; \quad r_0 = 1,2 \cdot 10^{-13} \text{ cm} \quad M = 6,2 \cdot 10^{-13}$$

Ce qui donne

$$\frac{3}{10} (2\rho+3) M \frac{\partial \beta^2}{\partial N} = -18,5 \cdot 10^{-2} \quad c_\alpha = 18,5 \text{ mk}$$

D'où les valeurs des effets de volume pour l'électron  $6s$  au 1er et au 2° ordre :

1er ordre :  $-19,4 \text{ mk}$

2° ordre :  $-14,7 \text{ mk}$

( Le signe - vient du fait que, dans nos conventions, la différence  $(M-M')$  qui intervient dans le calcul des effets de volume est négative  $(M < M')$  ).

### CHAPITRE III.

#### DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX ET RESULTATS.

##### INTRODUCTION.

Mesurer le déplacement isotopique d'une raie c'est déterminer la différence de longueur d'onde, ou de nombre d'onde, de la raie quand on passe d'un isotope à un autre.

Le problème est donc la comparaison des longueurs d'onde de plusieurs isotopes d'un élément, le Baryum, qui a cinq isotopes pairs et deux isotopes impairs ( la longueur d'onde d'un isotope impair est celle du centre de gravité de ses composantes hyperfines ). Lorsque dans une raie donnée, les composantes isotopiques et hyperfines peuvent être résolues et identifiées, ce problème de comparaison de longueurs d'onde, ou de nombre d'onde, est relativement simple. Mais tel n'est pas le cas des raies du Baryum qui présentent une structure complexe, dont la largeur est comparable à celle des raies émises par une cathode creuse. Pour séparer toutes les composantes, un pouvoir de résolution de l'ordre de  $3 \cdot 10^8$  serait nécessaire pour la raie de résonance à  $5536 \text{ \AA}$  (il est probable que la largeur naturelle de cette raie est de  $2 \times 10^{-4} \text{ \AA}$  et en ce cas la limite du pouvoir de résolution qui peut être réalisé est  $2,7 \cdot 10^7$ ); pour les autres raies'un pouvoir de résolution du même ordre ou même supérieur serait nécessaire, mais même avec cette résolution, il serait impossible d'identifier avec certitude chacune des composantes isotopiques, à cause des composantes hyperfines des isotopes impairs. Ainsi le problème ne peut être résolu qu'en utilisant des isotopes enrichis afin d'éliminer les composantes parasites ; la comparaison des longueurs d'onde des différents isotopes peut alors être faite, soit par spectrographie soit par spectrométrie.

Dans ce chapitre nous exposerons d'abord la méthode spectrographique, en émission, et ensuite la méthode spectrométrique, en absorption.

## I) Méthode Spectrographique.

### 1) Les isotopes enrichis.

Les mélanges enrichis de tous les isotopes stables du Baryum ont été obtenus du Laboratoire d'OAK-RIDGE; les isotopes enrichis en  $^{138}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Ba}$ ,  $^{136}\text{Ba}$ ,  $^{134}\text{Ba}$ , ont été aussi obtenus de HARWELL et utilisé dans la détermination du déplacement isotopique de la raie 5536 Å. La quantité moyenne d'isotope enrichi utilisé est à chaque fois de l'ordre de 5mg. Le tableau (7) donne les différents pourcentages d'enrichissement des isotopes utilisés. Afin d'améliorer la précision des résultats nous avons également utilisé les isotopes  $^{130}\text{Ba}$ , et  $^{136}\text{Ba}$  à des enrichissements donnés au tableau (8)

### 2) La source.

La figure (5) montre le schéma de la cathode creuse. La cathode est formée par un tube, de diamètre intérieur 32,5mm, de longueur 100mm, dont la partie inférieure est fermée par une pièce circulaire portant un logement en son milieu. Dans ce logement vient s'emboîter la cavité cathodique, de diamètre intérieur 5mm, de profondeur 12mm; son extrémité ouverte comporte un pas de vis qui est utilisé pour la mise en place dans la cathode creuse d'une petite quantité d'isotope.

Un tube de verre isole la partie cathodique de l'anode. La distance entre l'extrémité inférieure de l'anode et la surface plane de la cathode est de 30mm. Le tube latéral T conduit à une 2ème cathode creuse identique à la 1ère. Au milieu de T est raccordé un piège à charbon activé et un tube portant un joint hémisphérique permettant ainsi de relier la cathode creuse à un banc de pompage. Pour garder l'étanchéité de la cathode creuse tous les joints sont picéinés.

Une fois remplie du gaz porteur, néon ou argon, la cathode creuse est retirée du banc de pompage et mise en place. L'une des deux cathodes contenant l'isotope 138 du Baryum, et l'autre, un des autres isotopes, lors des comparaisons de longueurs d'onde des poses alternées étaient faites. La lentille  $L_1$  étant fixe, le passage de la cathode creuse contenant  $^{138}\text{Ba}$  à celle contenant l'autre isotope se fait simplement en plaçant celle-ci sur le même support fixe, opération facile les cathodes étant scellées et détachées du banc de pompage.

L'expérience montre que la cathode creuse ainsi faite, une fois bien dégazée, peut opérer pendant des heures sur plusieurs semaines lorsque le gaz porteur, le néon, à une pression de 2mm de Hg, est purifié par le charbon actif refroidi à l'azote liquide. Lorsque le gaz porteur est l'argon, à une pression de 1mm (comme c'est le cas pour la raie 3501 Å) le charbon ne peut pas être refroidi à l'azote liquide, car il absorberait presque entièrement l'argon; la cathode peut encore fonctionner, dans les conditions de l'expérience pendant 24 heures, le spectre obtenu étant libre de toute bande due à des impuretés. Lorsque les bandes commencent à apparaître la différence de potentiel anode-cathode commence à croître; la valeur initiale étant approximativement de 150 volts, lorsque la différence de potentiel augmente de 10 volts, l'argon est changé. La partie cathodique est refroidie à l'eau et non à l'azote liquide. Un refroidissement à l'azote liquide aurait diminué la largeur des raies d'approximativement 40% mais en ce cas il y aurait le danger des erreurs systématiques dues à un mélange insuffisant des composantes hyperfines des isotopes impairs (voir page 47).

### 3) Spectrographe et montage optique.

L'appareillage spectroscopique avait à travailler sur 3 raies, une dans le visible à 5536 Å et deux dans le proche ultraviolet à 3501 Å et 3072 Å

La figure (6) représente le schéma du montage utilisé. La source (S) est une cathode creuse, déjà décrite; la lentille ( $L_1$ ) de distance focale 15cm forme une image de la cavité à l'infini; la lentille ( $L_2$ ) de distance focale 50cm projette sur la fente d'un spectrographe l'image agrandie, dans le rapport  $\frac{L_2}{L_1} = \frac{50}{15}$ , de la cavité cathodique et superposée

à cette image le système d'anneaux donné par l'interféromètre FABRY PEROT. Pour diminuer les causes d'erreurs dues à une illumination non uniforme des lames de l'interféromètre, un diaphragme D, ramène la surface utilisée de la lame à un cercle de 1cm de diamètre.

Pour la raie  $5536 \text{ \AA}$  l'étalon était formé de deux lames légèrement aluminées, séparées par une cale en silice fondue de 50,075mm d'épaisseur, donnant un intervalle entre ordre de 99,85 mK et une limite de résolution instrumentale de 40 mK (la largeur de la raie émise par la source, dans les conditions de l'expérience étant approximativement de 32 mK).

Pour les raies à  $3501 \text{ \AA}$  et  $3072 \text{ \AA}$ , les lames aluminées étaient séparées par une cale en silice fondue de 30,035mm d'épaisseur donnant un intervalle entre ordre de 166,47m et une limite de résolution instrumentale de 40 mK ( la largeur des raies émises par la source, dans les conditions de l'expérience étant approximativement de 45 mK).

Ces limites de résolution, étant approximativement égales aux largeurs Doppler des raies du Baryum, permettaient d'une part d'obtenir une grande luminosité sans élargissement excessif, d'autre part un mélange satisfaisant des composantes hyperfines des isotopes impairs qui s'étendent sur un intervalle de 20 mK, pour la raie  $5536 \text{ \AA}$ , et un intervalle de 20 à 30 mK pour les raies ultraviolettes (B).

Pour les raies de résonance ( $5536 \text{ \AA}$ ) le temps de pose était de 1 à 5 minutes, suivant le courant (de 12 à 30 mA) dans la cathode creuse. Pour les 2 raies ultraviolettes le temps de pose était de 1 à 6 minutes pour des courants de 20 à 40 mA. Pour les raies ultraviolettes un spectrographe plus dispersif que celui employé pour l'étude de la raie de résonance a été utilisé car la raie du Baryum  $3072 \text{ \AA}$  était gênée par les raies du fer à 3068 et  $3074 \text{ \AA}$  et les raies du néon à 3064 et  $3077 \text{ \AA}$ ; la raie du Baryum à  $3501 \text{ \AA}$  était, elle, gênée par la raie du fer à  $3500,57 \text{ \AA}$  et celle du néon  $3501,22 \text{ \AA}$ , c'est à cause de cette dernière que le néon a été remplacé par l'argon, comme gaz porteur dans la cathode creuse pour l'étude de la raie  $3501 \text{ \AA}$ .

A) MESURES DES DIFFERENCES DE DIAMETRE D'ANNEAUX DE FABRY-PEROT  
DONNES PAR LES ISOTOPES ENRICHIS ET CALCUL DES DEPLACEMENTS  
ISOTOPIQUES.

1) - Procédés de mesures.

La méthode utilisée pour obtenir des interférogrammes consiste à faire des photographies alternées du système d'anneaux produits par la cathode creuse contenant du Baryum enrichi en  $^{138}\text{Ba}$  et par la cathode creuse contenant du Baryum enrichi en un des autres isotopes, à des intervalles de temps égaux.

Les interférogrammes obtenues sont mesurées avec un micromètre comparateur. Pour la raie de résonance les diamètres de la 2ème à la 7ème franges étaient mesurés; pour les raies ultraviolettes les diamètres de la 3ème à la 6ème franges étaient mesurés. La mesure d'un diamètre revient à deux pointés du centre de gravité de la frange. Chacun des diamètres était mesuré 3 fois, par deux personnes. Pour la raie de résonance la valeur moyenne des différences de diamètres pour chaque paire d'isotopes était faite sur plus de 800 mesures. Pour les raies ultraviolettes la moyenne obtenue pour chaque paire d'isotopes était faite sur plus de 300 mesures.

2) - Conversion des différences de diamètres d'anneaux de F.P. en  
nombre d'onde.

Sur chaque plaque des interférogrammes alternés, dûs à l'isotope 138 que nous notons A et un autre isotope que nous notons B, permettent de comparer les diamètres  $d_A$  et  $d_B$  des systèmes d'anneaux d'interférence correspondant. Pour avoir la différence de longueur d'onde ( $\lambda_A - \lambda_B$ ) ou de nombre d'onde ( $\sigma_A - \sigma_B$ ), il faut convertir les différences de diamètres en nombre d'onde.

Considérons le système d'anneau A, projeté sur la fente du spectrographe.

Soit  $P_0$  l'ordre d'interférence au centre,  $P$  un nombre entier et  $\varepsilon$  l'excédent fractionnaire. Nous avons :

$$2e = P_0 \lambda_A = (P + \varepsilon) \lambda_A$$

Le premier anneau brillant correspond à  $i_1$  tel que :

$$2e \cos i_1 \simeq 2e \left(1 - \frac{i_1^2}{2}\right) = (P_0 - \varepsilon) \lambda_A$$

Le  $n$ ème anneau brillant correspond à  $i_n$  tel que :

$$2e \cos i_n \simeq 2e \left(1 - \frac{i_n^2}{2}\right) = (P_0 - \varepsilon - n + 1) \lambda_A$$

Si  $f$  est la distance focale de la lentille qui projette le système d'anneau  $A$  sur la fente du spectrographe, les diamètres des 1er et  $n$ ème anneaux sont respectivement :

$$d_1 = 2f \sin i_1 = 2f \sqrt{\frac{\varepsilon}{e}} \lambda_A$$

$$d_n = 2f \sin i_n = 2f \sqrt{\frac{\varepsilon + n - 1}{e}} \lambda_A$$

$\sigma_A$  étant le nombre d'onde et  $\Delta\sigma$  l'intervalle entre ordre, ( $\Delta\sigma = 1/2e$ ) :

$$d_1^2 = 4f^2 \frac{2\varepsilon}{\sigma_A} \Delta\sigma \quad d_n^2 = 4f^2 \frac{2(\varepsilon + n - 1)}{\sigma_A} \Delta\sigma$$

d'où

$$(II, 1) \quad \Delta\sigma = \frac{\sigma_A}{8f^2} \cdot \frac{1}{n-1} \cdot (d_n^2 - d_1^2) = a \frac{d_n^2 - d_1^2}{n-1}$$

où

$$a = \sigma_A / 8f^2 \quad \text{mk/mm}^2$$

En fait nous avons déterminé le coefficient de conversion d'une manière indirecte qui évite la nécessité de déterminer avec précision la valeur de  $f$  et le rapport entre la longueur de la fente d'entrée du spectrographe et celle de son image sur la plaque photographique.

En effet, il suffit de connaître les valeurs mesurées des diamètres  $d_n$  et  $d_m$  dans un système d'anneaux, pour en déduire  $a$ , d'après (II, 1).

$$a = \Delta\sigma : \frac{d_m^2 - d_n^2}{n-m}$$

Nous avons trouvé ainsi pour les raies étudiées :

$\lambda = 5\ 536 \text{ \AA}$	$a = 10,3$	mK/mm <sup>2</sup>
$\lambda = 3\ 501 \text{ \AA}$	$a = 14,4$	mK/mm <sup>2</sup>
$\lambda = 3\ 072 \text{ \AA}$	$a = 17,3$	mK/mm <sup>2</sup>

3) - Calcul des différences de nombre d'onde des raies des isotopes enrichis à partir des valeurs mesurées des diamètres d'anneaux, de Fabry-Perot.

Dans chaque plaque une série d'interférogrammes alternés était faite; prenons par exemple le cas de " 138 " et " 136 " (mélanges enrichis en <sup>138</sup>Ba et <sup>136</sup>Ba), nous avons ainsi :

" 138 " - " 136 " - " 138 " - " 136 " .....

Nous pouvons numéroter les interférogrammes de 1 à n.

1 - 2 - 3 - 4 .....

Dans chaque interférogramme plusieurs diamètres (4 ou 6) sont mesurés, nous avons ainsi :

dans l'interférogramme 1 correspondant à " 138 "

" 138 " <sub>d<sub>11</sub></sub> " 138 " <sub>d<sub>12</sub></sub> " 138 " <sub>d<sub>13</sub></sub> .....

dans l'interférogramme 2 correspondant à " 136 "

" 136 " <sub>d<sub>21</sub></sub> " 136 " <sub>d<sub>22</sub></sub> " 136 " <sub>d<sub>23</sub></sub> .....

etc.....

La valeur moyenne du ième diamètre de " 138 " (dans les interférogrammes 1 et 3) était comparée à celle du ième diamètre de " 136 " (dans l'interférogramme 2); c'est-à-dire

$${}^{138}\text{d}_{1,3_i} = \left[ \left( {}^{138}\text{d}_{1_i} + {}^{138}\text{d}_{3_i} \right) / 2 \right] \text{ comparée à } {}^{136}\text{d}_{2_i}$$

D'après ce qui précède, la différence de diamètre exprimé en nombre d'onde est :

$$\delta\sigma = a \left[ \left( {}^{136}\text{d}_{2_i} \right)^2 - \left( {}^{138}\text{d}_{1,3_i} \right)^2 \right]$$

Pour calculer l'erreur probable commise sur  $\delta\sigma$  nous opérons de la manière suivante, soient  $\delta\sigma_1, \delta\sigma_2, \dots, \delta\sigma_n$  les différences de nombre d'onde mesurées, entre 2 isotopes, l'erreur quadratique ou erreur efficace est :

$$\Delta(\delta\sigma) = \left[ \sum_{i=1}^n (\delta\sigma_i - \delta\sigma_m)^2 \right]^{1/2}$$

où  $\delta\sigma_m$  est la moyenne arithmétique des  $\delta\sigma_1, \delta\sigma_2, \dots, \delta\sigma_n$   
l'erreur probable sur N mesures est alors :

$$\varepsilon = \Delta\delta\sigma / N^{1/2}$$

Le tableau (9)<sup>x</sup> donne les valeurs des diamètres tirées d'une plaque de 23 interférogrammes des mélanges "136" et "138" pour la raie 5536 Å numéroté de 1 à 23. Nous en déduisons les  $\delta\sigma_1, \dots, \delta\sigma_n$  de la manière exposée à la page (41), ensuite  $\delta\sigma_m$  puis  $\Delta\delta\sigma$  d'où  $\varepsilon$ .

Le tableau (10)<sup>x</sup> donne un calcul analogue pour les diamètres tirés d'une plaque de 13 interférogrammes, pour la raie 3501 Å, et les mélanges "136" et "138".

Dans l'étude de la raie 5536 Å, pour chaque paire d'isotopes enrichis ("138" - "137"; "138" - "136"; .....), 7 séries de 23 interférogrammes chacune ont été faites, ainsi pour chaque comparaison entre "138" et un des autres isotopes enrichis nous avons 7 tableaux du genre du tableau (9) et nous en avons déduit l'erreur probable sur la valeur finale de  $\delta\sigma$ .

Pour les raies 3501 Å et 3072 Å, respectivement 14 séries de 7 interférogrammes chacune et 9 séries de 13 interférogrammes chacune ont été faites, et nous en avons déduit comme pour la raie 5536 Å, l'erreur probable  $\varepsilon$  sur la valeur finale de  $\delta\sigma$ .

#### 4) - Calcul du déplacement isotopique.

Pour obtenir le déplacement isotopique à partir des différences de nombre d'onde des échantillons enrichis,  $\delta\sigma$ , il faut multiplier ces derniers par un facteur de conversion dépendant des différents pourcentages d'enrichissement des isotopes présents dans le mélange. En effet, les mesures de déplacement isotopique reviennent à faire des pointés de centre de gravité d'une raie complexe, dû à la présence simultanée de plusieurs isotopes, car en général les isotopes ne sont pas enrichis de 100 %. Ainsi la position du centre de

X) Ces tableaux sont donnés en annexe.

gravité de la raie complexe ne coïncide pas avec la position de l'isotope, (pour les isotopes impairs, la position de l'isotope étant celle du centre de gravité de la structure hyperfine).

Considérons le cas du déplacement isotopique 138-136. Supposons l'isotope 138 enrichi à 100 %, la composition du " 136 " étant la suivante :

138	137	136	135	134	132	130
26,1	15,5	<u>52,0</u>	5,9	0,6	-	-

Les mesures donnent  $\delta\sigma$ , en mK, comme différence entre la position de la raie de  $^{138}\text{Ba}$  et la position du centre de gravité des raies des isotopes contenus dans le mélange enrichi en  $^{136}\text{Ba}$ . Soient  $[137]$ ,  $[136]$ ,  $[135]$  et  $[134]$  les déplacements isotopiques entre 137, 136, 135 et 137 et 138. Chacun de ces déplacements étant plus petit que la largeur de raie, nous avons (fig 7) :

$$\frac{15,5}{100} [137] + \frac{52,0}{100} [136] + \frac{5,9}{100} [135] + \frac{0,6}{100} [134] =$$

connaissant  $[137]$  ;  $[135]$  et  $[134]$  nous pouvons déduire  $[136]$

Pour chaque différence de nombre d'onde  $\delta\sigma$  entre la position de l'isotope 138 et celle du centre de gravité de la raie complexe correspondant à un des 6 autres isotopes nous avons une équation de ce genre. Finalement nous avons un système linéaire de 6 équations à 6 inconnues à résoudre. Nous avons résolu le système par approximation successive le calcul est facilité par le fait que le " 138 " est presque pur et que le " 137 " est presque uniquement composé de 138 et 137.

Ce procédé d'approximation successive donne aussi la différence de nombre d'ondes entre la raie  $^{138}\text{Ba}$ , supposée enrichie à 100 %, et celle de " 138 " ; cette différence est simplement ajoutée aux déplacements isotopiques calculés à partir des équations ci-dessus.

B/ - LES CAUSES D'ERREUR.

Deux sortes d'erreurs peuvent intervenir dans la détermination des déplacements isotopiques : les erreurs statistiques de pointé des centres de gravité, qui peuvent être réduites par un grand nombre de mesures, et les erreurs systématiques qui sont contenues dans les interférogrammes ou dans les facteurs de conversion ( ces dernières sont dues aux erreurs dans les analyses des pourcentages d'enrichissement des isotopes).

1 - Les erreurs de mesures.

Les déplacements isotopiques calculés, relativement à 138, sont finalement :

$$\begin{aligned} 137 &= C_{\text{"137"}} \delta\sigma(138, 137) : \\ 136 &= C_{\text{"136"}} \delta\sigma(138, 136) \end{aligned}$$

où les coefficients  $C_{\text{"137"}}$  ,  $C_{\text{"136"}}$  etc... dépendent des pourcentages d'enrichissement et des déplacements isotopiques de tous les isotopes figurant dans le mélange correspondant.

Ces déplacements isotopiques calculés sont en gros deux fois les différences de nombre d'onde  $\delta\sigma$  correspondants, puisque la plupart des isotopes ne sont pas enrichis à 100 %, mais approximativement à 50 % ; par suite, à une erreur donnée dans les mesures de différences de nombre d'onde entre deux isotopes correspond une erreur deux fois plus grande, en 1ère approximation, dans le déplacement isotopique. Le calcul de cette erreur doit en fait tenir compte aussi des erreurs commises sur les valeurs calculées des déplacements isotopiques des autres isotopes; de ce fait à une erreur probable,  $\epsilon$  commise sur  $\delta\sigma$  correspond, en général, une erreur probable de  $\frac{\epsilon \cdot 100}{y}$  , où y est le pourcentage d'enrichissement de l'isotope.

En outre il faut ajouter à ces erreurs, celles dûes à l'inexactitude possible des erreurs d'enrichissement. Dans le cas le plus favorable, avec un enrichissement approchant 100 %, une erreur de 1 %, par exemple dans l'analyse donne lieu à une erreur similaire dans le déplacement isotopique, mais avec des enrichissements plus faibles l'erreur augmente en conséquence, approximativement en raison inverse du pourcentage d'enrichissement; la dernière colonne du tableau (7) donne, de cette façon, l'erreur approximative introduite dans le déplacement isotopique correspondant par une erreur de 1% dans l'analyse. Comme la plus grande différence entre les analyses de OAK-RIDGE et SACLAY, ou HARWALL et SACLAY, est moins de 1%, il est improbable que l'inexactitude dans le déplacement isotopique due aux erreurs d'analyse puisse dépasser les valeurs indiquées dans la dernière colonne du tableau (7)

Le tableau (9a) donne, à la 1ère ligne, la valeur moyenne des mesures de différence de nombre d'onde,  $\delta\sigma$  (relative à  $^{138}\text{Ba}$ ); à la 2ème ligne, le déplacement isotopique (D.I) calculé, d'après la valeur moyenne des pourcentages d'enrichissement obtenues de SACLAY et OAK-RIDGE, et SACLAY et HARWELL, par la méthode des approximations successives. Les chiffres indiqués entre parenthèse à la 3ème ligne donne l'erreur probable, c'est la somme des erreurs probables dûes aux mesures et aux analyses.

Nous donnons dans le tableau (9b), les valeurs du déplacement isotopiques obtenus par spectrométrie en absorption (méthode qui sera exposée au chapitre V)

## 2) - Les erreurs systématiques.

Bien que de telles erreurs ne peuvent être totalement connues nous exposons ci-après les quelques causes d'erreurs systématiques qui nous semblent possibles.

### A). - Source.

Nous citons l'auto-absorption et le mélange insuffisant des composantes :

a). -: Auto-absorption.

L'effet d'auto-absorption ne peut créer de déplacement systématique dans le pointé du centre de gravité de la raie que dans le cas des raies asymétriques.

Cet effet est relativement plus important dans le cas des isotopes impairs car : dans le cas des isotopes pairs les composantes correspondantes ne sont écartées que de distances petites (de l'ordre de 5 mK ) par rapport à la largeur DOPPLER de la raie (30mK pour la raie 5536 Å et 45mK pour les raies ultraviolettes), alors que dans le cas des isotopes impairs, à cause de la structure hyperfine et du grand déplacement isotopique, les composantes correspondantes sont écartées jusqu'à 20mK ce qui est du même ordre que la largeur DOPPLER dans la raie 5536 Å. Mais dans le cas de l'isotope  $^{137}\text{Ba}$ , le déplacement isotopique obtenu, pour cette transition ( $\lambda = 5.536 \text{ Å}$ ), à partir d'une série d'interférogrammes faite avec un courant de 12 milliampères dans la cathode creuse, ne diffère pas de façon significative de celui obtenu à partir d'une série d'interférogrammes faite à 40 milliampères.

Pour l'isotope  $^{135}\text{Ba}$ , la même expérience donne pour le déplacement isotopique 8,4 mK avec un courant de 12 milliampères et 8,6 mK avec un courant de 40 milliampères.

Dans le paragraphe II concernant la détermination du déplacement isotopique par spectrométrie en absorption nous verrons une autre justification du fait que l'auto-absorption est faible dans les conditions de l'expérience.

b) - Mélange insuffisant des composantes.

Du fait que l'échelle sur la plaque photographique n'est pas linéaire en nombre d'onde et que la densité de noircissement de la plaque n'est pas linéaire en fonction de l'intensité lumineuse incidente, le pointé du centre de gravité d'une raie complexe (formée de composantes non résolues) est fonction de la largeur enregistrée de la raie.

Ceci est montré par C.V. JACKSON (37) dans le cas des raies rouges du Néon. Nous rappelons brièvement les résultats de l'auteur :

Le Néon naturel a deux isotopes  $^{20}\text{Ne}$  et  $^{22}\text{Ne}$ , avec le rapport d'abondance 10/1. Dans la région étudiée les deux composantes, de longueur d'onde  $\lambda_{20}$  et  $\lambda_{22}$ , sont séparés de 23 mÅ (m Å : millième d'un angström). Lorsque la limite de résolution (instrumentale) est insuffisante pour résoudre les deux composantes, nous avons une raie complexe (un doublet non résolu) dont le centre de gravité (cdg) est à  $(\lambda_{20} - 2,1)$  mÅ en absence de toute auto-absorption (Fig. 8). Avec des limites de résolution (instrumentale) croissante : 70 mÅ, 45 mÅ et 34 mÅ les mesures de la position du cdg du doublet non résolu donnent respectivement  $(\lambda_{20} - 2,6)$  mÅ ;  $(\lambda_{20} - 1,8)$  mÅ et  $(\lambda_{20} - 0,7)$  mÅ ; à la limite, lorsque les deux composantes sont résolues, les mesures donnent évidemment  $\lambda_{20}$ . Ainsi avec une limite de résolution trop forte, la position mesurée du cdg est systématiquement déplacée vers la composante intense.

Les raies émises par les isotopes impairs  $^{137}\text{Ba}$  et  $^{135}\text{Ba}$  ont trois composantes hyperfines, à respectivement et approximativement, 2,9 et 18,5 mK et 4, 10,5 et 18 mK avec les rapports d'intensité 3,2 et 1. Elles peuvent être regardées comme des doublets, dûs à une composante intense (formée par les deux composantes d'intensité relative 3 et 2) d'intensité relative 5 et une raie plus faible d'intensité relative 1 ; les 2 composantes étant séparées par 14 mK dans le cas de l'isotope  $^{137}\text{Ba}$  et 12 mK dans le cas de l'isotope  $^{135}\text{Ba}$ .

Avec une limite de résolution de 25 mK les conditions dans le cas des raies du Baryum sont analogues à celles des raies du Néon avec une limite de résolution entre 40 et 50 mÅ, dans ce cas la composante faible ne participera qu'à 50% de sa contribution totale au centre de gravité de la raie complexe; ceci créera une diminution du déplacement isotopique  $^{138}\text{Ba}$   $^{137}\text{Ba}$  de l'ordre de 1 1/2 mK, et  $^{138}\text{Ba} - ^{135}\text{Ba}$  de l'ordre de 0,7 mK.

Si ces corrections sont appliquées aux valeurs de déplacement isotopique données au ta

bleau (9c), de RAZUMOVSKI et CHAIKA ( qui ont utilisé une cathode creuse refroidie à l'azote liquide donnant une largeur de raie de 25 mK, qui n'était pas augmentée de façon significative par la largeur instrumentale), les valeurs obtenues ne diffèrent des nôtres que par un écart plus petit que l'erreur probable estimée (Dans notre cas la largeur combinée de la raie et instrumentale était de l'ordre de 50 mK, le mélange était effectivement complet et il n'y a pas de correction). A la fin du tableau (9c) nous donnons les valeurs de déplacement isotopiques mesurées lorsque les composantes sont résolues (paragraphe II).

B) - Interféromètre.

b). - : Effet d'un changement de pression.

Dans la première partie de ce travail ( le déplacement isotopique de la raie de résonance à 5536 Å ), l'interféromètre n'était pas enfermé dans une cloche, tandis que dans la deuxième partie ( le déplacement isotopique des raies 3501 Å et 3072 Å ) l'interféromètre était enfermé dans une cloche étanche.

Un changement de pression de 1mm de Hg produit une variation d'indice de l'air (n) d'où il résulte une variation  $d\sigma$  du nombre d'onde  $\sigma$  de la raie :

$$\frac{d\sigma}{\sigma} = \frac{n-1}{760} = 3,8 \cdot 10^{-7}$$

Lorsque les poses n'étaient faites que dans les conditions favorables ( baromètre lentement variable, c'est-à-dire que le changement de pression ne dépassait pas 1 mm de Hg en 2 ou 3 heures ) la variation du nombre d'onde entre 2 poses successives, (d'une durée moyenne de 4 minutes chacune), d'un même isotope, n'était que de l'ordre de 0,2 mK, ce qui est nettement moins que l'erreur statistique de mesure d'une seule pose ( 0,5 à 1,0mK). Une variation linéaire de la pression n'a pas d'effet sur le déplacement isotopique puisque la comparaison de longueur d'onde se fait par interférogrammes alternés ( par exemple  $^{138}\text{Ba}$  -  $^{136}\text{Ba}$  -  $^{138}\text{Ba}$  ) et que le premier et le dernier interférogrammes correspondent au même isotope.

b). - : Effet d'un changement de température.

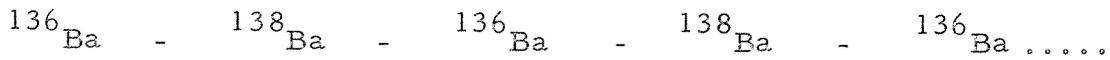
Pour que l'exactitude des mesures de différences de longueur d'onde ne soit pas affectée par les effets de changements de température dans l'interféromètre, la variation apparente des nombres d'ondes entre plusieurs poses dans une série devrait être inférieure à l'erreur statistique de mesures des interférogrammes de la série. Pour une seule mesure l'erreur efficace est approximativement de 1mK pour la raie  $5536 \text{ \AA}$  ( $\sigma \cong 18.060 \text{ cm}^{-1}$ ) et d'environ 50 % plus grande pour les raies ultraviolettes ( $\sigma \cong 35.000 \text{ cm}^{-1}$ ). Dans chaque interférogramme une moyenne est faite sur les mesures de 6 ou 4 diamètres de franges, et donc de détermination de différences de nombre d'onde. Ainsi les erreurs probables correspondantes sont respectivement 0,4 et 0,6 mK. Il est alors nécessaire que les variations apparentes de nombre d'onde dues aux changements de températures ne dépassent pas 0,2 ou 0,3 mK dans l'intervalle de 2 poses.

Dans le cas d'une cale en silice fondue et de l'étalon enfermé dans une cloche, un changement de nombre d'onde de 0,2 mK est produit par un changement de température d'approximativement  $0,02^\circ$  à  $\sigma = 20.000 \text{ cm}^{-1}$  et de  $0,01^\circ$  à  $\sigma = 35.000 \text{ cm}^{-1}$ . Si la température est contrôlée par un thermostat celui-ci devrait avoir une stabilité d'au moins  $0,02^\circ$  ou  $0,01^\circ$  : un thermostat avec une stabilité de l'ordre de 0,05 ne serait pas satisfaisant, car il entraîne un déplacement de l'ordre de 1mK entre deux poses successives.

Une variation linéaire de la température en fonction du temps n'introduit pas d'erreur systématique (comme pour le cas de la pression). L'influence d'une variation non linéaire peut être examinée de deux façons :

- la plus grande variation de température observée dans la cloche, où l'étalon est enfermée, est de  $0,1^\circ$  par heure et il semble improbable que la non-linéarité dépasse 1/10 du chiffre donné.

- une variation de la température se traduit par un changement apparent des nombres d'onde des isotopes et par conséquent des diamètres des franges correspondant. Pour étudier l'influence d'une variation non linéaire, prenons 10 séries d'interférogrammes, de la raie  $3501 \text{ \AA}$  ; chacun comprenant 14 interférogrammes, prises dans l'ordre suivant :



Dans une série nous avons 14 poses, prises dans l'ordre ( 136 - 138 - 136) et notées : 1 - 2 - 3 - 4 .....

Dans chacune de ces poses, quatre diamètres sont mesurés; l'erreur efficace pour la mesure d'un diamètre étant de 1,6 mK ( nous rappelons que cette erreur est calculée pour le carré du diamètre qui est convertible en mK; mais par la suite nous continuons à parler des erreurs sur la mesure d'un diamètre). L'erreur probable sur la mesure du diamètre moyen (moyenne arithmétique des 4 diamètres) d'une pose est ainsi de l'ordre de 0,8 mK. Nous avons alors 14 diamètres moyens ( $d_1, d_2 \dots\dots d_{14}$ ), la mesure de chacun étant affectée d'une erreur probable de 0,8 mK. Afin de réduire encore les erreurs de mesure, nous considérons le diamètre moyen de deux poses successives

$d_{1,2} = \frac{d_1 + d_2}{2}$  ;  $d_{3,4} = \frac{d_3 + d_4}{2}$  ; .....  $d_{13,14}$  . Finalement nous avons 7 diamètres moyens ( $d_{1,2}, d_{2,3} \dots\dots d_{13,14}$  ), la mesure de chacun étant affectée d'une erreur probable de 0,6 mK ; la durée d'une pose moyenne, correspondant à chacun de ces diamètres, étant de 5 minutes.

Le tableau (11) donne les valeurs des 7 diamètres moyens et leur carré. la figure (9) donne une représentation graphique des carrés des 7 valeurs de diamètre en fonction du temps ; l'échelle à droite donne la conversion des  $\text{mm}^2$ , portés sur l'axe des ordonnées, en mK. La droite tracée sur le graphique représente une loi de variation linéaire moyenne. La colonne 3 du tableau (11) donne les valeurs des carrés des diamètres correspondants à cette loi, la colonne 4 donne les différences en valeurs algébriques, des chiffres de la colonne 2 et ceux correspondants de la colonne 3, la colonne 5 donne ces différences en mK; la colonne 6 les variations de températures correspondant à ces différences en mK.

La valeur moyenne de l'écart à une variation linéaire pour les 10 séries, de 14 interférogrammes chacune, est de 0,3 mK; l'écart maximum étant 0,8 mK. Si ces valeurs sont comparées à l'erreur probable de mesures: 0,6 mK, il est évident que les erreurs statistiques de mesures ne sont pas affectées de façon significatives par la non-linéarité de la variation de la température. Comme une variation linéaire de la température ne crée pas

d'erreur systématique dans nos mesures, nous concluerons qu'il n'y aura rien à gagner à thermostatier la cloche où l'étalon est enfermé.

II) - Méthode spectrométrique en absorption.

Les déplacements isotopiques des isotopes impairs déterminés par la méthode précédente sont relativement imprécises à cause des structures hyperfines des isotopes impairs

La résolution des structures hyperfines des isotopes impairs, permettra de mieux pointer les centres de gravité de ces structures et améliorer ainsi les valeurs des déplacements isotopiques correspondants. Cette résolution a été obtenue pour la raie  $6s^2(^1S_0) - 6s6p(^1P_1)$ ,  $\lambda = 5536 \text{ \AA}$  par spectrométrie en absorption. L'analyse des structures hyperfines ainsi résolues permettra par ailleurs de calculer les constantes de structure hyperfine magnétique (A) et quadripolaire (B) du niveau  $^1P_1$ , pour les isotopes  $^{137}\text{Ba}$  et  $^{135}\text{Ba}$ .

La résolution complète de la structure de la raie, émise par le Baryum naturel; aurait nécessité la séparation de composantes distantes de 0,5 mK (ce qui est approximativement la largeur naturelle de la raie) et s'étendant sur un intervalle total de 20 mK; cependant il n'est pas nécessaire de résoudre un problème aussi ardu car l'emploi des isotopes enrichis offre la possibilité d'observer directement les structures hyperfines : le Baryum enrichi en  $^{137}\text{Ba}$  et  $^{135}\text{Ba}$  ne contient qu'une faible proportion des autres isotopes à l'exception de  $^{138}\text{Ba}$ . Dans ce cas la limite de résolution nécessaire pour séparer les composants n'est plus que de 2 mK au lieu de 0,5 mK; le problème de la résolution dans la source pourra être résolu par l'emploi du jet atomique, mais alors il faut consentir à utiliser des quantités d'isotopes enrichis relativement importantes (de l'ordre de quelques grammes). Heureusement, avec la technique récemment développée par JACKSON (5), d'utilisation d'un jet atomique en absorption à l'intérieur d'un Fabry-Perot sphérique (F.P.S), où le coefficient d'absorption efficace est  $F$  fois le coefficient d'absorption normal,  $F$  étant la

finesse réfléchissante des lames de l'interféromètre, la quantité d'isotopes enrichis nécessaire est ramenée à une centaine de milligrammes. Nous avons alors pu obtenir les quantités d'isotopes enrichis d'OAK-RIDGE et avec la technique précédente, observer de fortes absorptions, de l'ordre de 20 %, à des collimations du jet atomique de 24 : 1, 34 : 1 et 55 : 1, pendant plusieurs heures, permettant ainsi d'enregistrer plus d'une cinquantaine d'ordres nécessaires pour faire l'analyse des structures hyperfines.

La même technique a été ensuite utilisée pour déterminer le déplacement isotopique  $^{138}\text{Ba} - ^{136}\text{Ba}$  et  $^{138}\text{Ba} - ^{134}\text{Ba}$ , de la même raie ( $\lambda = 5536 \text{ \AA}$ ).

Finalement donc nous avons pu déterminer les facteurs A et B des isotopes  $^{135}\text{Ba}$  et  $^{137}\text{Ba}$  et les déplacements isotopiques.

$$^{138}\text{Ba} - ^{137}\text{Ba} ; \quad ^{138}\text{Ba} - ^{136}\text{Ba} ; \quad ^{138}\text{Ba} - ^{135}\text{Ba} ; \quad ^{138}\text{Ba} - ^{134}\text{Ba}$$

## A - STRUCTURES HYPERFINES CALCULEES DE LA RAIE $\lambda = 5536 \text{ \AA}$ DES ISOTOPES IMPAIRS.

La structure hyperfine de la raie est d $\hat{u}$ e uniquement au niveau sup $\acute{e}$ rieur  $6s\ 6p\ ^1P_1$ , car le niveau inf $\acute{e}$ rieur  $\acute{e}$ tant un singulet  $^1S_0$  ne peut pas avoir de structure hyperfine. Les deux isotopes impairs ont tous les deux le m $\hat{e}$ me moment angulaire :  $I = 3/2$  ; de sorte que pour ces deux isotopes nous avons des structures hyperfines analogues, form $\acute{e}$ e de 3 composantes hyperfines correspondant aux transitions :  $F = 1/2 \text{ \AA } F = 3/2$  ;  $F = 3/2 \text{ \AA } F = 3/2$  ;  $F = 5/2 \text{ \AA } F = 3/2$ .

Les positions des composantes hyperfines requises pour donner  $\grave{a}$  la fois les valeurs des rapports des constantes de structure hyperfine magnifiqu $\acute{e}$ ,  $A(137) / A(135)$ , d $\acute{e}$ termin $\acute{e}$ es par HAY (46) et WALCHLI et ROWLAND (47), des constantes de structure hyperfine quadripolaire, d $\acute{e}$ termin $\acute{e}$ es par WILLIAMS et Mc GRATH (47), la structure de la raie observ $\acute{e}$ e par JACKSON (5), et les valeurs des d $\acute{e}$ placements isotopiques, sont donn $\acute{e}$ es dans le tableau (12) en admettant que le niveau  $6s\ 6p\ (^1P_1)$  a une structure hyperfine invers $\acute{e}$ e ( le sous niveau hyperfin correspondant  $\grave{a}$   $F = 5/2$  est le plus profond) et un rapport normal d'intensit $\acute{e}$  pour les composantes hyperfines 3 : 2 : 1. Les positions calcul $\acute{e}$ es sont relatives  $\grave{a}$  celle de l'isotope  $^{138}\text{Ba}$ . Nous rappelons au m $\hat{e}$ me tableau (12) la structure observ $\acute{e}$ e de la raie; la structure calcul $\acute{e}$ e de la raie, donn $\acute{e}$ e en haut du tableau est en accord avec celle observ $\acute{e}$ e, aux erreurs probables de cette derni $\acute{e}$ re pr $\acute{e}$ s.

## B. - DETERMINATION EXPERIMENTALE DES STRUCTURES HYPERFINES DES ISOTOPES IMPAIRS.

### 1) - Pr $\acute{e}$ paration du Baryum m $\acute{e}$ talliqu $\acute{e}$ .

Avant de pouvoir commencer l'exp $\acute{e}$ rience il fallait proc $\acute{e}$ der  $\grave{a}$  la conversion des carbonates et nitrates de Baryum ( formes sous lesquelles sont livr $\acute{e}$ es les isotopes enrichis) en Baryum m $\acute{e}$ talliqu $\acute{e}$ . Cette pr $\acute{e}$ paration, devant atteindre un rendement  $\acute{e}$ lev $\acute{e}$ e, a  $\acute{e}$ t $\acute{e}$  obt $\acute{e}$ ne.

nue par électrolyse, avec un rendement d'approximativement 90%. Elle se déroulait en trois opérations :

- le carbonate de Baryum était transformé en une solution saturée de chlorure de baryum.

- l'électrolyse de cette solution dans un tube en U avec une anode en platine et une cathode en mercure, donnait un amalgame de Baryum et de Mercure, qui était versé dans un petit réservoir en acier inoxydable.

- l'amalgame était distillé, sous vide, afin d'enlever le mercure.

Finalement le réservoir ne contenant plus que du Baryum métallique était mis dans le tube du jet atomique, celui-ci étant ensuite placé dans le montage optique.

#### a) Electrolyse.

Pour 200 mg de carbonate de Baryum, la quantité de mercure utilisée était approximativement de 30g; la quantité d'acide chlorhydrique, à une force de concentration de 2,5 N, était de 900 mm<sup>3</sup>

L'acide chlorhydrique était introduit dans un bras du tube en U par une seringue et ensuite très lentement, avec une petite cuillère, le carbonate de Baryum, sous la forme d'une poudre fine. L'électrolyse commençait alors à un courant de 120 mA, contrôlé par un milliampèremètre et une résistance variable, sous 110 volts. Dans le cas idéal, lorsque tout le Baryum métallique est déposé dans le Mercure, la résistance de l'électrolyte aurait dû devenir très grande, la solution étant convertie en eau pure, mais, en réalité, le Baryum réagissait avec l'eau ( pour donner l'hydrogène et l'hydroxide de Baryum) et la résistance de l'électrolyte tendait vers une limite; ainsi pendant l'électrolyse, le courant étant maintenu constant, la différence de potentiel entre les électrodes, contrôlée par un voltmètre, montait de 8 volts à 30 volts approximativement, et se stabilisait à cette valeur. Pendant l'opération l'électrolyte était refroidi par un courant d'air afin de

limiter la réaction entre l'amalgame et l'eau ( ou la solution ). L'évacuation des bulles qui se formaient entre le mercure et le verre, près de la surface du mercure, était assurée en tapant doucement sur le tube avec une petite tige en verre.

Une fois l'électrolyse terminée, l'électrolyte était récupéré avec une seringue et mis de côté dans un tube à essai pour la récupération du chlorure de Baryum ( de l'ordre de 20 mg); ainsi le rendement de l'électrolyse était de 90%.

L'amalgame resté dans le tube en U était lavé à l'eau (introduite et enlevée avec une seringue), la surface du mercure séchée au papier filtre, ensuite l'amalgame était versé dans un petit réservoir en acier inoxydable, de diamètre 10mm et de longueur 40 mm, qui était alors introduit dans l'appareil de distillation du mercure sous vide.

#### b) Distillation du Mercure.

L'appareil est schématisé sur la fig (10). La partie inférieure du long tube ( T ) est en silice car il est nécessaire de chauffer l'amalgame à une température au-dessus de celle du point de fusion du pyrex. Le piston (p) empêchait le passage du mercure en haut du tube, et la résistance chauffante (r) la condensation du mercure sur les parois avant le tube latéral ( les dépôts de mercure sur les parois du tube latéral (t) étaient enlevés avec la flamme d'un bec de Bunsen); un courant d'air refroidissait constamment le joint. Le tube latéral (t) conduisait à un piège refroidi à l'azote liquide, l'appareil de distillation était relié à un banc à vide où se trouvait un second piège refroidi à l'azote liquide. Afin d'éviter une ébullition brutale du mercure l'augmentation de la température était limitée à environ 50 ou 100 degré centigrade par heure, jusqu'à la température finale (500°C), cette température était ensuite maintenue pendant deux heures; une précaution supplémentaire était prise contre tout éventuel rejet brutal de l'amalgame hors du réservoir (b) celui-ci était prolongé par un cylindre (a) de 50mm de long, emboîté sur lui. Après deux heures de chauffage à 500°C il n'y avait plus de dépôt de mercure sur les parois du tube latéral, l'amalgame était apparemment libre de mercure et le chauffage était coupé.

Afin de minimiser le temps d'exposition du Baryum métallique à l'air, juste avant l'expérience le tube est coupé un peu au-dessus du joint quartz-pyrex, le réservoir sorti et mis dans le tube du jet atomique ( opération qui ne demandait que quelques secondes) dont la partie inférieure était préalablement remplie d'argon liquide, permettant ainsi au Baryum de séjourner dans une atmosphère d'argon pendant le temps nécessaire pour fixer le tube du jet atomique à la chambre d'absorption.

c). Récupération du Baryum.

Une fois l'expérience faite, l'isotope enrichi contenu dans le tube du jet atomique était récupéré avec un rendement de 80% approximativement. Le Baryum métallique et son oxyde produit par exposition à l'air, contenus dans le tube du jet atomique étaient dissous en chlorure de Baryum avec une solution de 900 mm<sup>3</sup> d'acide chlorhydrique ( à une force 2,5 N) mélangée à 10 cm<sup>3</sup> d'eau. Cette solution était alors ajoutée à celle contenue dans le tube à essai où le reste de l'électrolyte avait été recueilli, la solution de chlorure de baryum était alors précipité par une solution saturée de carbonate d'ammonium (un volume similaire d'ammoniaque était rajouté pour assurer que la réaction donnerait du carbonate de baryum, sans bicarbonate de baryum qui est nettement plus soluble). Le précipité de carbonate de baryum se déposait rapidement, et le liquide qui surnageait au-dessus du dépôt était enlevé avec une seringue, de sorte que le volume de liquide initial (20 cm<sup>3</sup>) était réduit à moins de 1 cm<sup>3</sup>. Pour enlever le restant de chlorure d'ammonium le précipité restant était agité avec 20 cm<sup>3</sup> d'eau distillée et laissé ensuite déposer. Ce procédé était répété deux fois, de sorte que le résidu de chlorure d'ammonium était réduit à moins de 1/10 de milligramme. L'eau était alors évaporée lentement du précipité, par chauffage lent jusqu'à 300°C ce qui éliminait aussi les traces de carbonate d'ammonium. Le carbonate de baryum ainsi séché était enlevé du tube à essai, son poids était, en moyenne, 80% du poids du carbonate de baryum utilisé au début de l'électrolyse.

2) - Spectromètre et montage optique.

Le montage optique était le même que celui utilisé par JACKSON (5) dans un travail antérieur sur le technique du Fabry Perot sphérique avec jet atomique interne. Nous en rappelons sommairement les caractéristiques sur la fig (11). La source S est une cathode creuse, décrite plus loin, produisant la raie d'émission ( $\lambda = 5536 \text{ \AA}$ ) servant comme fond pour l'absorption. La lentille  $L_1$  forme une image, de même grandeur, de la cavité cathodique au milieu de l'interféromètre Fabry Perot sphérique, placé dans une enceinte étanche reliée à un banc à vide. Cette image était à une distance de 70 cm de la lentille  $L_2$ , de distance focale 50cm, alors que la distance entre  $L_2$  et l'image formée sur la fente d'un spectrographe était trois fois plus grande (cet arrangement a été choisi pour satisfaire les conditions de dispersion et d'ouverture angulaire du spectrographe); permettant ainsi d'utiliser une ouverture de 2 mm pour le Fabry Perot sphérique de 6 cm de rayon et de 3 mm pour le Fabry Perot sphérique de 10 cm.

Dans le cas du Fabry Perot sphérique de 6cm, l'ouverture utilisée était de 1mm permettant l'emploi d'un jet de collimation 40: 1 sans perte sérieuse de résolution due à l'élargissement de la raie d'absorption par l'effet Doppler.

Dans le cas du Fabry Perot sphérique de 10cm, l'ouverture utilisée était aussi de 1mm permettant d'utiliser un jet de collimation 55 : 1.

Les Fabry Perot sphériques utilisés ont 6cm et 10 cm de rayon de courbure, donnant des intervalles entre ordre respectifs de 41,2 mK et 25,8 mK. Les lames sont pourvus de 9 couches diélectriques donnant un pouvoir réflecteur de 0,97 et une finesse de 57 (si les surfaces étaient parfaites). A l'ouverture utilisée, de l'ordre de 1mm, la finesse enregistrée est de 30. La cale fig (12) est un cylindre en duralumin de longueur approximativement inférieure de 0,05 mm à celle requise pour réaliser le rayon de courbure exact. La résistance chauffante  $r$ , approximativement de 2 ohms permet de chauffer la cale pour assurer le balayage: une variation de longueur de  $10 \mu$  permet de balayer 70 ordres à  $\lambda = 5536 \text{ \AA}$ . Au début avec un courant de 60 mA un ordre est balayé en 2 minutes; à mesure

que les ordres défilaien<sup>t</sup>, la durée du temps de balayage augmentait ( car le taux de variation de la température diminue) et il fallait augmenter progressivement le courant pour maintenir le même temps de balayage par ordre. A la limite, c'est-à-dire au bout d'une cinquantaine d'ordre, le courant était de 90 mA

3) - le tube du jet atomique.

La figure (13) montre le schéma du tube (T) du jet atomique faite en quartz. Pour pouvoir raccorder rapidement le tube du jet atomique à la chambre d'absorption l'extrémité ouverte du tube est prolongée par un joint hémisphérique ( $S_1$ ) La chemise (C) permet de refroidir le tube à l'azote liquide : en effet dans des expériences préliminaires, utilisant le baryum métallique préparé à partir du carbonate de baryum par électrolyse, il était impossible d'obtenir l'absorption produite par le jet atomique dans un tube en silice refroidi à l'air alors que dans les mêmes conditions, avec une quantité similaire de Baryum métallique commercial, une forte absorption était obtenue. Cet échec a été attribué à la présence d'un résidu de mercure, existant dans le Baryum préparé par la méthode électrolytique, qui, n'étant pas condensé sur les parois latérales du tube, du jet atomique, refroidie à l'air, restait à l'état de vapeur et bloquait le jet produit par les atomes de Baryum. Cette difficulté a été résolue par le refroidissement du tube du jet atomique à l'azote liquide : l'absorption obtenue avec le Baryum, préparé par électrolyse comme exposé précédemment, était alors du même ordre que celle produite par le Baryum métallique commercial.

Le tube principal en silice a un diamètre intérieur de 12 mm, l'épaisseur de la silice étant de 1mm, sa longueur est déterminée par la collimation, par exemple pour une collimation de 35 : 1, la longueur était de 300 mm.

Le tube  $t_2$  était en acier inoxydable de longueur 60mm et de diamètre intérieur 10mm il allait de la partie inférieure du joint à la cale de l'interféromètre, entrant dans le tube vertical traversant cette cale. Son but est d'augmenter éventuellement la collimation et aussi d'éviter un déplacement de l'interféromètre.

$t_1$  est une pièce auxiliaire en laiton destinée à raccorder le joint hémisphérique  $S_1$  au tube du jet atomique, l'étanchéité est assurée par la picéine.

#### 4) - La source.

La fig. (14) donne le schéma de la cathode creuse. La cathode avec la cavité qui reçoit le Baryum est d'une seule pièce en acier doux. Le tube principal a un diamètre intérieur de 3 cm et une longueur de 15 cm. La cavité cathodique (cv) a un diamètre de 5 mm et une profondeur de 15 mm. A l'intérieur de la cathode vient s'emboîter un tube en silice fondue, reposant sur la base de la cathode. L'anode est un cylindre creux en aluminium s'emboîtant exactement à l'intérieur du tube en silice fondu. La cathode creuse refroidie à l'eau fonctionnait avec 200 mg de Baryum métallique dans la cavité cathodique, et le Néon, comme gaz porteur, à une pression de 3 mm de Mercure. Elle était d'abord dégazée à des courants de 150 à 200 mA. Quand le spectre était libre de toute bande parasite le Néon était pompé, le charbon dégazé et le tube rempli à nouveau de Néon. Le courant utilisé pendant les expériences était de 80 à 100 mA; le tube a fonctionné, sur une période de 6 mois, avec un total de plus de 100 heures, sans qu'on ait eu besoin de changer le néon. Avec des courants de 80 à 100 mA dans la cathode creuse, la raie de résonance du Baryum présentait un élargissement par auto-absorption et aussi un élargissement dû aux composantes hyperfines non résolues, la largeur à mi-hauteur était approximativement 45 mK alors que la largeur Doppler serait seulement de 20 mK. Cet élargissement a l'avantage que la largeur du fond continu donné par la raie d'émission est suffisante pour inclure les composantes hyperfines des isotopes impairs à 18 mK, dans la partie plate et non sur le bord de la raie, sans cela il y aurait eu un déplacement des composantes hyperfines à 18 mK, apparemment rejetées loin de la composante principale (ce déplacement est de l'ordre de 0,3 mK, dans le plus mauvais cas, avec la plus faible collimation du jet atomique et la raie d'émission presque libre d'auto-absorption). Cependant cet élargissement a le désavantage de produire un recouvrement d'ordre si l'intervalle spectral libre de l'interféromètre est plus petit que la largeur de raie. Dans ce travail deux Fabry Perot sphériques ont été utilisés avec des épaisseurs de 6 et 10 cm et des intervalles spectraux libres respectifs de 42 et 25 mK; en conséquence il y avait un recouvrement d'ordre relativement peu important avec le Fabry Perot sphérique de 6 cm et plus sérieux

avec le Fabry Perot de 10 cm. Ce recouvrement d'ordre a deux effets : premièrement l'intensité apparente de l'absorption du jet atomique est diminuée, par suite de la présence de lumière d'une autre longueur d'onde que celle de la raie d'absorption, deuxièmement : il peut créer un petit déplacement du maximum de la raie d'absorption dû à ce que l'absorption apparente est plus fortement diminuée d'un côté de la raie que de l'autre, ceci arrive quand la position de la raie d'absorption correspond au bord de la raie d'émission (dans l'ordre suivant) où l'intensité change rapidement avec la longueur d'onde.

Pour calculer cet effet de recouvrement d'ordre, il est nécessaire d'avoir une connaissance approximative du contour de la raie d'émission. Celui-ci peut être calculé à partir de la largeur Doppler normale, de l'épaisseur optique de la vapeur émissive et de la structure de la raie, en admettant que le milieu émetteur est homogène. Le contour de la raie, dans les conditions d'emploi de cathode creuse, est celui d'une raie à maximum très plat, sans renversement, émise par un milieu homogène,  $l$  étant l'épaisseur du milieu absorbant et  $k$  le coefficient d'absorption. La forme de la raie a été calculée pour deux valeurs de  $kl$ ,  $kl = 4$  et  $kl = 8$ , pour la composante due à l'isotope 138 et avec des valeurs de  $k$  proportionnelles à l'intensité pour les autres composantes. Ces courbes sont montrées sur la fig (15), en même temps que l'effet de recouvrement d'ordres adjacents, dans le cas du Fabry-Perot sphérique de 6 cm. Avec  $kl = 8$  il y a un faible minimum à environ 5 mK ( la position de la composante due à l'isotope 138 est 0 mK) avec  $kl = 4$  il y a un faible maximum à cette position. Ces courbes sont en bon accord avec celles enregistrées expérimentalement aux limites supérieure et inférieure de l'intervalle des courants dans la cathode creuse; des enregistrements ont aussi été faits à des courants intermédiaires, où il n'y a ni minimum, ni maximum.

Il est apparent d'après ces courbes que les composantes à 0 et 4 mK sont dans une région où l'effet de recouvrement d'ordre est négligeable et où l'intensité du fond d'absorption ne change pas rapidement. Mais dans le cas de la composante à 18 mK, avec  $kl = 4$ , le fond d'absorption a une pente positive  $\frac{di}{d\sigma} = 0,05 \text{ mK}^{-1}$  approximativement, le recouvrement par l'aile de l'ordre suivant a approximativement la même pente, mais négative; dans ce cas le déplacement calculé ( déplacement dépendant du contour et de l'intensité de la raie d'absor

ption et de la pente du fond d'absorption et du recouvrement d'ordre) est approximativement  $0,1 \text{ mK}$  à la fois pour le fond d'absorption seul, et pour le recouvrement d'ordre, mais comme l'un a une pente négative et l'autre une pente positive, le déplacement résultant est zéro. Dans le cas de la composante à  $9 \text{ mK}$ , il y a aussi une pente dans l'intensité du fond d'absorption, mais cette pente est faible (moins de  $0,02 \text{ mK}^{-1}$ ) la composante à  $9 \text{ mK}$  étant approximativement deux fois plus forte que celle à  $18 \text{ mK}$ , le déplacement correspondant est moins de  $0,05 \text{ mK}$ .

La fig (16) montre l'effet de recouvrement d'ordre dans le cas du Fabry Perot sphérique de  $10 \text{ cm}$ . Le contour de la raie est calculé seulement pour l'épaisseur optique la plus grande, car avec cet interféromètre seul le plus haut courant était utilisé dans la cathode creuse (les deux Fabry Perot sphérique étant utilisés avec la même ouverture de  $1 \text{ mm}$ , le plus lumineux était plus faible avec le Fabry Perot sphérique de  $10 \text{ cm}$ ). La forme de la courbe calculée est en bon accord avec celle obtenue expérimentalement, avec un minima à approximativement  $2 \text{ mK}$  (relative à la composante de  $138$ ). Les composantes à  $0,4$  et  $10 \text{ mK}$  sont dans la partie du fond d'absorption où l'intensité est constante ; mais pour toutes les composantes, les recouvrements d'ordre, à la fois de l'ordre supérieur et de l'ordre inférieur, ont une pente ; heureusement ces pentes sont de signe contraire et l'effet résultant tend à devenir nul. Dans tous les cas la différence des deux pentes est approximativement de  $(+ 0,03 \text{ mK}^{-1})$  pour la composante à  $0 \text{ mK}$  et de  $(- 0,03 \text{ mK}^{-1})$  pour les autres. Avec la collimation de  $55 : 1$  utilisée pour le Fabry Perot sphérique de  $10 \text{ cm}$ , et une absorption relativement moyenne ou faible. Le déplacement correspondant est de l'ordre de  $0,03$  à  $0,05 \text{ mK}$ , il peut alors être négligé. Dans le cas de la composante à  $18 \text{ mK}$  l'effet du recouvrement d'ordre est pratiquement nul car il est dans le maximum plat de l'ordre inférieur et le minimum plat de l'ordre supérieur.

Les courbes des figures (15) et (16) sont en bon accord avec celles obtenues.

##### 5) - Observation des Structures hyperfines des isotopes impairs.

Les premières observations de l'absorption produite par le Baryum enrichi en isotopes

135 et 137 ont été faites avec un Fabry Perot sphérique de 6 cm, donnant un intervalle entre ordre de 41,2 mK; la collimation du jet atomique était de 24 : 1; les analyses des isotopes enrichis sont donnés par le tableau (7).

Dans chaque cas la quantité de métal utilisée était celle donnée par 150 mg de carbonate de Baryum. Le jet atomique fonctionnait alors pendant deux heures avec une bonne absorption; la température du four était montée graduellement de 700°C à 1000°C à mesure que le métal était distillé et se déposait dans la partie froide du réservoir ou perdu par évaporation dans le tube du jet atomique.

L'absorption produite par un jet atomique de collimation 34 : 1, placé à l'intérieur d'un Fabry Perot sphérique de 10 cm donnant un intervalle entre ordre de 25,8 mK, a été aussi observée avec des isotopes enrichis en 137, 135, 136 et 134. Ces deux derniers sont aussi enrichis en 138 de sorte qu'il était possible de mesurer directement les déplacements isotopiques 138-136 et 138-134, les composantes dues à chacun de ces isotopes étant bien résolues. Avec cette grande collimation, une absorption également forte a été obtenue, mais la durée de l'absorption était environ la moitié de celle obtenue avec la petite collimation, pour la même quantité de Baryum.

A) - STRUCTURE HYPERFINE DU NIVEAU  $^1P_1$  de L'ISOTOPE 135.

a) FABRY PEROT Sphérique de 6 cm et collimation du jet atomique de 24:1

La structure de la raie du Baryum enrichi en isotope 135 est montrée sur la fig (17); c'est une partie (6 ordres) d'un long enregistrement. Il y a trois composantes résolues A, B et C attribuées au  $^{135}\text{Ba}$  et une aile, a, du côté des petits nombres d'onde de la composante A, qui est attribuée à l'isotope 138. Cette attribution est en accord avec les intensités 13,4 pour 138 et 34, 22 et 11 pour 135 et c'est la seule possible (voir page 53). La seule alternative compatible avec les abondances relatives des isotopes est d'attribuer C à 138 et a à 135; mais ceci donnerait un déplacement isotopique 138-137 négatif (de sens contraire au déplacement isotopique observé) et en plus il faudrait attribuer aux composantes hyperfines de 135 les rapports d'intensité 1 : 3:2.

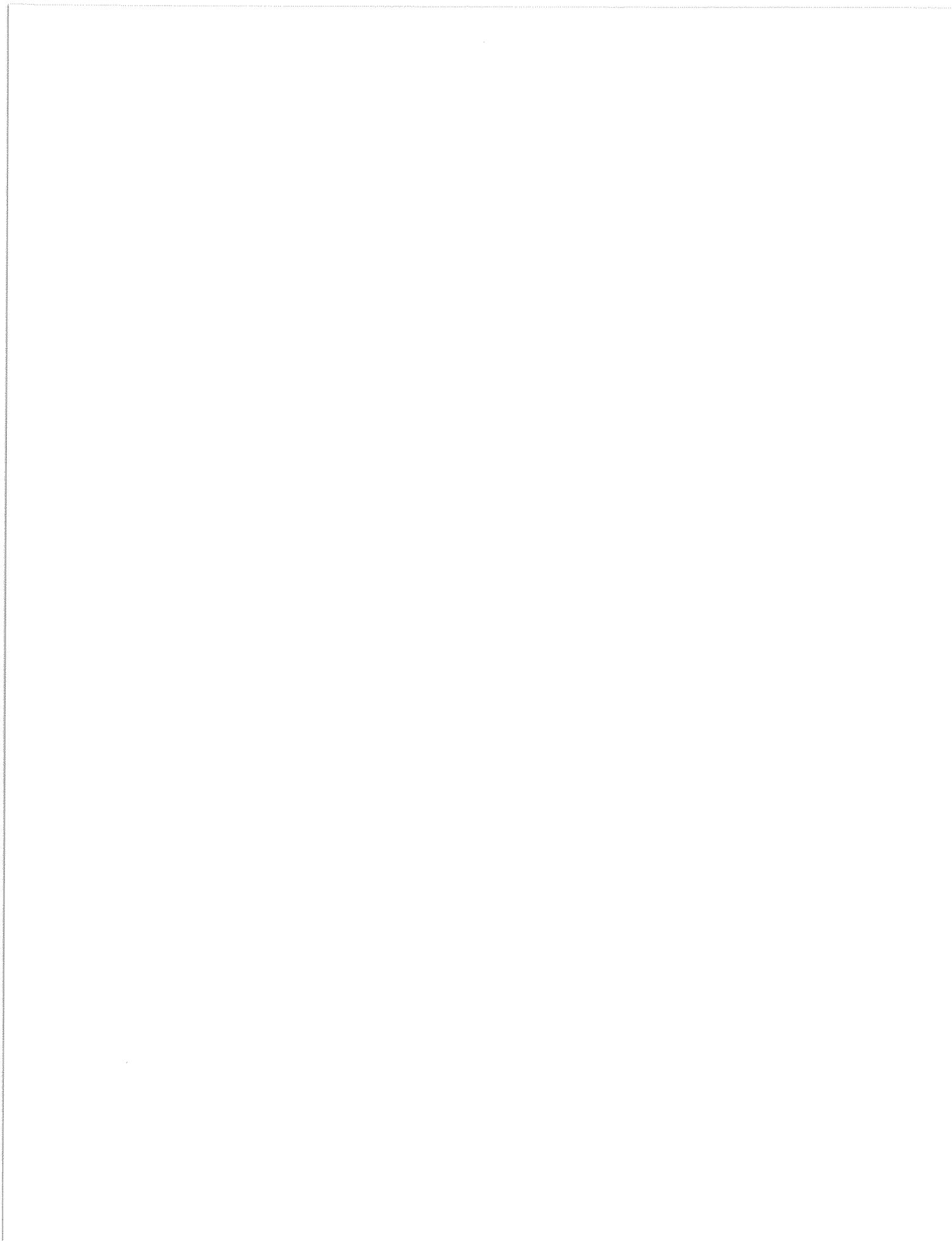
Les composantes B, C ont été mesurées, relativement à la composante A, dans 68 ordres; mais la composante a, qui apparaissait peu résolue ou comme une épaule, n'a été mesurée que dans 30 ordres. Les résultats de ces mesures sont normalisés de telle façon que la composante due à l'isotope 138 a la valeur 0 mK et ils sont donnés dans le tableau (13). A ces valeurs il faut ajouter une correction due à la présence de l'isotope 137 (5,6%) ayant des composantes à 2,1 ; 8,8 ; 18,5 mK; la première de ces composantes tombe entre la raie de 138 et la première composante de 135, elle a donc peu d'effet mais les deux dernières recouvrent les composantes de 135 à 10,3 et 17,7 mK. Pour compenser ceci, la première doit être augmentée de 0,1 mK tandis que la dernière doit être diminuée de 0,1 mK. D'autre part l'isotope 136, (12%), ayant un déplacement isotopique de 4,2 mK, déplace la composante de 135 à 3,7 mK vers les grands nombres d'onde et la valeur 3,7 mK doit être réduite de 0,1 mK.

b) - Fabry-Perot sphérique de 10 cm et collimation du jet atomique de 34 : 1

La structure observée avec un Fabry Perot sphérique de 10 cm et un jet atomique de collimation 34 : 1 est montrée sur la fig (18), avec six ordres. C'est une partie d'un enregistrement dans lequel les trois composantes les plus intenses étaient mesurées sur 22 ordres et la composante plus faible C sur 14 ordres. La résolution de la composante a, due à l'isotope 138, est maintenant complète, en un pic bien séparé de celui de la composante A due à l'isotope 135. Les mesures étaient faites relativement à la composante A; les résultats normalisés de façon que la composante due à l'isotope 138 a la valeur zéro, sont donnés dans le tableau (14). Ces résultats doivent être corrigés en tenant compte de la présence des isotopes 137 et 136 comme ceux faits avec le Fabry Perot sphérique de 6 cm. L'intensité en absorption des composantes A, B et C est en bon accord avec celle requise par le rapport normal d'intensité 3 : 2 : 1, en admettant que le niveau  $6s\ 6p\ ^1P_{1_1}$  a une structure hyperfine inversée.

c) - Résultats.

Le tableau (15) est un résumé des mesures de la structure observée avec un Fabry-Perot sphérique de 6 cm et de 10 cm; les corrections requises pour compenser la pré-



$^{135}\text{Ba}$  (A,B,C) ;  $^{138}\text{Ba}$  (a)  
 $\lambda = 5536 \text{ \AA}$  (  $6s^2 \ ^1S_0 - 6s \ 6p \ ^1P_1$  )

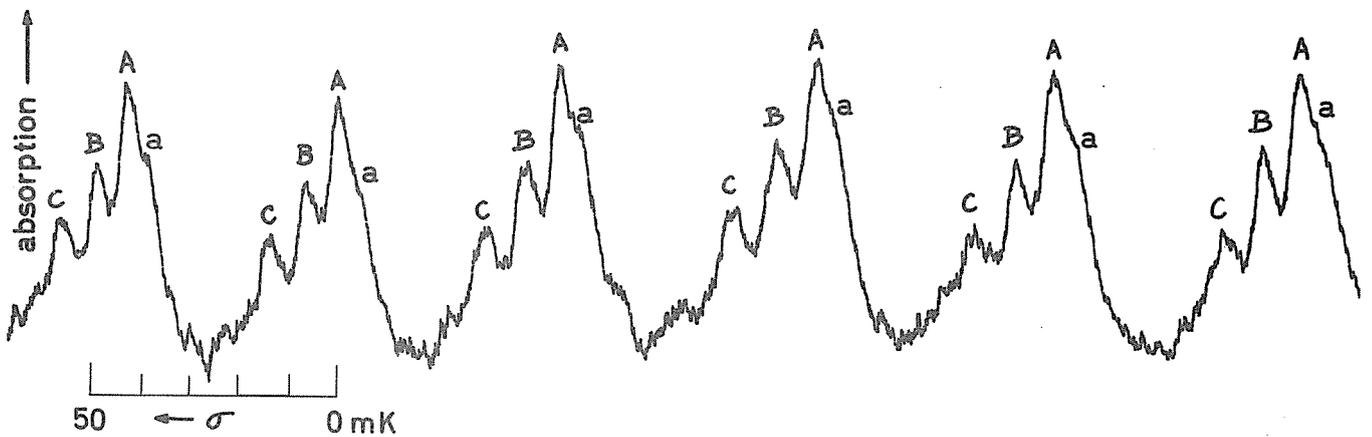


Fig. 17

F. P. s de 6cm d'épaisseur  
 (Jet atomique, en absorption, de collimation 24/1)

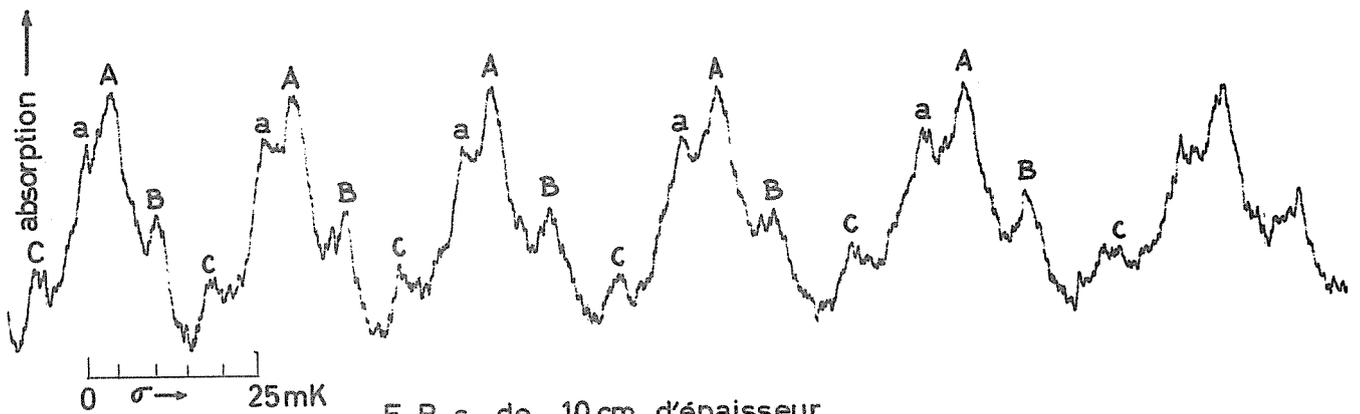


Fig. 18

F. P. s de 10cm d'épaisseur  
 (Jet atomique, en absorption, de collimation 34/1)

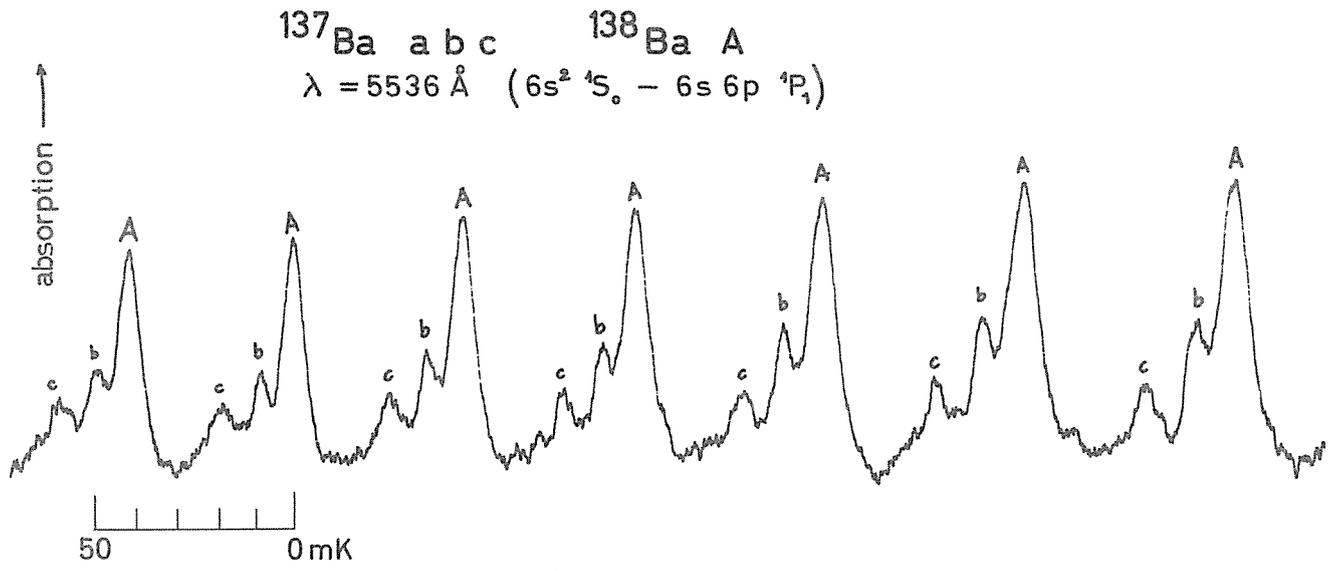


Fig. 19

F. P. s de 6cm d'épaisseur  
 (Jet atomique, en absorption, de collimation 24/1)

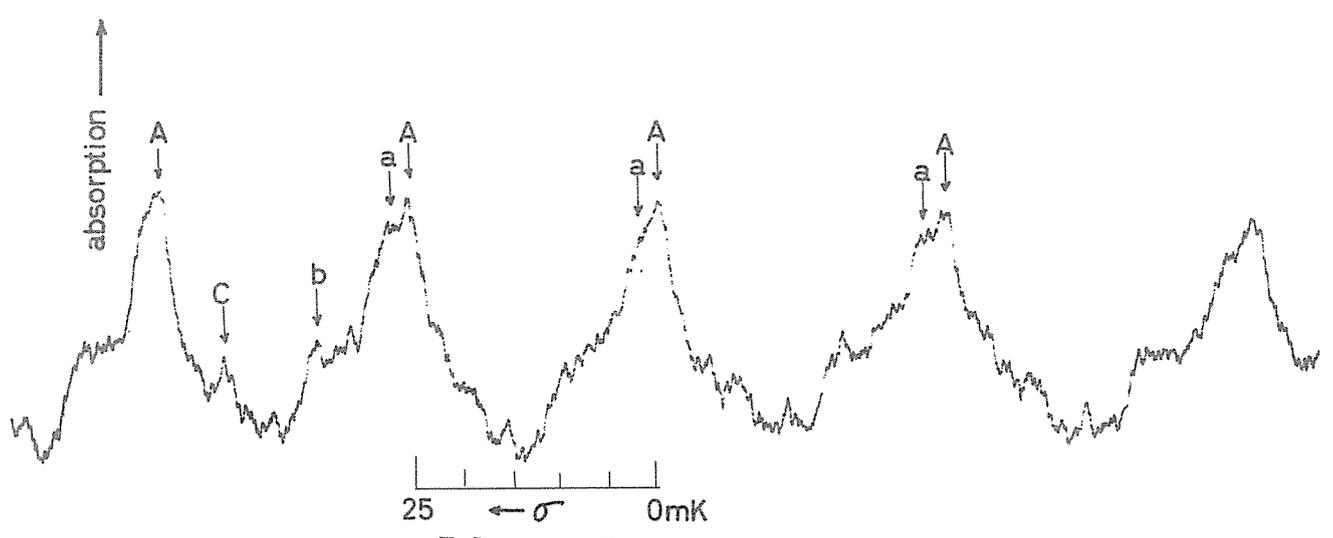


Fig. 21

F. P. s de 10cm d'épaisseur  
 (Jet atomique, en absorption, de collimation 34/1)

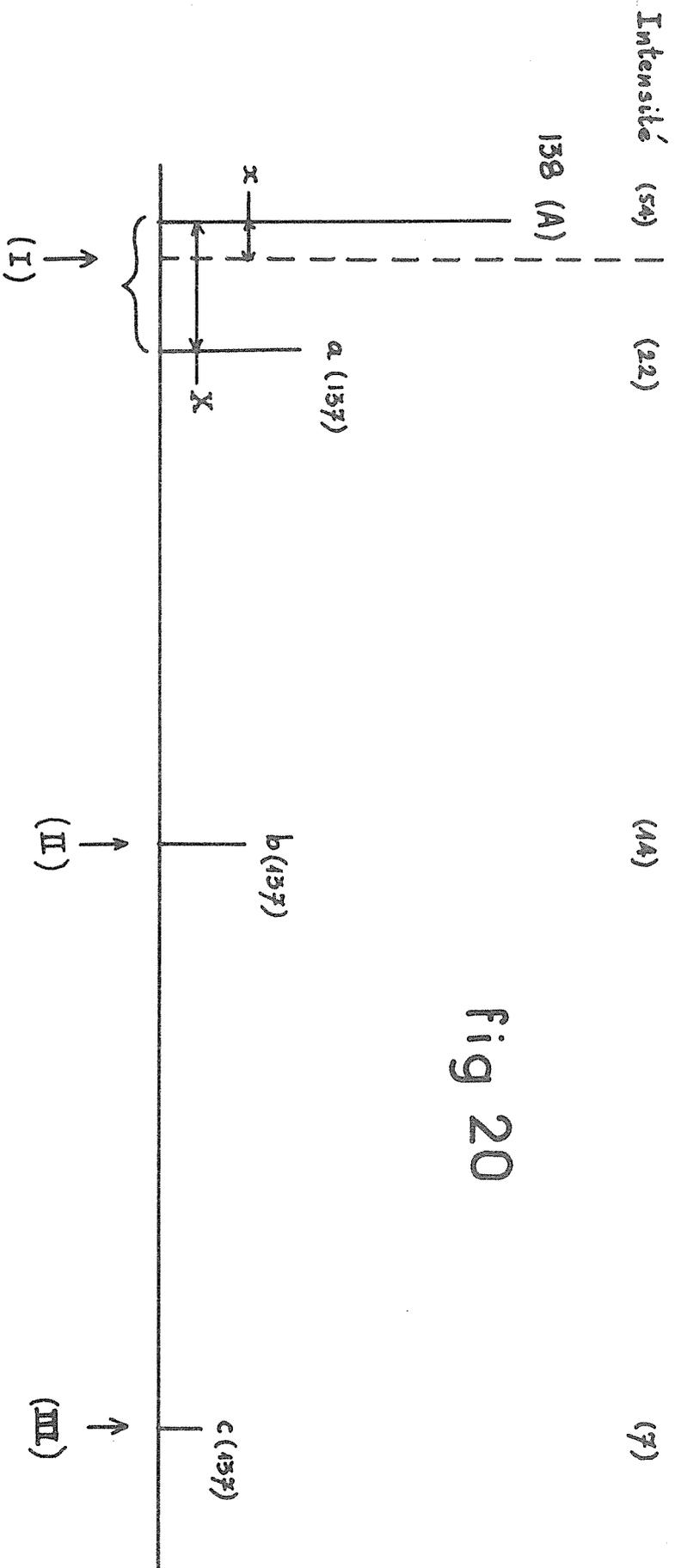


Fig 20

sence des isotopes  $^{137}$  et  $^{136}$  ont été appliquées. Les mesures étaient faites relativement à la composante A de l'isotope  $^{135}$ , mais ils ont été normalisés de sorte que la position de la composante due à l'isotope  $^{138}$  soit prise pour origine. La déviation moyenne et le nombre de mesures implique une erreur probable entre 0,1 et 0,2 mK. Une comparaison des résultats obtenus avec deux interféromètres différents montre qu'ils sont compatibles si une erreur de 0,2 mK est admise.

Le déplacement isotopique entre  $^{135}\text{Ba}$  et  $^{138}\text{Ba}$  peut être calculé à partir de ces résultats, en admettant que la structure hyperfine du niveau  $^1\text{P}_1$  est inversé et que les composants hyperfins ont le rapport normal d'intensité 3 : 2 : 1. La valeur calculée ainsi pour le déplacement isotopique est de 8,1 mK, avec une erreur probable de 0,3 mK.

#### B. - STRUCTURE HYPERFINE DU NIVEAU $^1\text{P}_1$ de l'ISOTOPE $^{137}\text{Ba}$

##### a) - Fabry-Perot sphérique de 6 cm et jet atomique de collimation 24 : 1

La structure donnée par l'absorption du Baryum enrichi en isotopes  $^{138}$  et  $^{137}$  est montrée dans la fig (19), sur huit ordres. Seulement trois composantes apparaissent, mais le premier d'entre eux A, est beaucoup plus intense que les deux autres, b et c; cette différence peut être vue plus clairement dans les ordres de droite de la série, où l'absorption est plus faible. A partir de la composition des isotopes enrichis ( $^{138}\text{Ba}$ , 53,5%;  $^{137}\text{Ba}$ , 43,7%) il est évident que la composante intense A doit être un mélange de la plus forte composante hyperfine de  $^{137}\text{Ba}$  et de la composante simple de  $^{138}\text{Ba}$ .

La structure de la raie est montrée sur la fig (20). La séparation entre la composante A de  $^{138}\text{Ba}$  et la composante a<sup>5</sup> de  $^{137}\text{Ba}$  est prise égale à 2,1 mK (comme il a été observé dans la structure avec une Fabry Perot sphérique de 10 cm et le même isotope enrichi, avec un jet atomique de collimation 34 : 1 et 55 : 1, placé à l'intérieur de l'interféromètre, comme nous le verrons plus loin; et aussi avec du Baryum naturel avec le même interféromètre et un jet atomique à passage multiple de collimation 35 : 1 placé à l'extérieur de l'interféromètre ( JACKSON<sup>5</sup> ). Cette hypothèse permet de trouver les positions des

deux composantes hyperfines plus faibles du  $^{137}\text{Ba}$ , relatives à celle de la composante simple de  $^{138}\text{Ba}$ , à partir des mesures des raies d'absorption, de la manière indiquée sur la fig (20). Les traits verticaux représentent les positions de la composante A, de  $^{138}\text{Ba}$  et des trois composantes hyperfines de  $^{137}\text{Ba}$ , leurs longueurs sont proportionnelles aux intensités respectives, basées sur l'abondance des isotopes et le rapport d'intensité  $a : b : c = 3 : 2 : 1$ . Les flèches indiquent les positions mesurées :

I : la composante la plus forte, mélange non résolu de A (de  $^{138}\text{Ba}$ ) et de a ( de  $^{137}\text{Ba}$  )

II : la composante hyperfine b de  $^{137}\text{Ba}$

III : la composante hyperfine c de  $^{137}\text{Ba}$

La séparation entre A et a est égale à X ; la distance entre le point I, centre de gravité de ces deux composantes, et la position de la composante A est égale à x , où :

$$x = X \left( \frac{22}{22 + 54} \right)$$

avec la valeur précédente,  $X = 2,1 \text{ mK}$ , nous avons  $x = 0,6 \text{ mK}$ .

La séparation entre A et b est alors obtenue en ajoutant 0,6 mK à la distance mesurée entre I et II; la séparation entre A et c est naturellement donnée en ajoutant 0,6 m à la distance entre I et III, ou en ajoutant la séparation entre A et b à la distance III et II.

Cette façon de calculer la position relative de A est seulement précise si l'absorption n'est pas trop forte; si l'absorption est très forte la position de I est déplacée vers celle de la composante a de  $^{137}\text{Ba}$ , car l'intensité relative de celle-ci croit et la valeur de x tend vers  $X/2$ , c'est-à-dire 1,0 mK, au lieu de 0,6 mK. Pour éviter l'erreur systématique due à cet effet, la distance entre I et II était mesurée dans les ordres où l'absorption était faible et la composante c ou très faible ou absente. La distance entre II et III étai

mesurée dans d'autres ordres où l'absorption était forte. Quand on augmentait l'absorption, la distance entre II et III restait inchangée alors que celle entre I et II décroissait de 8,3 (faible absorption) à 7,9 mK, comme prévu. Dans la détermination de la valeur de la distance entre II et I seules les mesures à faible absorption étaient utilisées.

Les résultats des mesures de plus de 40 distances de II - I et III - I donnaient les valeurs indiquées au tableau (16). Les positions des composantes A, a, b et c correspondant à ces valeurs sont données dans le même tableau.

b.) - Fabry - Perot sphérique et jet atomique de collimation 34 : 1

On a fait un grand nombre de mesures des structures données par l'absorption au moyen d'un jet atomique de collimation 34 : 1, placé à l'intérieur d'un Fabry Perot sphérique de 10 cm. Dans ces enregistrements la composante de  $^{137}\text{Ba}$ , à 2 mK, apparaissait ou comme juste résolue ou comme une épaule mesurable. Une partie d'un enregistrement faite à faible absorption est reproduit sur la fig (24). La densité du jet décroît de gauche à droite sur la figure; l'absorption des composantes b et c de  $^{137}\text{Ba}$  est seulement visible dans les premiers ordres; mais la résolution de la composante a de  $^{137}\text{Ba}$  de A de  $^{138}\text{Ba}$  est meilleure à plus basse densité. C'est la raison pour laquelle une partie de l'enregistrement a été faite à basse densité du jet atomique pour déterminer la séparation entre A et a, et une autre partie a été faite à plus haute densité pour mesurer les positions des composantes b et c. Les moyennes de ces mesures relatives à A donnaient les valeurs données dans le tableau (16).

c) - Fabry Perot Sphérique de 10 cm et jet atomique de collimation 55 : 1

L'absorption donnée par un jet de collimation 55 : 1, à l'intérieur d'un Fabry Perot sphérique de 10 cm, avait été aussi observée. Mais dans ce cas, même à la plus forte intensité du jet obtenue, la composante c n'était pas suffisamment forte pour être mesurée. Les moyennes des valeurs obtenues pour les positions des composantes A, a et b sont donnés sur le tableau (16).

d) - Résultats.

Un résumé des mesures des positions des composantes de  $^{138}\text{Ba}$  et  $^{137}\text{Ba}$  est donné dans le tableau (17). Dans ce cas il n'y a pas de correction pour compenser la présence des composantes des autres isotopes. La proportion de  $^{135}\text{Ba}$  est seulement 0,3%, et le recouvrement des composantes de  $^{137}\text{Ba}$  causerait un déplacement de moins de 0,01 mK. La composante simple à 4,1 mK due à la présence de 2,4% de  $^{136}\text{Ba}$ , n'aurait pas d'effet dans le cas des mesures faites avec le Fabry Perot sphérique de 10 cm car elle ne serait pas mélangée; dans le cas des mesures faites avec le Fabry Perot sphérique de 6cm, elle serait mélangée avec la composante A de  $^{138}\text{Ba}$  et la composante a de  $^{137}\text{Ba}$ , ceci causerait un déplacement de cette composante de 0,12 mK vers les nombres d'ondes plus grands; cette correction a été incluse en additionnant 0,1 mK aux mesures des composantes b et c de  $^{137}\text{Ba}$ .

Comme dans le cas des mesures des positions des composantes hyperfines de  $^{135}\text{Ba}$ , l'erreur probable dans les valeurs moyennes est de 0,2 mK.

Le déplacement isotopique entre  $^{138}\text{Ba}$  et  $^{137}\text{Ba}$ , peut être déduit de ces mesures en admettant que le niveau  $^1\text{P}_1$  a une structure hyperfine inversée et que les composantes hyperfines ont le rapport normal d'intensité 3 : 2 : 1. Le déplacement isotopique calculé est alors de 7,0 mK avec une erreur probable de 0,3 mK.

C. ) - DEPLACEMENT ISOTOPIQUE DE  $^{136}\text{Ba}$  et  $^{134}\text{Ba}$ .

L'opération du jet atomique avec des quantités relativement faibles d'isotopes enrichis, dans les mesures des structures hyperfines de  $^{135}\text{Ba}$  et  $^{137}\text{Ba}$  était si satisfaisant qu'il semblait souhaitable d'utiliser la même méthode pour mesurer le déplacement isotopique relative à  $^{138}\text{Ba}$ , des composantes simples de  $^{136}\text{Ba}$  et  $^{134}\text{Ba}$ . Ceci donnerait une confirmation des résultats obtenus et exposés précédemment; et il y aurait deux avantages importants:

- le résultat serait plus précis,
- il serait indépendant de la composition des isotopes enrichis, ce qui est une source d'erreur significative dans le travail exposé précédemment.

Il était apparent que les meilleurs résultats seraient obtenus en prenant les isotopes enrichis en  $^{136}\text{Ba}$  et  $^{134}\text{Ba}$  et en leur additionnant une quantité appropriée d'isotope enrichi en  $^{138}\text{Ba}$  pour donner un mélange contenant en quantités approximativement égales les isotopes  $^{138}\text{Ba}$  et  $^{136}\text{Ba}$  ou  $^{138}\text{Ba}$  et  $^{134}\text{Ba}$ ; en ce cas les raies de  $^{138}\text{Ba}$  et les autres isotopes seraient de même intensité. Dans ces conditions la quantité de matière requise pour produire une bonne absorption est réduite au minimum; elle sera, par exemple de l'ordre de 6 fois moindre que celle nécessaire pour observer la composante hyperfine faible de  $^{137}\text{Ba}$ . Les analyses des isotopes enrichis sont données au tableau (7) En calculant la quantité de  $^{138}\text{Ba}$  qui doit être ajoutée il faut tenir compte de l'effet de la composante forte de  $^{135}\text{Ba}$  (à 3,5 mK) à la fois pour l'isotope enrichi en  $^{136}\text{Ba}$  et pour celui enrichi de  $^{134}\text{Ba}$ , car cette composante recouvre les raies de ces isotopes situées à 4,2 et 4,6 mK, et n'est pas résolue. Ce recouvrement crée un déplacement aisément calculable car les séparations sont si petites que le mélange est complet et l'intensité relative des composantes du mélange est connue. En prenant les valeurs des déplacements isotopiques déterminées précédemment, le déplacement est égal à 0,18 mK pour  $^{134}\text{Ba}$  et 0,04 mK pour  $^{136}\text{Ba}$ , et en conséquence les séparations mesurées doivent être augmentées de cette quantité.

Une autre correction doit être appliquée, due au recouvrement des ailes des ordres adjacents, qui cause un rapprochement des composantes. Ce déplacement ne peut être facilement calculé, mais l'ordre de grandeur de l'effet a été trouvé, pour  $^{134}\text{Ba}$ , en faisant une courbe combinée, obtenue en additionnant deux courbes d'absorption séparées de 4,5 mK, ayant le profil connu des raies données par le jet atomique placé à l'intérieur d'un Fabry Perot sphérique de 10 cm, la correction qui doit être appliquée est ainsi de l'ordre de + 0,08 mK.

Un déplacement similaire est causé par la composante forte de  $^{137}\text{Ba}$  (à 2,1 mK) située approximativement entre les raies de  $^{138}\text{Ba}$  et  $^{134}\text{Ba}$  ou  $^{136}\text{Ba}$ . Cet effet est négligeable pour  $^{134}\text{Ba}$  (l'intensité de cette composante n'est que le vingtième de celle de  $^{134}\text{Ba}$ ),

pour  $^{136}\text{Ba}$  ( l'intensité de cette composante est le sixième de celle de  $^{136}\text{Ba}$ ) le déplacement correspondant est de 0,2 mK .

Les corrections combinées pour l'effet de la composante forte de  $^{135}\text{Ba}$ , pour le recouvrement des ailes des ordres adjacents, et pour l'effet de la composante forte de  $^{137}\text{Ba}$  sont ainsi de :

$$\begin{aligned} 0,18 + 0,08 &= 0,26 \text{ mK} && \text{pour } ^{134}\text{Ba} \\ 0,04 + 0,20 &= 0,25 \text{ mK} && \text{pour } ^{136}\text{Ba} \end{aligned}$$

Ces valeurs doivent être ajoutées aux séparations mesurées.

#### Opération du jet atomique.

Les isotopes enrichis en  $^{136}\text{Ba}$  et en  $^{134}\text{Ba}$  étaient obtenues sous forme de nitrates, en quantités correspondants à 30 mg de métal. Les nitrates étaient convertis en carbonates, et ensuite en chlorure pour l'électrolyse. Avant l'électrolyse une quantité appropriée de carbonate de  $^{138}\text{Ba}$  était ajouté pour égaliser les proportions de  $^{136}\text{Ba}$  et  $^{134}\text{Ba}$ .

Le jet atomique opérait, à l'intérieur d'un Fabry Perot sphérique de 10 cm, avec une collimation de 30 : 1 - Dans les deux cas une bonne absorption était maintenue pendant deux heures. Une partie de l'enregistrement est montré sur la fig (22).

L'effet de la composante de  $^{137}\text{Ba}$ , à 2,1 mK, peut être vu très clairement par une augmentation de l'absorption entre deux maxima, qui se traduit par le fait que le creux entre deux maxima est moins bien défini dans le cas de  $^{136}\text{Ba} - ^{138}\text{Ba}$  que dans celui de  $^{134}\text{Ba} - ^{138}\text{Ba}$ .

#### Déplacement isotopique de $^{134}\text{Ba} - ^{138}\text{Ba}$ .

Les mesures faites sur 30 ordres donnaient une valeur moyenne de la séparation entre deux maxima de  $4,3_3$  mK et une déviation moyenne de 0,15 mK. A cette valeur il faut ajouter

$^{136}\text{Ba}$  ;  $^{138}\text{Ba}$   
 $\lambda = 5536 \text{ \AA}$  ( $6s^2 \text{ } ^1\text{S}_0 - 6s6p \text{ } ^1\text{P}_1$ )

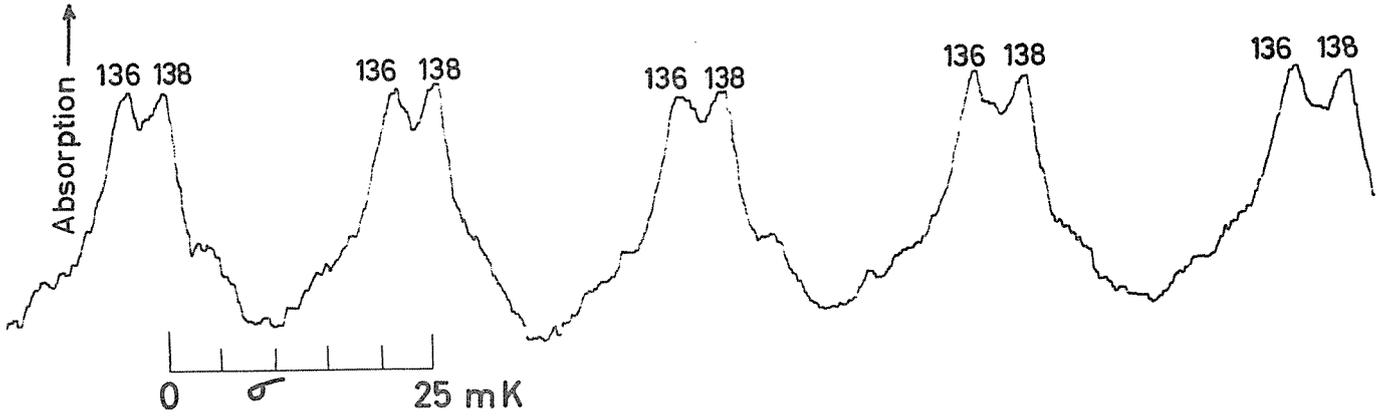


Fig. 22

F. P. s de 10 cm d'épaisseur  
 (Jet atomique, en absorption, de collimation 30/1)

$^{134}\text{Ba}$  ;  $^{138}\text{Ba}$

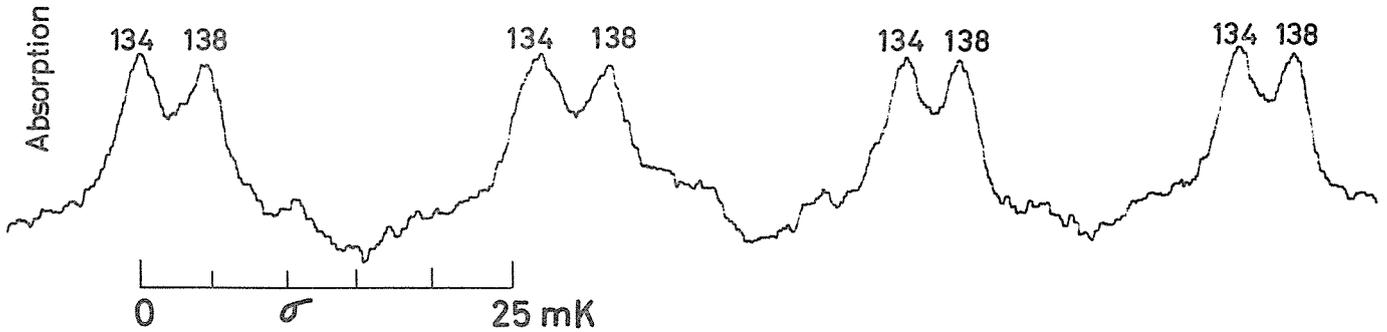


Fig. 22

F. P. s de 10 cm d'épaisseur  
 (Jet atomique, en absorption, de collimation 30/1)



la correction, exposée plus haut, de 0,26 mK.

Le déplacement isotopique entre  $^{134}\text{Ba}$  et  $^{138}\text{Ba}$  est alors 4,6 mK avec une erreur probable de  $\pm 0,1$  mK. Ceci est en bon accord avec la valeur trouvée précédemment ( voir page 45 ).

Déplacement isotopique de  $^{136}\text{Ba}$  -  $^{138}\text{Ba}$ .

Les mesures faites sur 45 ordres donnaient une valeur moyenne de la séparation entre deux maxima de  $3,8_6$  mK avec une déviation moyenne de 0,18 mK. A cette valeur il faut ajouter la correction, exposée plus haut, de  $0,2_5$  mK. Le déplacement isotopique entre  $^{136}\text{Ba}$  et  $^{138}\text{Ba}$  est alors 4,1 mK. L'erreur probable est ici de  $\pm 0,2$  mK; elle est plus grande que dans le cas de  $^{134}\text{Ba}$ , due à une plus grande correction venant de l'effet de recouvrement des ailes. Cette valeur est en bon accord avec celle trouvée précédemment ( voir page 45 ).

CHAPITRE IV.

DISCUSSIONS DES RESULTATS

1). - Rappel des résultats.

D'après l'équation ( I,1) ( page 10) le déplacement isotopique dans un niveau est une somme des effets de volume et de masse. Le déplacement isotopique dans une raie,  $\Delta(M_1, M_2)$ , qui est la différence de déplacement isotopiques des niveaux de départ et d'arrivée de la transition, est donc encore une somme des effets de volume et de masse dans la raie. Ainsi nous pouvons écrire pour une raie :

$$\Delta(M_1, M_2) = \Delta V + \Delta G$$

où  $\Delta V$  est l'effet de volume dans la raie.

$\Delta G$  est l'effet de masse dans la raie

Nous rappelons que  $\Delta G$  est la somme de deux effets, l'effet de Bohr ( $\Delta \bar{B}$ ) et l'effet de masse spécifique ( $\Delta \bar{K}$ ); le premier de ces effets est aisément calculable ( nous avons donné à la page 26, les valeurs de l'effet de Bohr dans quelques transitions des spectres du Ba I et Ba II) et on peut, suivant le type de transition, l'ajouter ou le retrancher des valeurs de déplacement isotopique mesurées, nous supposons dans ce qui suit que cette opération est effectuée :

$$[D.I. - \Delta \bar{B}] = \Delta V + \Delta \bar{K}$$

où : D.I. est le déplacement isotopique observé

Nous donnons au tableau (18) les valeurs de  $[D.I. - \Delta \bar{B}]$  pour les transitions étudiées.

L'effet de masse spécifique, dans une transition donnée et entre deux isotopes  $M_1$  et  $M_2$  est ( voir page 12 )

$$\Delta \bar{K} = m \frac{M_1 - M_2}{M_1 M_2} k \quad : \text{ dans nos conventions } M_1 < M_2$$

(  $k$  ) est calculable à partir des fonctions d'ondes monoélectroniques (voir page 28) et ne dépend que de la transition.

Nous avons donné à la page 31, la valeur de  $\Delta \bar{K}$  pour la transition  $6s^2( {}^1S_0 ) - 6s6p( {}^1P_1 )$   $\lambda = 5536 \text{ \AA}$  :  $\Delta \bar{K} = - 0,2 \text{ mK}$  pour  $M_1 = 134$  et  $M_2 = 135$ .

L'effet de volume  $\Delta V$  ne peut être calculé que pour des atomes à un seul électron, pour les atomes à plusieurs électrons on introduit la notion d'effet d'écran des électrons optiques entre eux (voir page 23) ; cependant selon les théories habituelles on admet que  $\Delta V$  se met toujours sous la forme d'un produit de deux facteurs:

$$\Delta V = aV$$

où :  $a$  ne dépend que des configurations électroniques impliquées dans la transition.

$V$  ne dépend que des propriétés nucléaires des isotopes choisis.

finalement nous avons donc, pour une transition (  $T_I$  ) et plusieurs isotopes  $M_1, M_2 \dots$

$$\left( T_I \right) \quad \begin{aligned} [D.I - \Delta \bar{B}]_{M_1 M_2}^I &= a_I V(M_1 M_2) - \left( \frac{1}{M_1 M_2} \right) k_I \\ [D.I - \Delta \bar{B}]_{M_2 M_3}^I &= a_I V(M_2 M_3) - \left( \frac{1}{M_2 M_3} \right) k_I \quad \text{etc...} \end{aligned}$$

où nous avons supposé que le rapport  $\frac{m}{M}$  est inclus dans  $k$

Dans le but de simplifier l'exposé par la suite, nous avons pris (  $M_1 - M_2$  ) = -1

## 2) - Impossibilité de calculer l'effet de masse spécifique et l'effet de volume à partir des résultats.

Le tableau ( 19 ) donne les différentes valeurs de  $[D.I. - \Delta \bar{B}]$ . A partir de ces valeurs nous pouvons former 6 équations mais nous avons 8 inconnues (  $a_I, k$  et les 6 fonctions  $V$  ). On pourra penser qu'avec plusieurs transitions, le problème pourrait être résolu, mais il n'en est rien ; en effet considérons une seconde transition (  $T_{II}$  )

$$T_{II} \quad [D.I - \Delta \bar{B}]_{M_1 M_2}^{II} = a_{II} V(M_1 M_2) - \left( \frac{1}{M_1 M_2} \right) k_{II}$$

$$[D.I - \Delta \bar{B}]_{M_2 M_3}^{II} = a_{II} V(M_2 M_3) - \left( \frac{1}{M_2 M_3} \right) k_{II}$$

etc...

Dans le cas du Baryum nous avons maintenant 12 équations et 10 inconnues ( $k_I, k_{II}, a_I, a_{II}$ , et les 6 fonctions  $V$ ); mais il n'est pas possible de déterminer les valeurs de ces 10 inconnues car nous avons des systèmes non linéaires ;  $a$  et  $V$  intervenant dans un produit et ainsi toutes les valeurs de ( $a$ ) et de ( $V$ ) telles que le produit ( $aV$ ) ait la valeur requise seront aussi solution. Lorsqu'on regarde le produit ( $aV$ ) comme une seule inconnue on aura un système à 12 équations et 14 inconnues ce qui donne une infinité de solution.

Si nous considérons une troisième transition, nous avons 6 équations en plus mais nous avons ajouté 7 inconnues, à savoir les 6 produits :

$$a_{III} V ( M_i, M_j ) \text{ et } k_{III}$$

Ainsi quelque soit le nombre de transitions considérées et quelque soit le nombre d'isotopes, nous ne pouvons déterminer à partir des résultats expérimentaux les différents produits  $a, V ( M_n, M_m )$ , et  $k$ .

Lorsque les systèmes ( $T_I$  &  $T_{II}$ ) ou ( $T_I$  &  $T_{III}$ ) sont compatibles, en connaissant la valeur de l'effet de masse spécifique dans ( $T_I$ ) on peut en déduire celle de ( $T_{II}$ ) et de ( $T_{III}$ ) Pour vérifier la compatibilité des systèmes  $T_I$  &  $T_{II}$  (ou  $T_I$  &  $T_{III}$ ) on peut utiliser soit la méthode graphique ( p.75) soit le calcul d'un invariant ( p.77). Afin de simplifier l'écriture dans ce qui suit nous écrivons

$$[D.I - \Delta \bar{B}]_{M_1 M_2} = \Delta (M_1 M_2)$$

a) - Méthode graphique.

Considérons, dans le cas du Baryum, les deux systèmes ( $T_I$  &  $T_{II}$ ) et ( $T_I$  &  $T_{III}$ )

où :



En multipliant :

$$\text{l'équation (2) par } \frac{136.137}{137.138} = 0,985$$

$$\text{l'équation (3) par } \frac{135.136}{137.138} = 0,971$$

⋮

$$\text{l'équation (6) par } \frac{130.132}{137.138} = 0,908$$

Nous avons finalement :

$$\begin{aligned} \Delta_{II}(137, 138) &= \frac{a_{II}}{a_I} \Delta_I(137, 138) + \frac{1}{137.138} \left( \frac{a_{II}}{a_I} k_I - k_{II} \right) \\ 0,985 \Delta_{II}(136, 137) &= \frac{a_{II}}{a_I} \left[ 0,985 \Delta_I(137, 138) \right] + \frac{1}{137.138} \left( \frac{a_{II}}{a_I} k_I - k_{II} \right) \\ &\vdots \\ 0,908 \left[ \frac{1}{2} \Delta_{II}(130, 132) \right] &= \frac{a_{II}}{a_I} \left[ 0,908 \left( \frac{1}{2} \Delta_I(130, 132) \right) \right] + \frac{1}{137.138} \left( \frac{a_{II}}{a_I} k_I - k_{II} \right) \end{aligned}$$

Dans une représentation de :

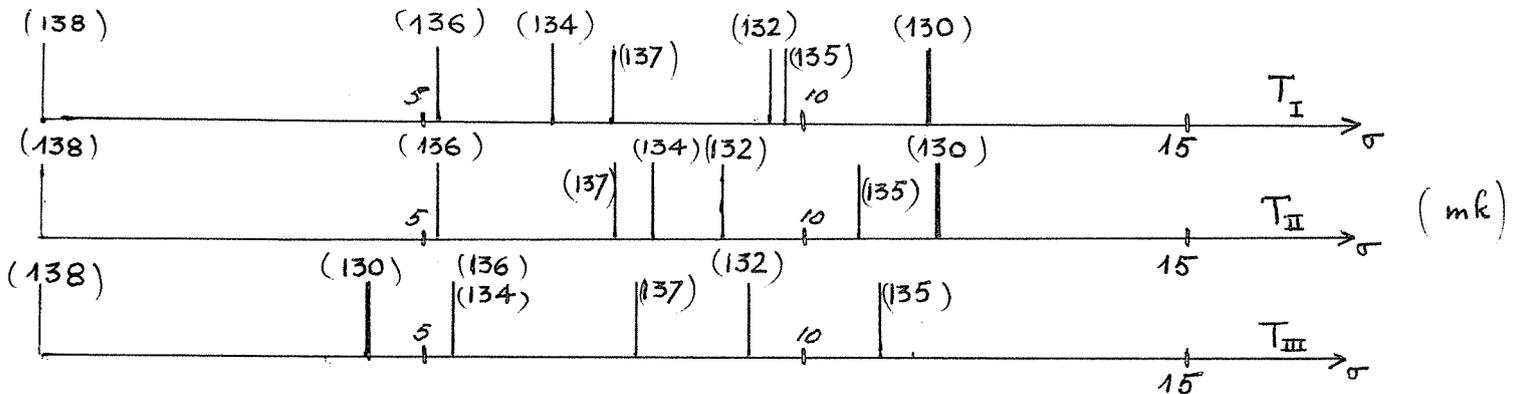
$$\begin{aligned} \Delta_{II}(137, 138) &\text{ en fonction de } \Delta_I(137, 138) \\ 0,985 \Delta_{II}(136, 137) &\text{ " " " } \left[ \Delta_I(136, 137) \right] \cdot 0,985 \\ 0,908 \left[ \frac{1}{2} \Delta_{II}(130, 132) \right] &\text{ " " " } \left[ \frac{1}{2} \Delta_I(130, 132) \right] \cdot 0,908 \end{aligned}$$

Nous devons obtenir rigoureusement une droite, les ordonnées à l'origine étant les mêmes. Nous avons fait le calcul avec le système (T<sub>I</sub> & T<sub>II</sub>) il est évident que ce calcul est valable pour le système (T<sub>I</sub> & T<sub>III</sub>)

Le tableau ci-dessous donne les valeurs  $\Delta(M_1, M_2)$  du tableau (19) multipliées par les facteurs correctifs correspondants, indiqués ci-dessus.

paire d'isotopes	$\Delta_I(M_1, M_2)$	$\Delta_{II}(M_1, M_2)$	$\Delta_{III}(M_1, M_2)$
137 - 138	7,5 <sub>2</sub>	7,4 <sub>0</sub>	7,8 <sub>2</sub>
136 - 137	- 2,3 <sub>3</sub>	- 2,2 <sub>3</sub>	- 2,4 <sub>2</sub>
135 - 136	4,3 <sub>9</sub>	5,3 <sub>1</sub>	5,4 <sub>8</sub>
134 - 135	- 2,8 <sub>2</sub>	- 2,5 <sub>9</sub>	5,4 <sub>0</sub>
$\frac{1}{2}$ ( 132 - 134)	1,3 <sub>1</sub>	0,4 <sub>2</sub>	1,8 <sub>1</sub>
$\frac{1}{2}$ (130 - 132)	0,9 <sub>3</sub>	1,3 <sub>2</sub>	1,8 <sub>5</sub>

La figure (23) donne la représentation graphique. Nous voyons que nous obtenons effectivement une droite aux erreurs expérimentales près dans le cas du système ( $T_I$  &  $T_{II}$ ) mais non dans celui de ( $T_I$  &  $T_{III}$ ). Dans ce dernier cas l'anomalie observée peut être attribuée au déplacement ( 130 - 138), comme nous pouvons le voir d'après le graphique suivant :



Les dispositions relatives des isotopes dans les 3 transitions sont analogues aux erreurs expérimentales près, sauf en ce qui concerne l'isotope 130. L'écart entre la position de l'isotope 130 dans la transition  $T_{III}$  et sa position dans les transitions ( $T_I$  et  $T_{II}$ ) est de 7,5 mK; ce qui est bien en dehors des erreurs expérimentales. Avec la même cathode creuse nous avons repris l'étude du déplacement isotopique (134, 138) dans les transitions ( $T_I$ ) et ( $T_{II}$ ), les résultats obtenus étaient en excellent accord avec ceux obtenus antérieurement. La position " anormale " de l'isotope 130, ainsi confirmée, n'est pas explicable par les théories habituelles, néanmoins malgré les précautions prises une erreur systématique n'est pas exclu à priori.

REMARQUE.

Dans la représentation graphique utilisée par KING l'approximation suivante est faite, (38) :

$$\frac{1}{137 \text{ a } 138} \sim \frac{1}{136 \cdot 137} \dots \sim \frac{1}{130 \cdot 132}$$

Pour des petits déplacements isotopiques, de l'ordre de quelques mK cette approximation est justifiée. Mais dans le cas du Samarium, cette approximation n'est pas justifiée.

b) Calcul de l'invariant (39)

Dans une transition et avec 4 isotopes de masse  $M_1, M_2, M_3, M_4$ , l'invariant est :

$$I = \frac{\Delta(M_4, M_3) - \frac{M_3 \cdot M_2}{M_3 \cdot M_4} \Delta(M_3, M_2)}{\Delta(M_4, M_3) - \frac{M_2 \cdot M_1}{M_3 \cdot M_4} \Delta(M_2, M_1)}$$

Nous considérons les isotopes suivants dans le cas du Baryum :

1 - 138, 136, 132, 130

2 - 138, 136, 134, 132

et nous calculerons l'invariant pour les transitions  $T_I$  et  $T_{III}$  dans ces deux cas :

$$1) \quad I = \frac{\Delta(136, 138) - \frac{132 \cdot 136}{136 \cdot 138} \left[ \frac{1}{2} \Delta(132, 136) \right]}{\Delta(136, 138) - \frac{130 \cdot 132}{136 \cdot 138} \left[ \Delta(130, 132) \right]}$$

$$2) \quad I = \frac{\Delta(136, 138) - \frac{132 \cdot 136}{136 \cdot 138} \left[ \frac{1}{2} \Delta(132, 136) \right]}{\Delta(136, 138) - \frac{132 \cdot 134}{136 \cdot 138} \left[ \Delta(132, 134) \right]}$$

Dans le 1er cas nous avons ainsi :

$$(T_I) \quad 6s^2 \quad 1S_0 \quad - \quad 6s \quad 6p \quad 1P_1 \quad : \quad 0,6_0 \leq I \leq 1,38$$

$$(T_{II}) \quad 6s^2 \quad 1S_0 \quad - \quad 5d \quad 6p \quad 1P_1 \quad : \quad 0,2_7 \leq I \leq 0,5_2$$

Dans le 2° cas, nous avons ainsi :

$$(T_I) \quad 6s^2 \quad 1S_0 \quad - \quad 6s \quad 6p \quad 1P_1 \quad : \quad 0,7_8 \leq I \leq 1,8_0$$

$$(T_{III}) \quad 6s^2 \quad 1S_0 \quad - \quad 5d \quad 6p \quad 1P_1 \quad : \quad 0,9_1 \leq I \leq 4,4_2$$

L'invariant dans le 1er cas, où nous avons pris les isotopes ( 138, 136, 132, 130 ) calculés pour (  $T_I$  ) et (  $T_{III}$  ) ne sont pas compatibles : tandis que dans le second cas, où nous avons pris ( 138, 136, 132, 134 ) ils sont compatibles.

Dans la représentation graphique ci-dessus, cette incompatibilité se traduira par le fait que les 3 points correspondant aux intervalles ( 138, 136 );  $\frac{1}{2}$  ( 132, 136 ) et ( 130, 132 ) ne sont pas sur une droite, tandis que dans le second cas, où il y a compatibilité, les 3 points correspondant aux intervalles ( 138, 136 ) ;  $\frac{1}{2}$  ( 132, 136 ) et ( 132, 134 ) sont sur une droite.

La différence entre ces 2 vérifications est que l'invariant donne une quantité ne dépendant que des propriétés nucléaires tandis que la représentation graphique donne le rapport  $\frac{a_{II}}{a_I}$  ; correspondant à la pente de la droite.

3) - Effet de masse spécifique dans la transition  $6s^2 ({}^1S_0) - 6s 7p ({}^1P_1)$  :

$$\lambda = 3072 \text{ \AA}, \text{ à partir de celui dans la transition.}$$


---


$$6s^2 ({}^1S_0) - 6s 6p ({}^1P_1), \lambda = 5536 \text{ \AA}$$

D'après le graphique de la fig (23), puisque la droite moyenne de pente 1, ( $a_{II}/a_I=1$ ), passe par l'origine, nous avons :

$$\frac{1}{M_1 M_2} \left( \frac{a_{II}}{a_I} k_I - k_{II} \right) \approx \frac{1}{M_1 M_2} (k_I - k_{II}) = 0$$

Ainsi les effets de masse spécifique des transitions I,  $\lambda = 5536 \text{ \AA}$  et II,  $\lambda = 3072 \text{ \AA}$ , sont approximativement égaux. Comme nous avons :

$$\Delta K_I = -0,2 \text{ mk} \quad \text{pour } M_1 = 134; \quad M_2 = 135$$

nous en déduisons :

$$\Delta K_{II} = -0,2 \text{ mk}$$

L'imprécision avec laquelle est donnée la valeur (- 0,2 mK) de l'effet de masse spécifique calculé est difficile à estimer. Nous sommes réduits à évaluer cette incertitude sur d'autres exemples de calcul menés avec la même méthode, ( 40 ). Les valeurs expérimentales sont en général reproduites à mieux de 20 % près, pour les cas de Hélium, Néon, Nickel, ( 40 ). Nous admettrons une incertitude de 100 % pour les valeurs indiquées, en raison du nombre de masse plus élevé du Baryum.

Il sera intéressant de calculer directement la valeur de  $\Delta K_{II}$  mais les possibilités actuelles du calculateur utilisé ne nous permettent pas de le faire.

4) - Effets de volume dans les transitions :  $6s^2 ({}^1S_0) - 6s 6p ({}^1P_1)$ .

$$\lambda = 5536 \text{ \AA} \quad \text{et} \quad 6s^2 ({}^1S_0) - 6s 7p ({}^1P_1) \quad \lambda = 3072 \text{ \AA}$$

Ces valeurs sont obtenues, tableau (20), simplement en ajoutant les effets de masse spécifiques précédents aux valeurs de  $[D.I. - \Delta \bar{B}]$  du tableau (19). Les erreurs probables indiquées sont celles du tableau (19), plus l'incertitude estimée ( $\pm 0,2$  mK) des valeurs des effets de masse spécifiques. D'après le tableau (20) les effets de volume dans les deux transitions considérés sont égaux, aux erreurs probables près. Comme ces deux transitions ont même niveau d'arrivée,  $6s^2 ({}^1S_0)$ , il en résulte que les effets de volume des niveaux de départ  $6s 6p ({}^1P_1)$  et  $6s 7p ({}^1P_1)$  sont équivalents. Un argument en faveur de ceci nous est fourni par les résultats obtenus dans le cas du Mercure (31); en effet d'après l'auteur :

a) déplacement isotopique mesuré de  $6s 6p ({}^1P_1) \simeq$

déplacement isotopique de  $6s$

b) déplacement isotopique mesuré de  $6s 8p \simeq$

déplacement isotopique de  $6s$

en admettant que l'effet de masse spécifique soit négligeable.

Nous avons ainsi dans ce cas :

effet de volume  $6s 6p ({}^1P_1) \simeq$  effet de volume de  $6s 8p \simeq$  effet de volume de  $6s$ .

5) - Effet d'écran des deux électrons  $6s, 6s^2 ({}^1S_0)$ , entre eux

En admettant que l'effet de volume de l'électron  $6p$  est négligeable (voir page 33) et que l'effet d'écran d'un électron  $6s$  sur l'autre est  $1,6$  (31), nous avons au tableau (21a) les valeurs de l'effet de volume pour l'électron  $6s$ . Ce tableau légèrement différent du tableau (20) est fait avec les conditions suivantes :

-  $\delta V (6s 6p) \simeq \delta V (6s 7p)$

- les écarts entre les D.I. calculés et les D.I. observés pour la raie 3072 Å, notés  $\xi$  (D.I. 3072), peuvent être deux fois plus grands que ceux de la raie 5536 Å, notés  $\epsilon$  (D.I. 5536 Å) on voit que ces écarts sont bien en dedans des erreurs expérimentales.

Nous rapprochons ces résultats de ceux de KELLY et TOMCHUK ( 8 ), donnés au même tableau (2b) sur les raies :

$$\begin{array}{l} 6s \ (^2S_{1/2}) \quad - \quad 6p \ (^2P_{1/2}) \quad ; \quad \lambda = \quad 4934 \ \text{Å} \\ 6s \ (^2S_{1/2}) \quad - \quad 6p \ (^2P_{3/2}) \quad ; \quad \lambda = \quad 4554 \ \text{Å} \end{array}$$

La première ligne donne les valeurs mesurées, la troisième ligne ces mêmes valeurs corrigées de l'effet de Bohr; d'après les auteurs l'effet de masse spécifique dans ces raies serait faible.

Par comparaison des parties a et b du tableau (21) il est probable que l'effet d'écran d'un électron s sur l'autre dans le cas du Baryum est effectivement proche de 1,6

A première vue, les différences entre les valeurs de l'effet de volume de l'électron 6s ( $\delta V_{6s}$ ) obtenues des mesures des D.I. dans les raies 5536 Å et 3072 Å du Ba I, et 4934 Å et 4554 Å du Ba II, semblent être trop grandes dans les cas des isotopes impairs, 137 et 135, mais il est possible que les erreurs expérimentales des mesures des D.I. dans les raies de Ba II sont un peu plus grandes qu'elles n'ont été estimées, à cause de la structure hyperfine qui est très grande. Pour les isotopes pairs, 136 et 134, les différences de  $\delta V_{6s}$ , des tableaux (2a) et (2b), ne dépassent pas les erreurs expérimentales estimées.

6) - Constante de déplacement isotopique de l'électron 6s

Cette constante est donnée par la formule ( voir page 21 )

$$C_{exp} = (C_{th} + C_{\alpha}) = \Delta SE (M_1, M_2) : \frac{Z_a^2}{n_a^3} \frac{dn_a}{dn}$$

où :

$C_{th}$  : Constante de déplacement isotopique calculée pour un modèle nucléaire de symétrie sphérique

$C_{\alpha}$  : Constante de déformation

$\Delta SE (M_1, M_2)$  : effet de volume de l'électron 6s

$Z_a = 1$  pour l'atome neutre.

$n_a =$  nombre quantique principal effectif = 1,6 1/5 (41)  $\frac{dn_a}{dn} = 1$  (42)

Avec ces valeurs, nous avons au tableau (22) les valeurs de  $C_{exp}$  pour différentes paires d'isotopes. Au même tableau nous donnons la valeur de  $C_{th}$ , donnée à la page 33, la valeur de  $C_{\alpha}$  le couple (137-135) a été calculée à la page 33 à partir des valeurs des moments quadripolaires,

Il y a un net désaccord entre les valeurs expérimentales et théoriques, ceci pourrait venir d'un effet autre que celui de déformation considéré.

#### 7) - Positions relatives des isotopes.

KOPFERMANN (43) a noté que lorsque le déplacement isotopique relatif reste constant pour un grand nombre de transition de types différents on peut alors en déduire que l'effet de masse spécifique peut être négligeable. Inversement lorsque le déplacement isotopique relatif varie d'un type de transition à l'autre il y a lieu de tenir compte d'un effet de masse spécifique. C'est ainsi que KING (38) interprète les différentes valeurs obtenues pour le déplacement isotopique relatif, par STRINGANOV et coll, dans le cas du Samarium mais cette

explication demanderait l'existence d'un effet de masse spécifique de l'ordre de 12 mK. Des conclusions similaires ont été obtenues récemment par GERSTENKORN, HELBERT et CHABBAL (39) dans l'interprétation des variations du déplacement isotopique relatif dans le cas du Néodyme. Comme les calculs de l'effet de masse spécifique n'ont pas été effectués dans le cas du Samarium et du Néodyme on ne peut pas actuellement faire de comparaison entre théorie et expérience. Ceci est regrettable car il est susceptible de fournir la raison pour laquelle les effets de masse spécifique dans le cas du Baryum sont d'un ordre de grandeur inférieur à ceux du Samarium et du Néodyme.

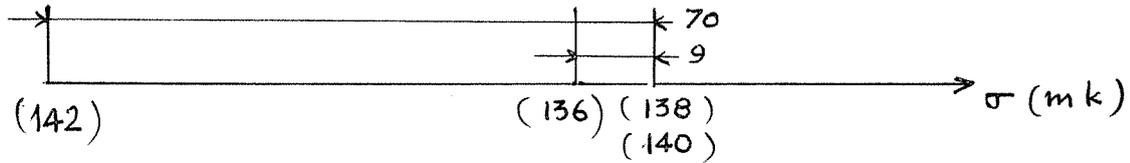
Le phénomène de ODD-EVEN STAGGERING observé est particulièrement important dans le cas du Ba. Il aurait pu être expliqué comme un effet apparent si l'on admet un effet de masse suffisamment important, tableau (23) et fig (24), ainsi par exemple pour un effet de masse total ( Bohr + spécifique ) de - 3 mK pour  $\Delta M = 1$ , la position de l'isotope 137 est bien à l'intérieur de l'intervalle ( 136 - 138 ) et pour un effet de masse total de - 5mK celle de l'isotope 135 est bien à l'intérieur de l'intervalle (134-136). Mais cette hypothèse n'est pas confirmée par la valeur calculée de cet effet, de l'ordre de - 0,7 mK pour  $\Delta M = 1$

Par contre la disposition relative des isotopes pairs est régulière ( sauf pour l'isotope 130 dans la transition  $6s^2 ( ^1S_0 ) - 5d 6p ( ^1P_1 )$  ). Cette position anormale de l'isotope 130 est à rapprocher de celle de l'isotope 136 dans le cas du Cérium.

Dans le cas du Cérium (  $Z = 58$  ) nous avons les isotopes stables suivants :

M	142	140	138	136
N	84	82	80	78

Pour la transition  $\lambda = 4845 \text{ \AA}$  la disposition suivante était observée (44) :



L'erreur probable sur la position de 138 est  $\pm 3$  mK. La position du  $^{136}\text{Ce}$  est "anormale".

Les nombres de neutrons pour les différents noyaux des isotopes pairs du Baryum sont :

M	138	136	134	132	130
N	82	80	78	76	74

Comme dans le cas du Cérium le déplacement isotopique 142 - 140 est particulièrement important, par analogie, on pourra supposer que le déplacement isotopique  $^{138}\text{Ba} - ^{140}\text{Ba}$  serait aussi important (relativement aux D.I. observés), la mesure du D.I.  $^{138}\text{Ba} - ^{140}\text{Ba}$  sera ainsi très intéressante.

CHAPITRE VI.

LES MOMENTS QUADRIPOLAIRES DES ISOTOPES  $^{135}\text{Ba}$  et  $^{137}\text{Ba}$

1) Valeurs des constantes de structure hyperfine magnétique (A) et quadripolaire (B)

La structure hyperfine du niveau  $6s6p \ ^1P_1$ , dérivée des mesures, est représenté sur la figure (25).

Nous voyons que la distorsion des intervalles, due à la présence des moments quadripolaires, est particulièrement grande ( la ligne horizontale, en pointillé, représenterait la position du sous-niveau  $F = \frac{3}{2}$  si les moments quadripolaires étaient nuls et si les largeurs de structure hyperfine étaient les mêmes). En absence d'un moment quadripolaire le rapport des intervalles  $(\frac{5}{2}, \frac{3}{2})$  et  $(\frac{3}{2}, \frac{1}{2})$  serait 1,67 : 1 alors qu'il est de 0,88 : 1 pour  $^{135}\text{Ba}$  et 0,67 : 1 pour  $^{137}\text{Ba}$  : la composante centrale de la structure hyperfine est donc déplacée approximativement de 15 % ( pour  $^{135}\text{Ba}$  ) et 20 % ( pour  $^{137}\text{Ba}$  ) de la largeur totale de la structure, ceci est un cas favorable pour déterminer les valeurs des facteurs de couplage quadripolaire B. Les valeurs de ces facteurs sont donnés par la formule de CASIMIR ( 45 ) :

$$T = T_0 + \frac{A}{2} K + B \left[ K(K+1) - \frac{4}{3} I(I+1) J(J+1) \right]$$

$$K = F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)$$

d'où nous déduisons les écarts des niveaux hyperfins :

$$\left( \frac{5}{2}, \frac{3}{2} \right) = \frac{5}{2} A + \frac{5}{4} B$$

$$\left( \frac{3}{2}, \frac{1}{2} \right) = \frac{3}{2} A - \frac{9}{4} B$$

où A est le facteur de couplage magnétique.

Du fait que les sous-niveaux hyperfins sont inversés, les intervalles  $(\frac{5}{2}, \frac{3}{2})$  et  $(\frac{3}{2}, \frac{1}{2})$  ont des valeurs négatives, et les valeurs de A et B déduites des valeurs des intervalles indiquées sur la figure (25) sont

$$A (137) = - 3,6 \pm 0,1 \text{ mK} \quad ; \quad B (137) = 1,9 \pm 0,1 \text{ mK}$$

$$A (135) = - 3,2 \pm 0,1 \text{ mK} \quad ; \quad B (135) = 1,1 \pm 0,1 \text{ mK}$$

Les erreurs probables des valeurs de A et B ont été calculées en prenant pour erreur probable de mesure des intervalles  $\pm 0,2 \text{ mK}$ .

Les rapports des facteurs A et B des deux isotopes sont

$$\frac{A (137)}{A (135)} = 1,10 \pm 0,03 \quad \text{et} \quad \frac{B (137)}{B (135)} = 1,63 \pm 0,1$$

en bon accord avec les valeurs trouvées par les méthodes de résonance magnétique nucléaire

$$\frac{A (137)}{A (135)} = 1,118 \quad (46) \quad ; \quad \frac{Q (137)}{Q (135)} = 1,537 \quad (47)$$

La valeur de  $A (137) = - 3,6 \pm 0,1 \text{ mK}$  ( ou  $A (137) = - 108,3 \pm 3,0 \text{ MC/sec}$  ) a été confirmée par la suite par ALLEN LURIO (9) qui, utilisant la technique du croisement des niveaux, a trouvé  $A (137) = 113,2 \pm 1,0 \text{ Mc/Sec}$ .

## 2) Valeurs des moments quadripolaires.

a) - les valeurs des moments quadripolaires Q, des isotopes  $^{135}\text{Ba}$  et  $^{137}\text{Ba}$  peuvent être calculées à partir des facteurs B correspondant. En effet, d'après KOPFERMANN (48)

$$Q = \frac{15 \mu_B^2 Z_i H_r B}{e^2 (C_2^2 R_r + 2\sqrt{2} C_1 C_2 S_r) \delta W}$$

$Z_1 = 51$  , charge nucléaire effective sur l'électron 6p du Baryum.

$H_r$  ,  $R_r$  , et  $S_r$  : les corrections relativiste, ayant les valeurs respectives 1,066 ; 1,118 et 1,202.

B : facteur de couplage quadripolaire

e : charge de l'électron

$C_1$  et  $C_2$  coefficients de couplage des niveaux 6s 6p  $^1P_1$  et 6s 6p  $^3P_1$  en couplage jj

$\delta W$  : séparation des niveaux 6s 6p ( $^3P_0$ ) et 6s 6p ( $^3P_2$ )

En utilisant les valeurs indiquées précédemment pour B (135) et B (137) nous avons trouvé :

$$Q (^{135}\text{Ba}) = 0,13 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$$

$$Q (^{137}\text{Ba}) = 0,21 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$$

avec une erreur probable de  $\pm 0,01 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ . Cette erreur probable est basée uniquement sur les erreurs probables des valeurs expérimentales de A et B. L'erreur provenant de l'incertitude avec laquelle  $Z_1$  est connue, et la dérivation de  $\langle 1/r^3 \rangle$  de SW, est probablement beaucoup plus grande.

b) - En même temps que le déroulement de l'expérience que nous avons décrit au chapitre précédent, la structure hyperfine du niveau 6s 6p ( $^3P_1$ ) a été observée par Zu PUTLITZ (7), en utilisant la méthode de double résonance magnétique nucléaire.

Les facteurs A et B correspondants sont :

	A	B
$^{135}\text{Ba}$	34,25	- 0,903 mK
$^{137}\text{Ba}$	38,35	- 1,387 mK

Les valeurs de B sont exactes à  $\pm 0,01$  mK

Les valeurs de Q déduites des valeurs de B sont

$$Q (^{135}\text{Ba}) = 0,18 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$$

$$Q (^{137}\text{Ba}) = 0,28 \times 10^{-28} \text{ cm}^2$$

La structure hyperfine du niveau  $6s\ 6p\ (^3P_1)$  a été observée antérieurement par KALITTEEVSKI, FRADKIN et CHAIKA (49), en mesurant les structures hyperfines des raies :  $4\ 599,7\ \text{Å}$  ( $6p^2\ ^1S_0 - 6s6p\ ^3P_1$ ) et  $4\ 573,9\ \text{Å}$  ( $6p^2\ ^3P_0 - 6s\ 6p\ ^3P_1$ ) du spectre d'arc du Baryum, par voie optique.

Les différences entre les valeurs données par ces auteurs et celles de Zu PUTLITZ sont dues aux inexactitudes des mesures des intervalles hyperfins faites par KALITTEEVSKI et *Coll.*

c) - Les valeurs des moments quadrupolaires calculées à partir du niveau  $^1P_1$  ou de celui de  $^3P_1$  sont différentes et le désaccord entre ces valeurs sont en dehors des limites des erreurs expérimentales. Ce désaccord peut, peut être, s'expliquer par le fait que l'approximation utilisée dans les calculs (même valeur de  $a_p$  pour l'électron  $6p$  dans  $^1P_1$  et  $^3P_1$ ) n'est pas correcte.

d) - Un calcul de la structure hyperfine des niveaux  $^1P_1$  et  $^3P_1$  de  $6s6p$ , en tenant compte de la présence de la configuration  $5d6p$  a été fait (50). Cependant ce calcul ne permet pas d'expliquer le désaccord cité.

REMARQUE.

Les configurations de neutrons dans les sous-couches, entre les couches complètes, (N = 50) et (N = 82) sont les suivantes pour les isotopes impairs, d'après le modèle en couches :

	$4d_{5/2}$	$5g_{7/2}$	$3s_{1/2}$	$6h_{11/2}$	$3d_{3/2}$
$^{135}\text{Ba}$	6	8	2	12	1
$^{137}\text{Ba}$	6	8	2	12	3

D'après le modèle de Rainwater le moment quadrupolaire de  $^{137}\text{Ba}$  doit être positif, le nombre d'occupation (3) est plus grand que  $2j + 1 / 2 = 2$ , tandis que celui de  $^{135}\text{Ba}$  doit être négatif, le nombre d'occupation (1) est plus petit que  $2j + 1 / 2 = 2$ . Ceci est en contradiction avec l'expérience. Zu PUTLITZ a alors proposé des configurations suivantes pour ces deux isotopes :

	$4d_{5/2}$	$5g_{7/2}$	$3s_{1/2}$	$6h_{11/2}$	$3d_{3/2}$
$^{135}\text{Ba}$	6	8	2	10	3
$^{137}\text{Ba}$	6	8	2	12	3

pour obtenir les signes positifs des moments quadripolaires. On peut aussi obtenir un spin nucléaire  $3/2$  et des moments quadrupolaires positifs avec le schéma proposé par KLINKENBERG (51) sur la base des résultats expérimentaux, pour les noyaux pair-impair où  $N > 50$  :

	$5g_{7/2}$	$4d_{5/2}$	$6h_{11/2}$	$4d_{3/2}$	$3s_{1/2}$
$^{137}\text{Ba}$	8	6	12	3	2
$^{135}\text{Ba}$	8	6	12	3	

CONCLUSION

-----

L'étude du déplacement isotopique mené par deux méthodes différentes, associé à un calcul de l'effet spécifique dans la raie de résonance, nous a permis de déduire les valeurs des constantes de déplacement isotopique pour l'électron 6s, pour des noyaux ayant de 74 à 82 neutrons. Ces constantes de déplacement isotopiques ne peuvent s'expliquer par les théories habituelles qu'en admettant des déformations des noyaux impliqués, relativement grandes, en contradiction avec l'idée généralement admise que près du nombre magique de neutrons  $N = 82$ , les déformations sont faibles.

La méthode spectrométrique en absorption a permis d'une part d'améliorer la précision des mesures de déplacements isotopiques, d'autre part, en résolvant les structures hyperfines des isotopes impairs, de calculer les valeurs des moments quadripolaires de ces isotopes à partir des valeurs des constantes électriques de structure hyperfine du niveau  $6s\ 6p\ ^1P_1$ . Comme dans le cas de l'Ytterbium (52) ou du Mercure (31) les valeurs des moments quadripolaires calculées à partir de  $^1P_1$  ou  $^3P_1$  sont différentes. Cette différence, probablement due à une approximation de calcul, a donné lieu à un raffinement de calcul théorique des moments quadripolaires (53).

Nous voudrions conclure sur l'intérêt que présente l'étude du déplacement isotopique  $^{138}\text{Ba}$  -  $^{140}\text{Ba}$  (ce dernier ayant une durée de vie de 12,8 jours). Cette étude permettra de traverser le nombre de neutrons magique  $N = 82$  et de relier le cas du Baryum à celui du Cérium. Finalement les travaux sur les D.I. des éléments suivants :

Xenon	( N = 74, 76, 78, 80, 82, 84 ; Z = 54 )
Baryum	( N = 74, 76, 78, 80, 82, 84 ; Z = 56 )
Cerium	( N = 78, 80, 82, 84 ; Z = 58 )

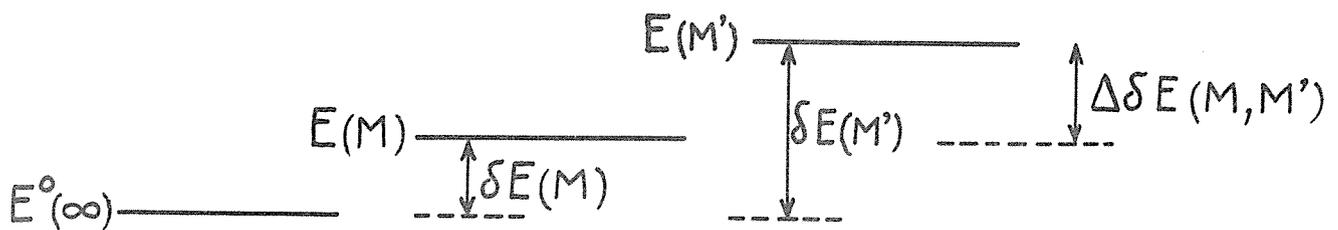
devront permettre de préciser les caractéristiques des noyaux aux alentours du nombre de neutron magique  $N = 82$ .

BIBLIOGRAPHIE

- 1 - H. KOPFERMANN et G. WESSEL : Nach. Akad. Wiss., Göttingen, Math. Phys. 2, 53 (1949)  
Nach. Akad. Wiss. Göttingen, Math. Phys. 3, 1 (1951)
- 2 - O.H. ARROE : Phys. Rev., 79, 836 (1950)
- 3 - D.A. JACKSON : J. Phys. Rad., 18, 145 (1957)  
Phys. Rev., 106, 948 (1957)
- 4 - J.E. MACK : Phys. Rev., 109, 820 (1958)
- 5 - D.A. JACKSON : Proc. Roy. Soc. A-263, 289 (1961)
- 6 - A.N. RAZUMOVSKI et M.P. TCHAIKA : Opt. Spect., 12, (3), 188 (1962)
- 7 - G. Zu PUTLITZ : Ann. Phys. Lpz 7, 11, 248 (1963)
- 8 - F.M. KELLY et E. TOMCHUK : Can. J. Phys., 42, 918 (1964)
- 9 - A. LURIO : Phys. Rev. 136, A 376 (1964)
- 10 - J.P. VINTI : Phys. Rev., 16, 1120 (1939)
- 11 - D.R. HARTREE : The calculation of atomic structure. John Wiley and sons, New York (1957)
- 12 - C.C. ROOTHAN : Rev. Mod. Phys., 23, 69 (1951)
- 13 - J.C. SLATER : Quantum theory of atomic structure. Mc Graw Hill Book C°, New York, 2 (25) (1960)
- 14 - R.K. NESBET : Proc. Roy. Soc., A 230, 312 (1955)
- 15 - Ch. FROESE : Can. J. Phys., 41, 1895 (1963)
- 16 - C.C. ROOTHAN : Rev. Mod. Phys., 32, 179 (1960)
- 17a - R.K. NESBET : Rev. Mod. Phys., 35, 552 (1963)
- 17b - R. LEFEBVRE : J. Chim. Phys., 54, 168 (1957)
- 18a - J.E. ROSENTHAL et G. BREIT : Phys. Rev., 41, 459 (1932)
- 18b - G. BREIT : Rev. Mod. Phys., 30, 507 (1958)
- 19 - P. BRIX et H. KOPFERMANN : Zeits. Phys., 126, 344 (1949)
- 20 - L. WILETS, D.L. HILL et K.W. FORD : Phys. Rev., 91, 1488 (1953)
- 21 - A.R. BODMER : Proc. Phys. Soc., A 66, 1041 (1953)
- 22 - A.R. BODMER : Proc. Phys. Soc., A 67, 622 (1954)
- 23 - W. HUMBACH : Zeits. Phys., 133, 589 (1952)
- 24 - P. BRIX et H. KOPFERMANN : Rev. Mod. Phys., 30, 517 (1958)
- 25 - M.F. CRAWFORD et A.L. SCHALOW : Phys. Rev., 76, 1310 (1949)
- 26 - K.E. BROCH : Arch. Math. Nat., 48, 25 (1945)
- 27 - N.J. IONESCO-PALLAS : Ann. Phys., 7, 8, 9 (1961) - Ann. Phys. 7, 10, 121 (1962)

- 8 - H. KOPFERMANN : Nuclear Moments , Academic Press, New York, 172 (1958)
- 9 - P. BRIX et H. KOPFERMANN : Zeits Akad Wiss. , Göttingen, 17, (1951)
- 0 - P. BRIX et H. KOPFERMANN : Rev. Mod. Phys. , 30, n°2, Part 1, 517 (1958)
- 1 - J. BLAISE : Thèse, Paris (1958)
- 2 - C.L. SCHWARTZ : cité par Manuel Rotenberg, R. Bivins, N. Metropolis, J. K. Wooford  
"The 3-J and 6-J Symbols", Crosby Lockwood and son, London (1959)
- 3 - J.C. SLATER : Quantum theory of atomic structure, McGraw Hill Book C°, New York,  
2 ; 286 (1960)
- 4 - J. BAUCHE : Communication personnelle
- 5 - G. RACAH : Physica, 16, 7, 651 (1950)
- 6 - S. GERSTENKORN : Thèse, Paris (1962)
- 7 - C.V. JACKSON : Proc. Roy. Soc. , A-143 , 124 (1933)
- 8 - W.H. KING : J1 Opt. Soc. Am. , 53, 638 (1963) - Proc. Roy. Soc. , A-280, 430 (1964)
- 9 - S. GERSTENKORN, J.M. HELBERT et R. CHABBAL : C.R. Acad. Sc. , 261, 1232 (1965)
- 0 - J. BAUCHE : C.R. Acad. Sc. , Septembre 1966 (à paraître)
- 1 - H.G. KUHN : Atomic Spectra, Longmans, Green and C°, London, 181, (1952)
- 2 - I.I. GOLDMAN : J.E.T.P. , 24, 177 (1953)
- 3 - H. KOPFERMANN : Nuclear Moments, Academic Press, New York, 182 (1958)
- 4 - R.J. CHAMPEAU : Communication personnelle.
- 5 - H.B.G. CASIMIR : Thèse, Teyler's Tweede Genootshap, Harlem (1936)
- 6 - R.H. HAY : Phys. Rev. , 79 , 836 (1950)
- 7 - H.E. WALCHI et T.J. ROWLAND : Phys. Rev. , 102, 1334 (1956)  
R.M. WILLIAMS et J.W. Mc GRATH : Phys. Rev. , 127, 184 (1962)
- 8 - H. KOPFERMANN : Nuclear Moments, Academic Press, New-York, 152 (1958)
- 9 - N.I. KALITEWSKI, E.E. FRADKIN et M.P. TCHAI KA : J.E.T.P. , 12, 661 (1960)
- 0 - M. KLAPISCH et DUONG HONG TUAN : (à paraître)
- 1 - P.F.A. KLINKENBERG : Rev. Mod. Phys. , 24, 63 (1952)
- 2 - J.S. ROSS et K. MURAKAWA : Phys. Rev. , 128, 1159 (1962) - J. Phys. Soc. Jap. , 19,  
249 (1964)
- 3 - M. KALPISCH : à paraître.





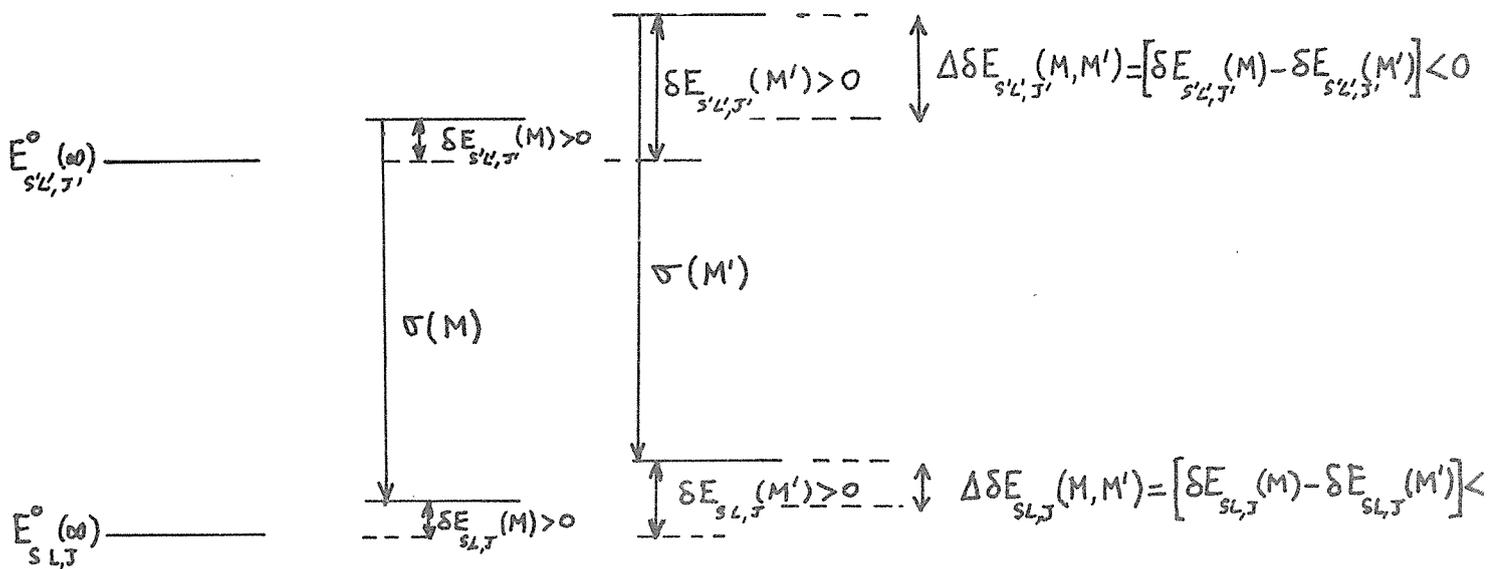
ATOME A NOYAU DE  
MASSE INFINIE ET  
ASSIMILE A UNE  
CHARGE PONCTUELLE

ISOTOPE DE MASSE M  
A NOYAU A  
EXTENSION FINIE

ISOTOPE DE MASSE M'  
A NOYAU A EXTENSION  
FINIE

Fig. 1

DEFINITIONS DES DEPLACEMENTS D'ENERGIE D'UN NIVEAU

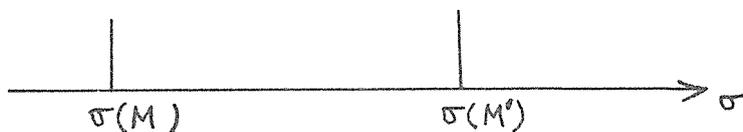


"Isotope de  
masse infinie"

Isotope de  
masse M

Isotope de  
masse M'

$$\left| \frac{\Delta \delta E_{SL,J}(M, M')}{\Delta \delta E_{S'L',J'}(M, M')} \right| < 1$$



$$\sigma(M) - \sigma(M') = \Delta \delta E_{S'L',J'}(M, M') - \Delta \delta E_{SL,J}(M, M')$$

Fig 2

POSITIONS RELATIVES DES ISOTOPES

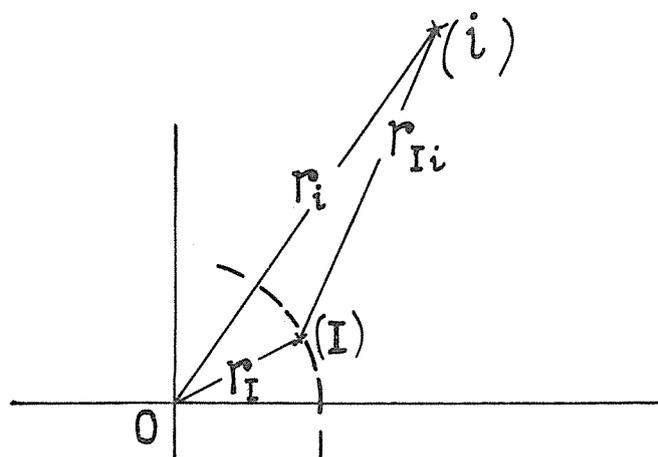


Fig.3a

Fig 3

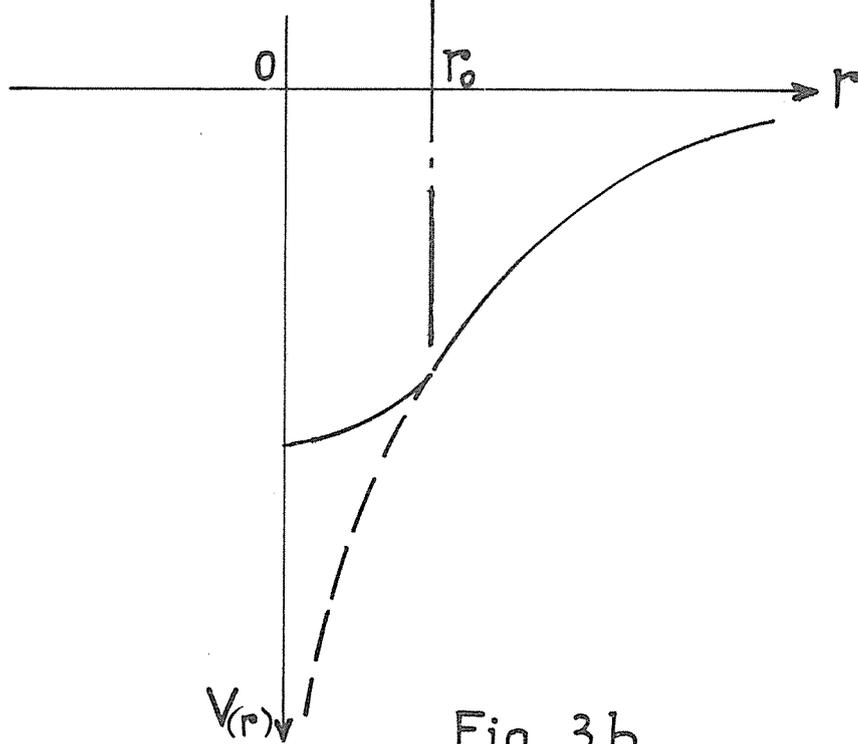


Fig.3b

POTENTIEL D'INTERACTION ELECTRON-NOYAU

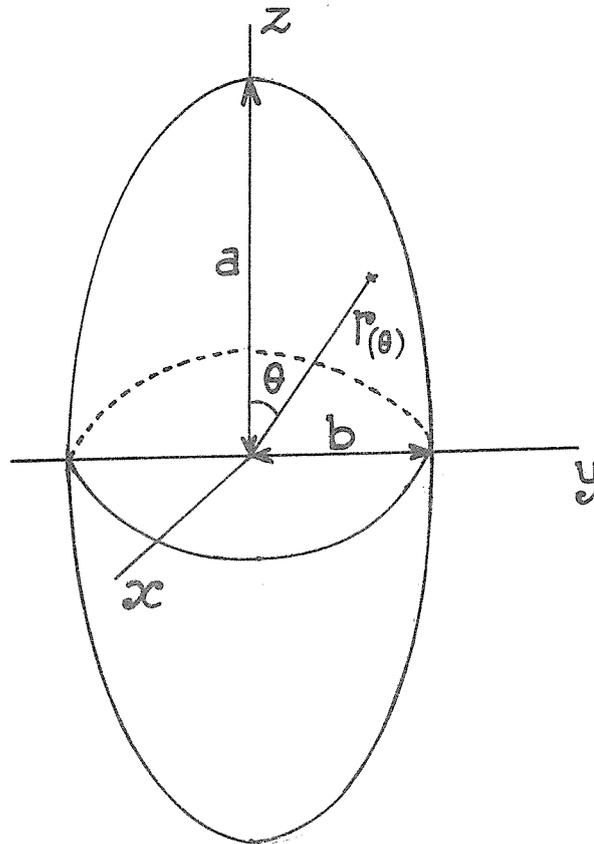


Fig 4

NOYAU DEFORME

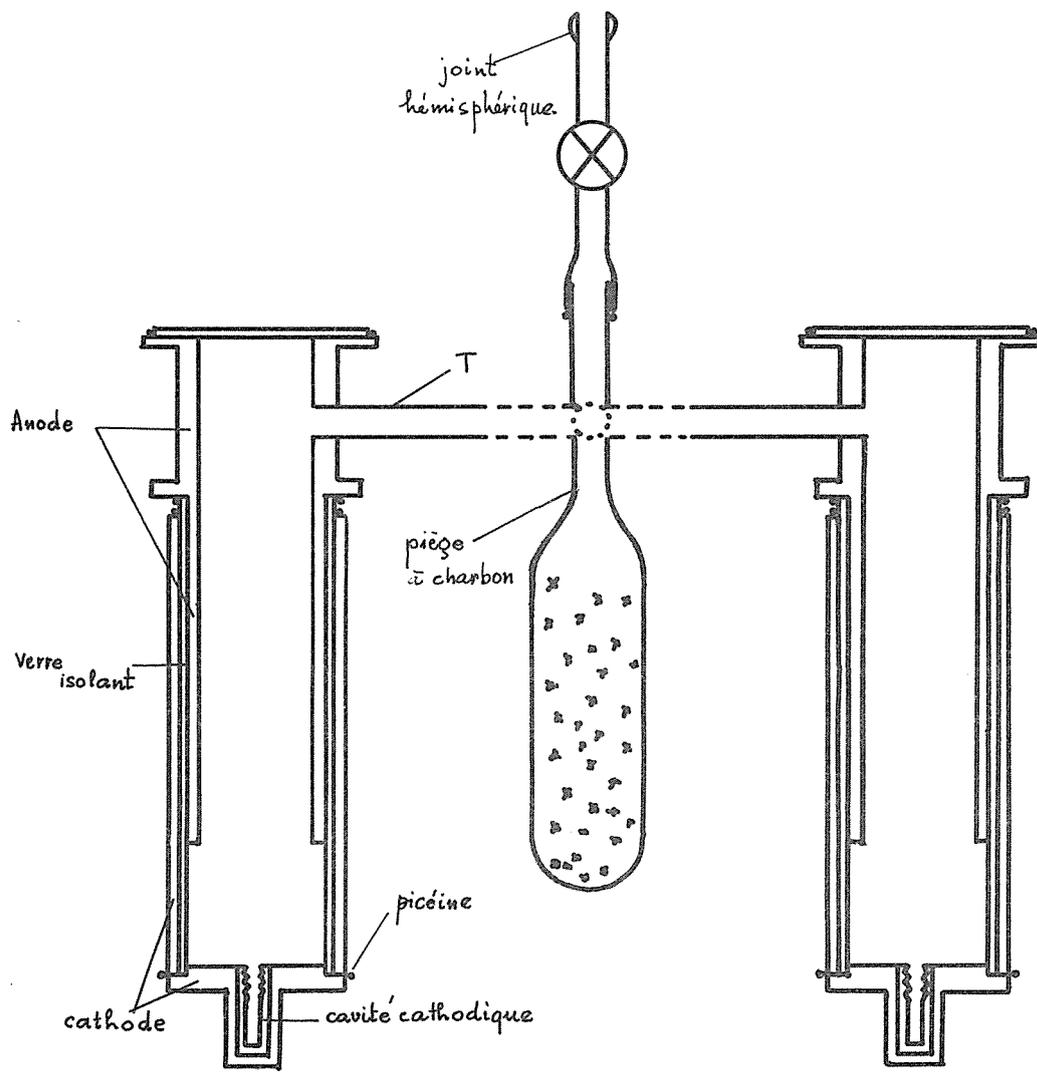


fig 5 CATHODE CREUSE

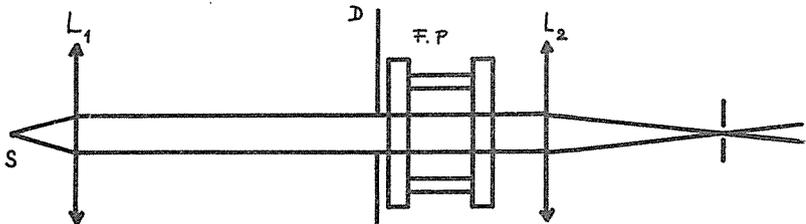
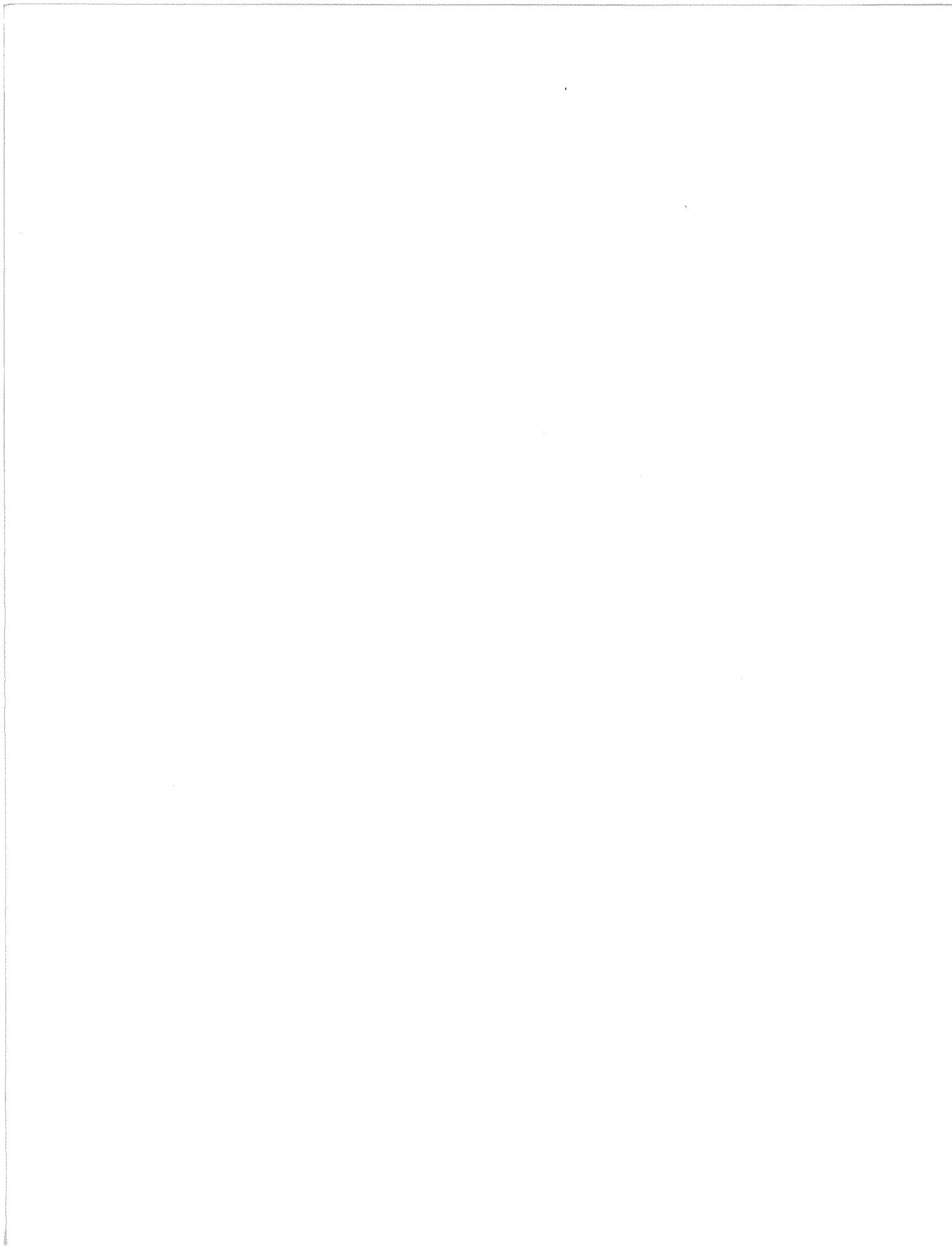


fig 6 SCHEMA DU MONTAGE UTILISE



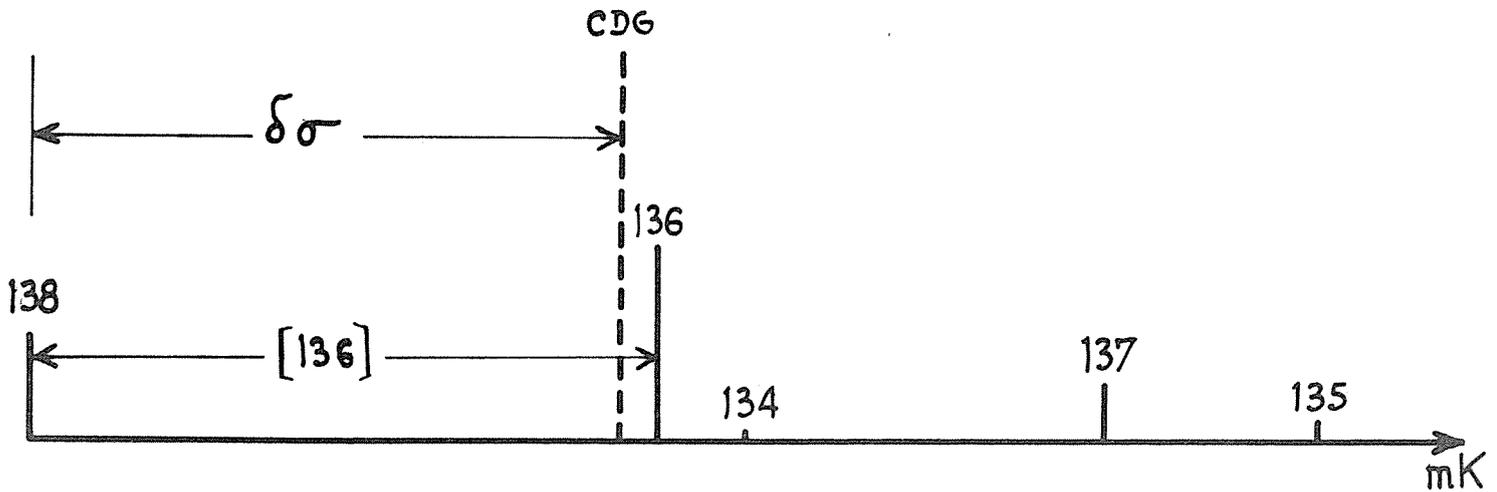


fig 7

CDG : POSITION DU CENTRE DE GRAVITE DE LA RAIE COMPLEXE CORRESPONDANT  
 AU MELANGE ENRICHI EN  $^{136}\text{Ba}$

"136" : MELANGE ENRICHI EN  $^{136}\text{Ba}$

DIFFERENCE DE NOMBRE D'ONDE MESUREE,  $\delta\sigma$  ET DEPLACEMENT ISOTOPIQUE,  
 D.I, CORRESPONDANT .

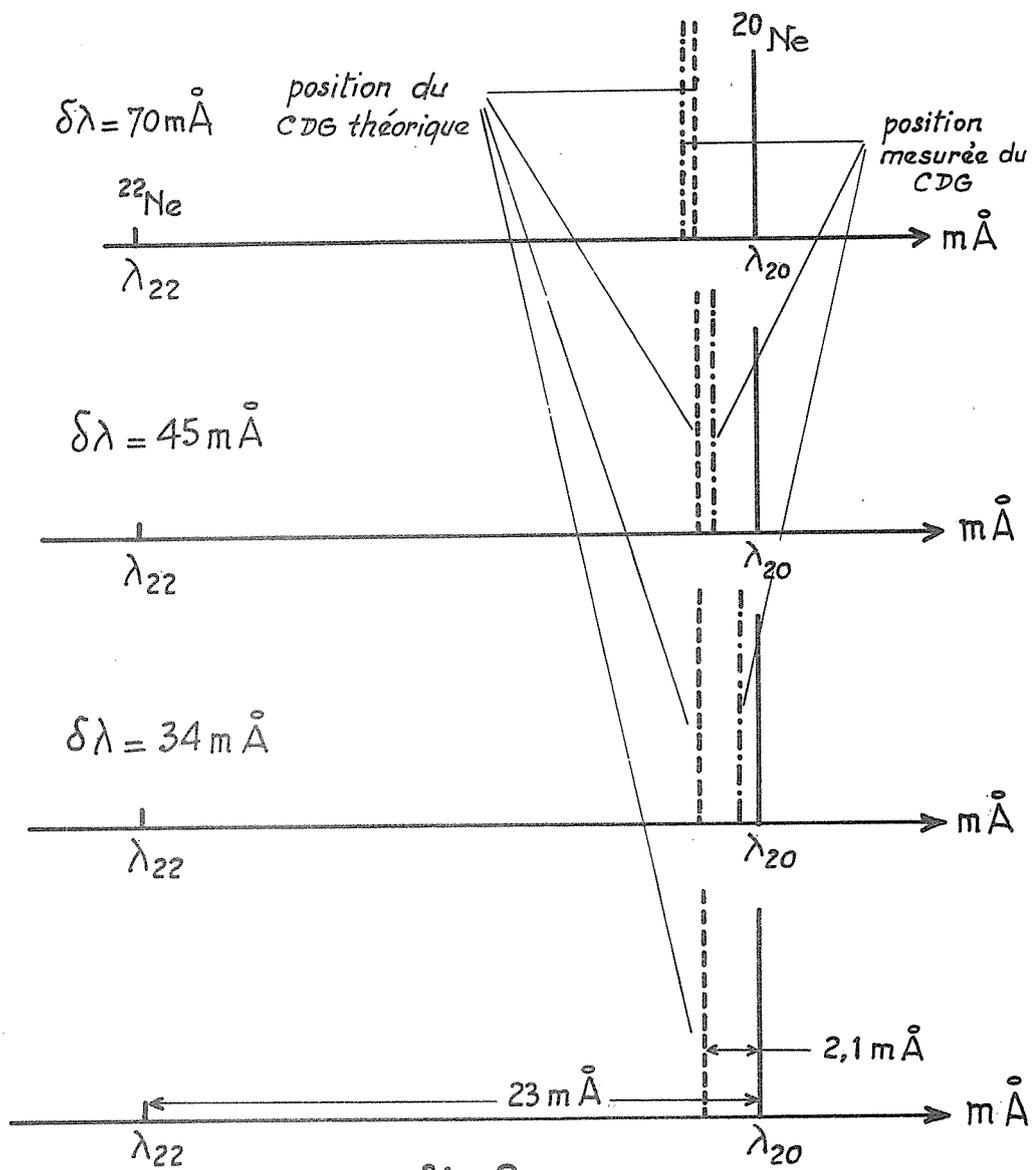


fig 8

POSITION MESUREE DU CDG D'UNE RAIE COMPLEXE (FORMEE DE COMPOSANTES NON RESOLUES)  
EN FONCTION DE LA LIMITE DE RESOLUTION.

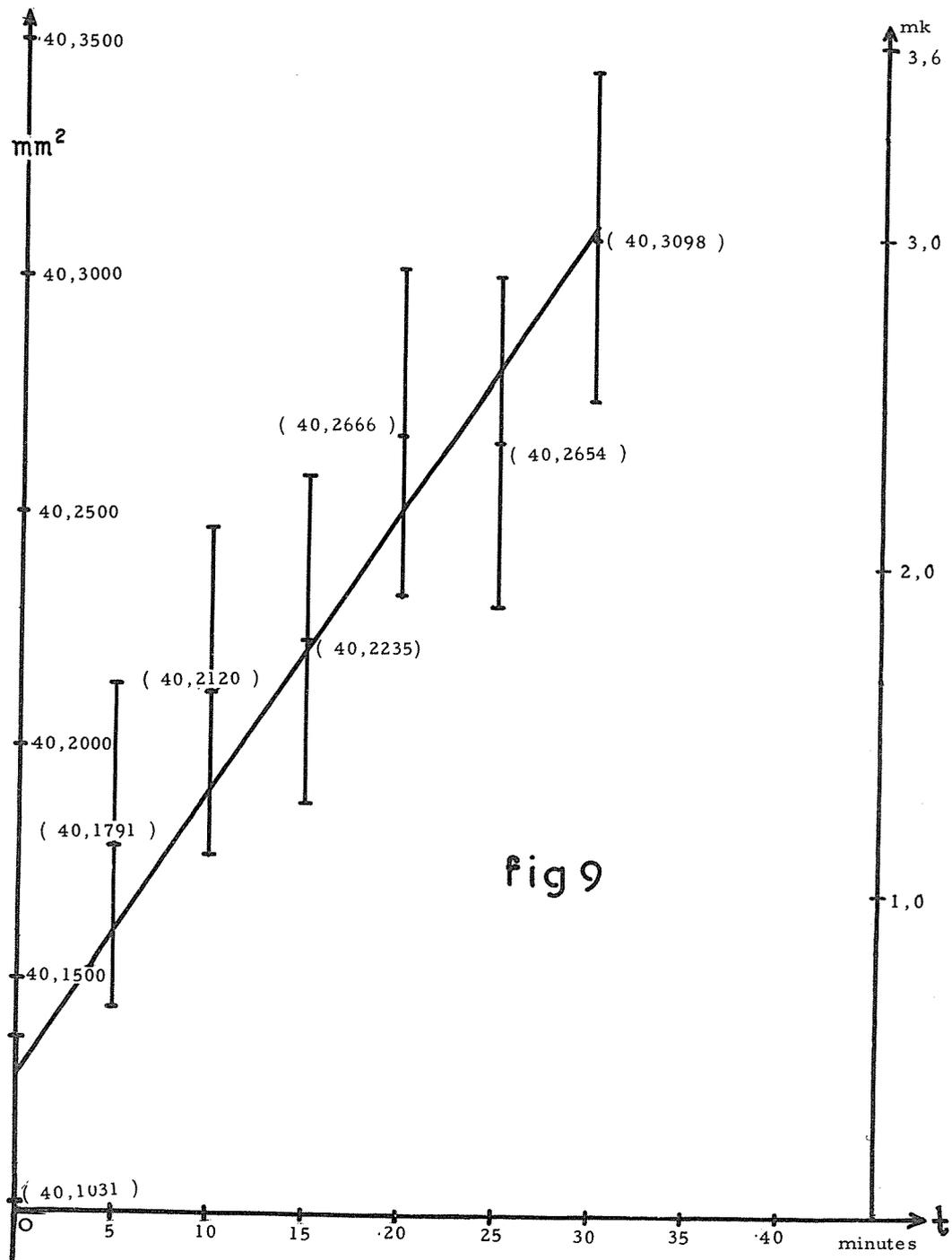
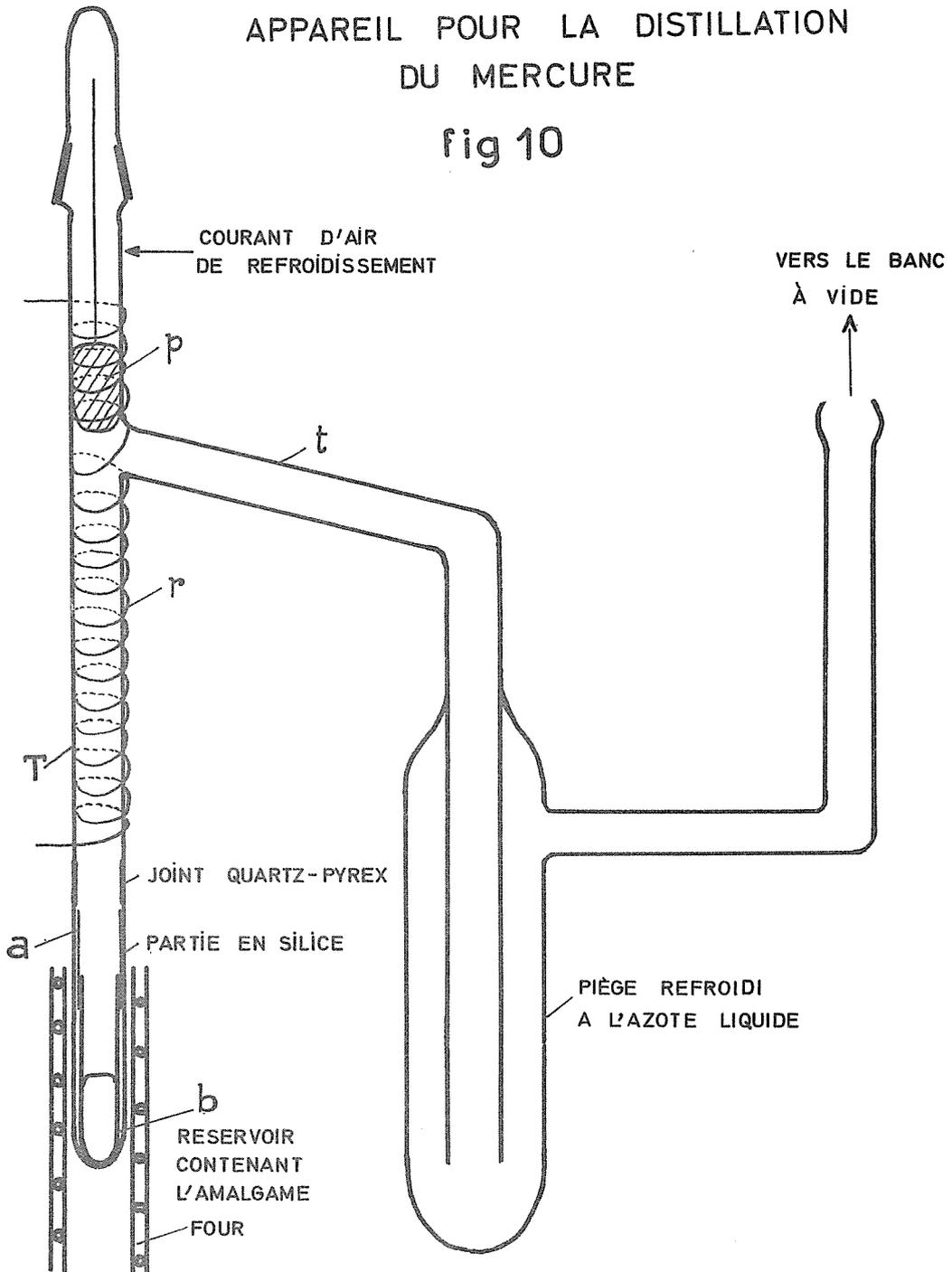


fig 9

# APPAREIL POUR LA DISTILLATION DU MERCURE

fig 10



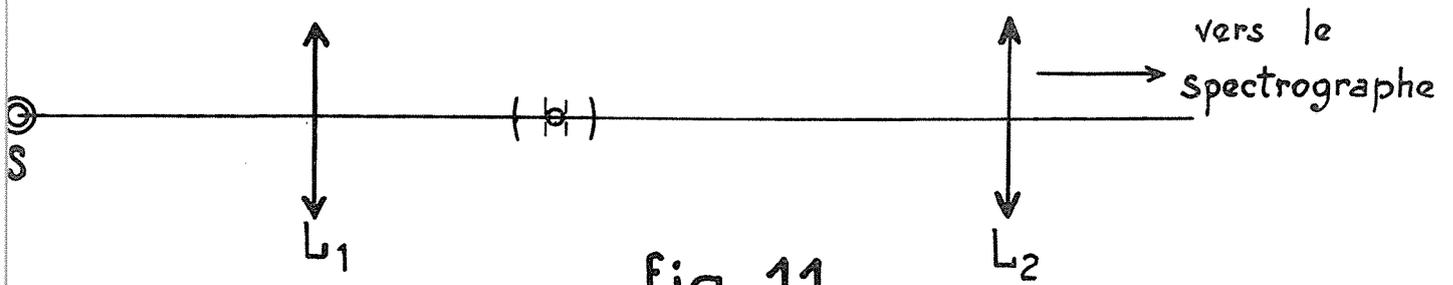


fig 11

MONTAGE OPTIQUE

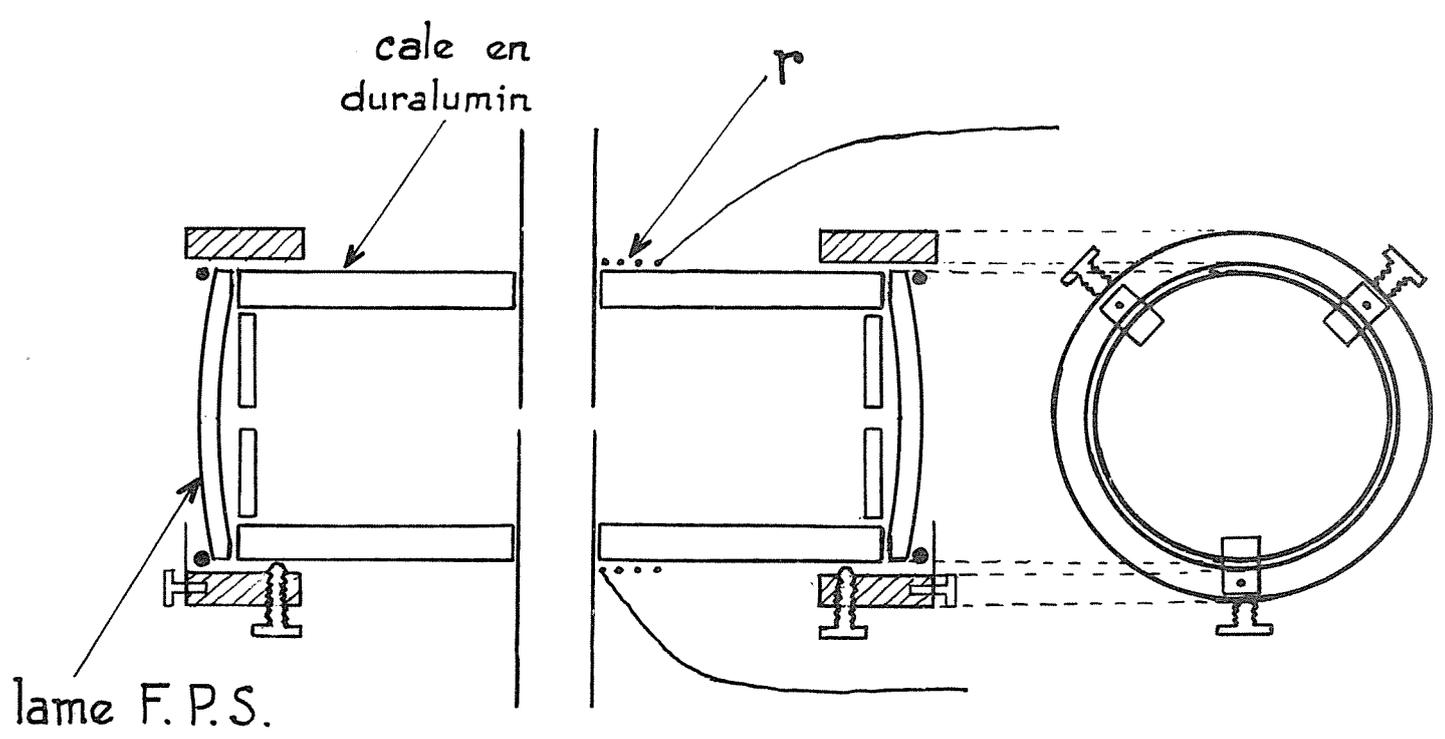
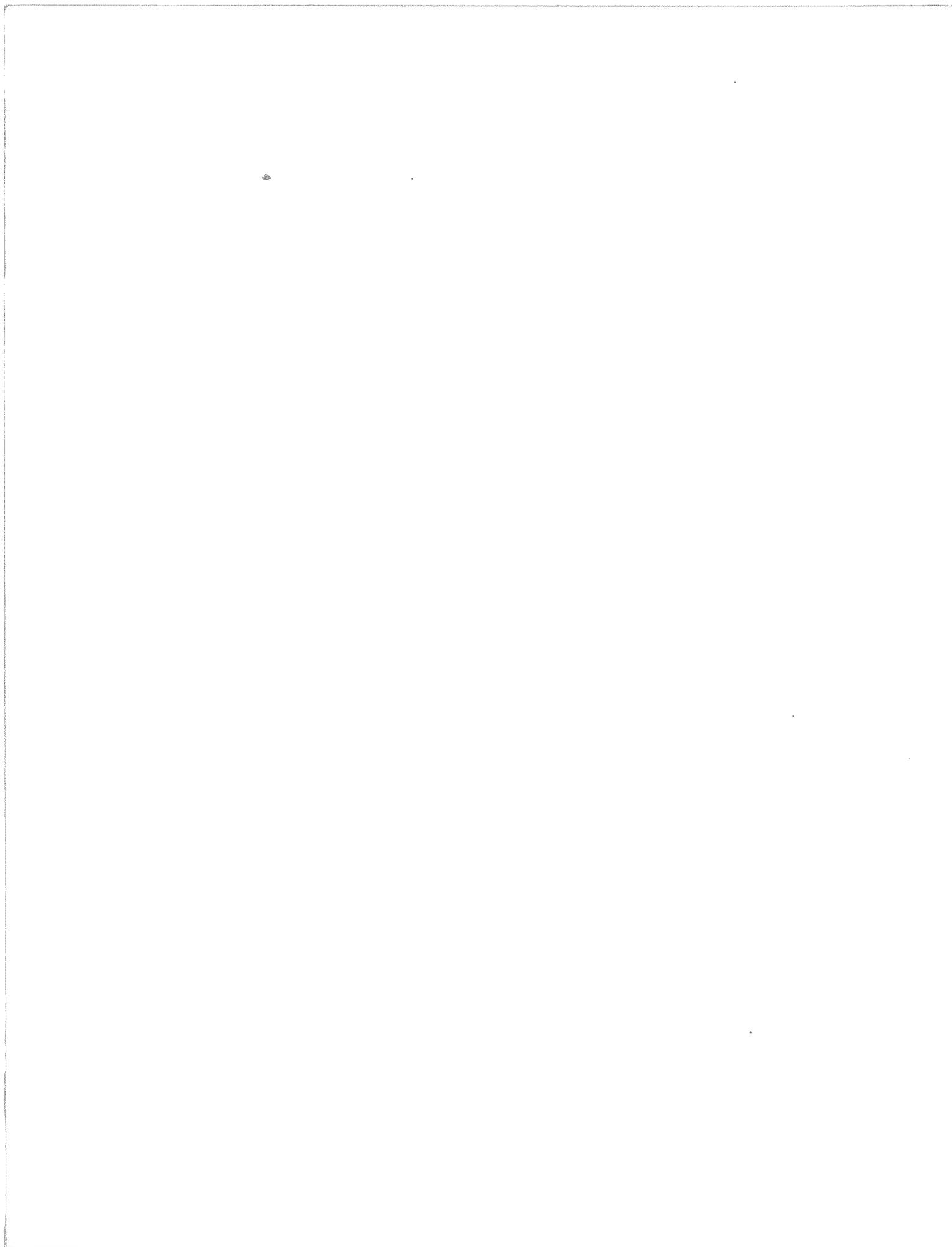


fig 12

MONTAGE DU F.P.S



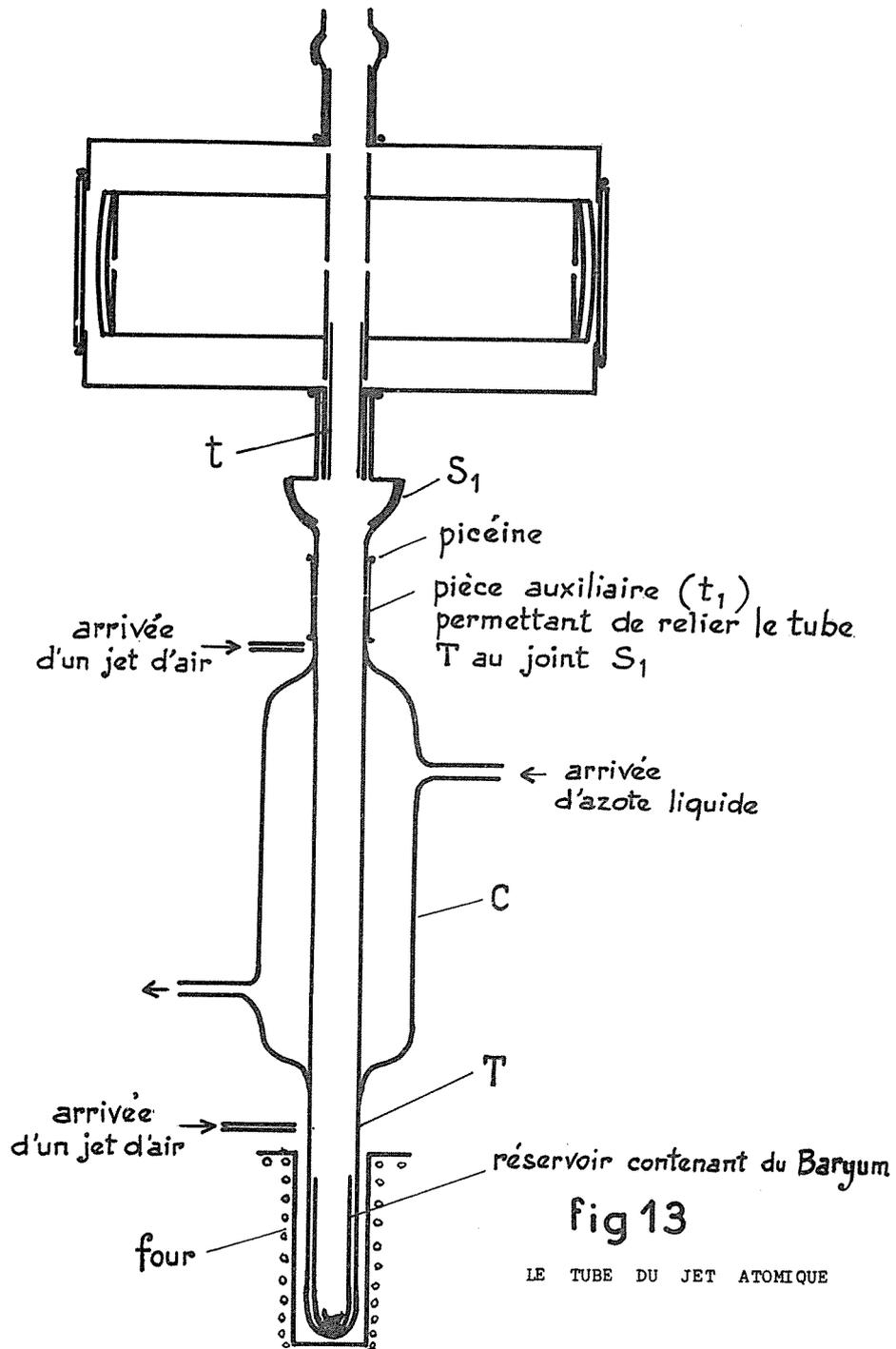
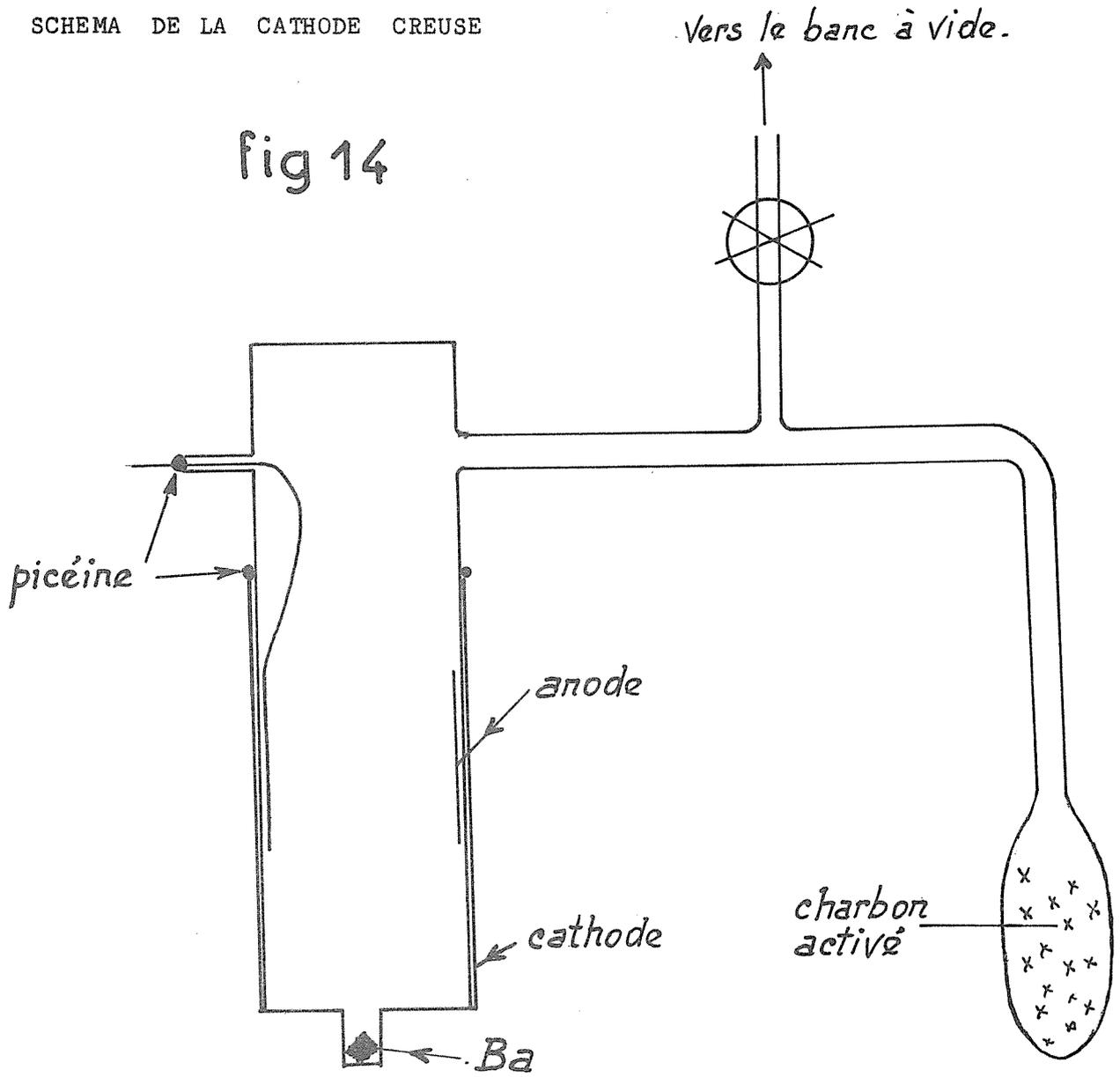


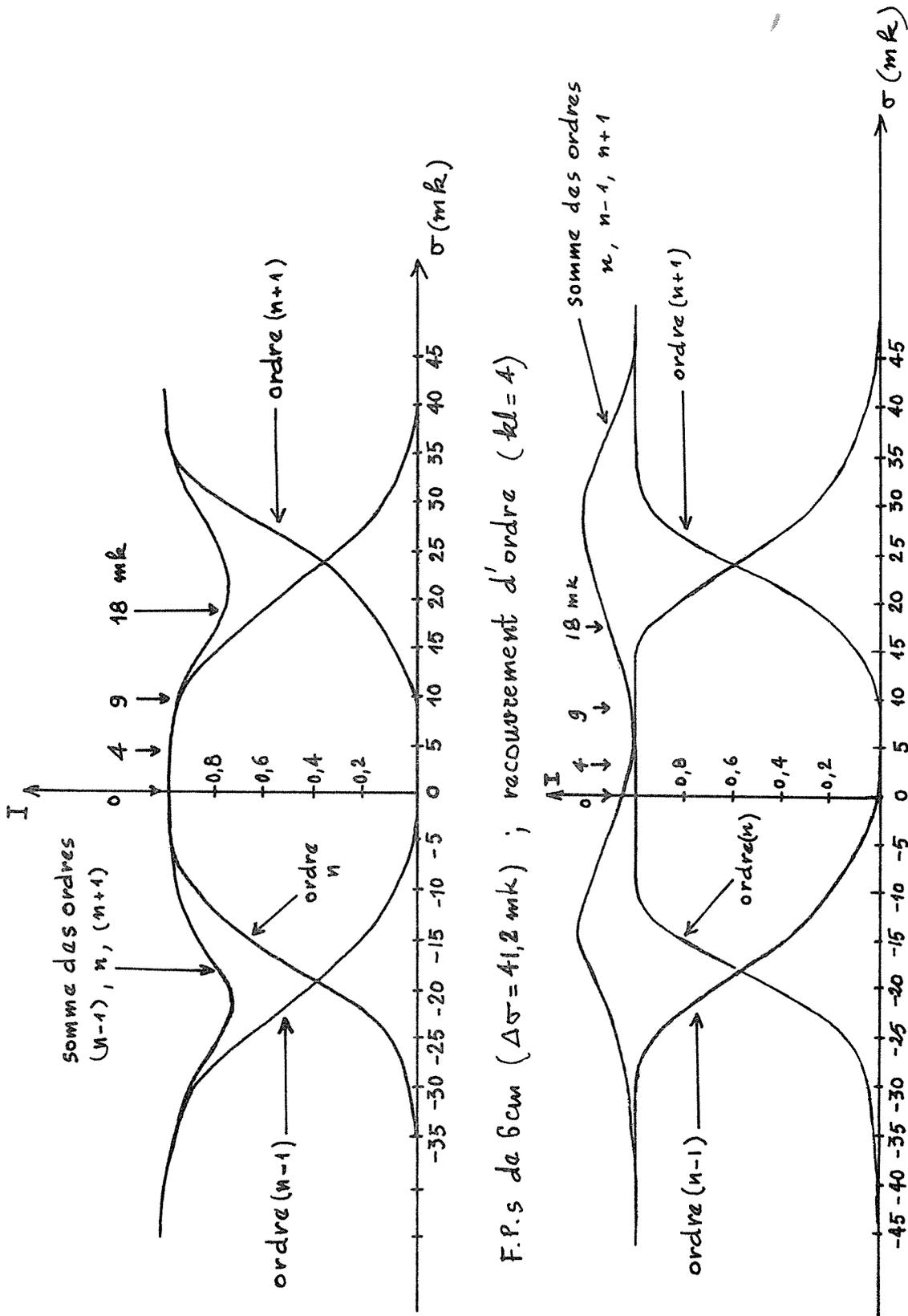
fig 13

LE TUBE DU JET ATOMIQUE

SCHEMA DE LA CATHODE CREUSE

fig 14





F. P. s de 6 cm ( $\Delta\sigma = 41,2$  mètre) ; recouvrement d'ordre (kl=8)

fig 15

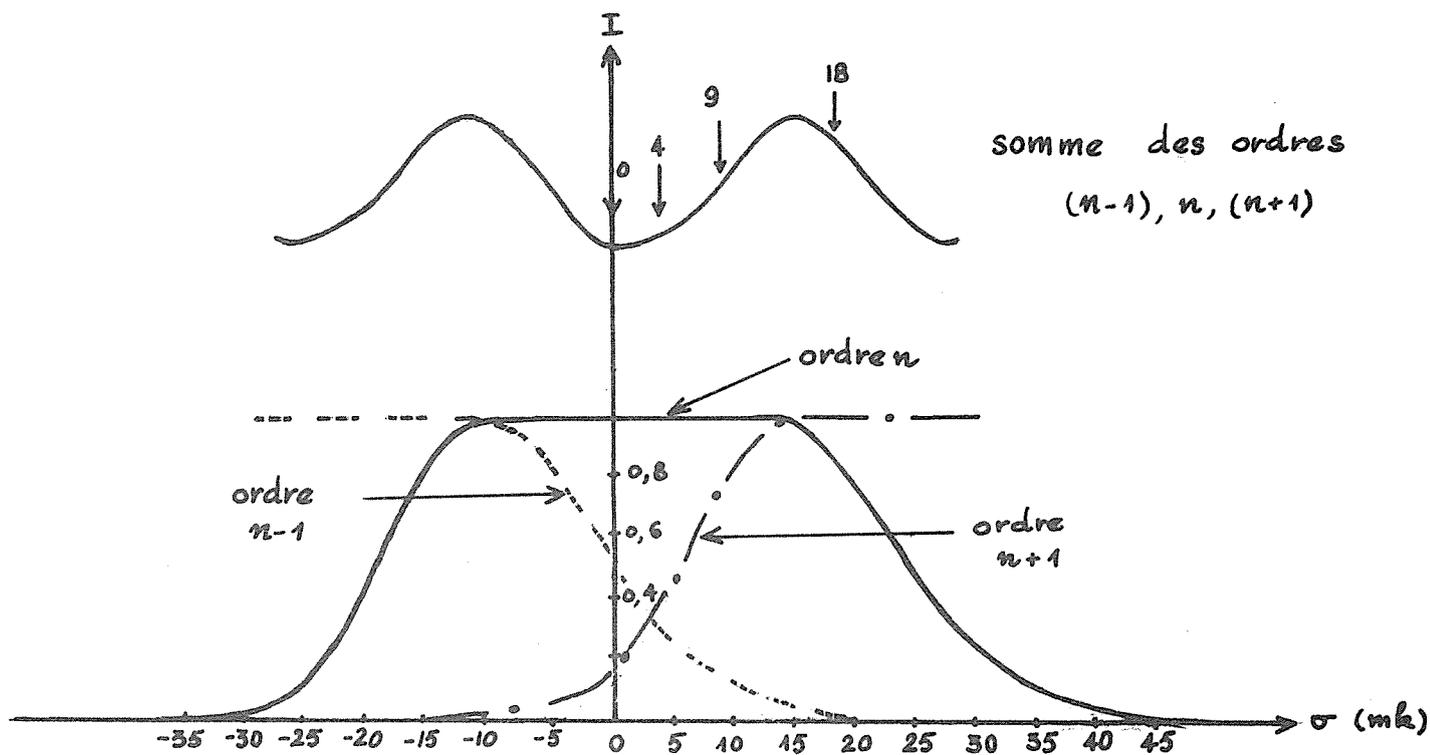


fig 16

Fabry-Perot sphérique de 10 cm ( $\Delta\sigma = 25,8 \text{ mk}$ )

Recouvrement d'ordre ( $Kl = 8$ )

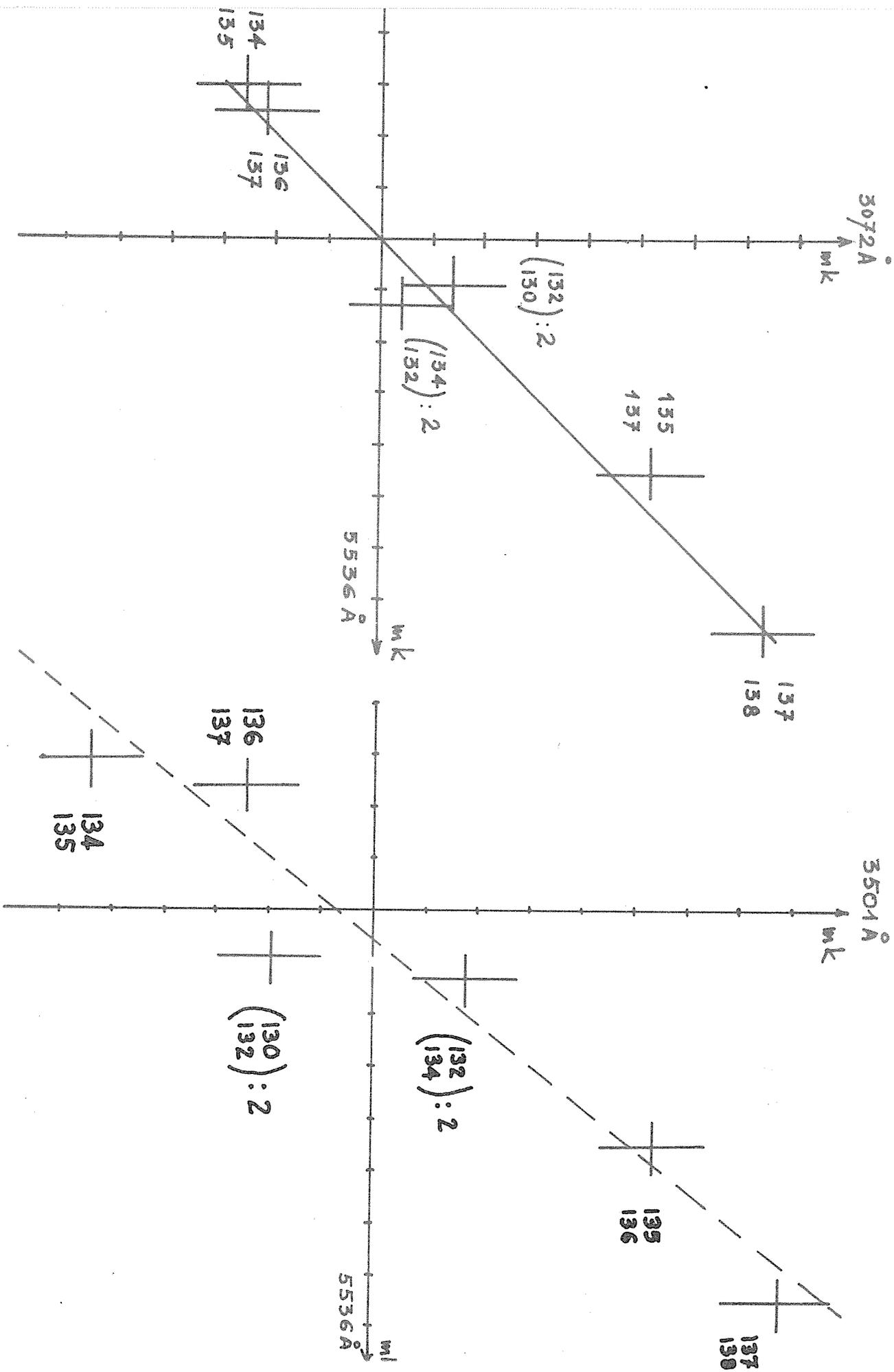


Fig 23

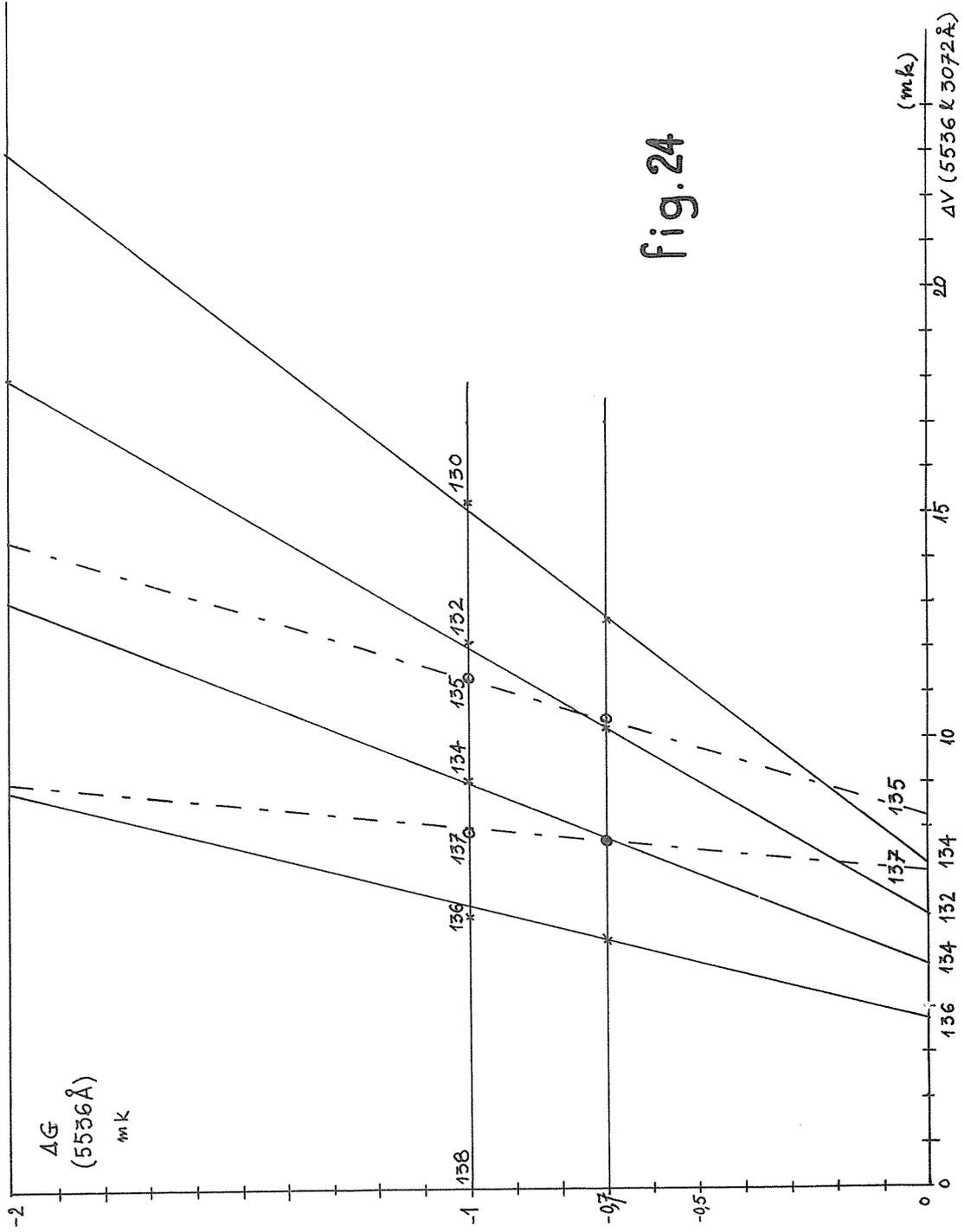


fig. 24

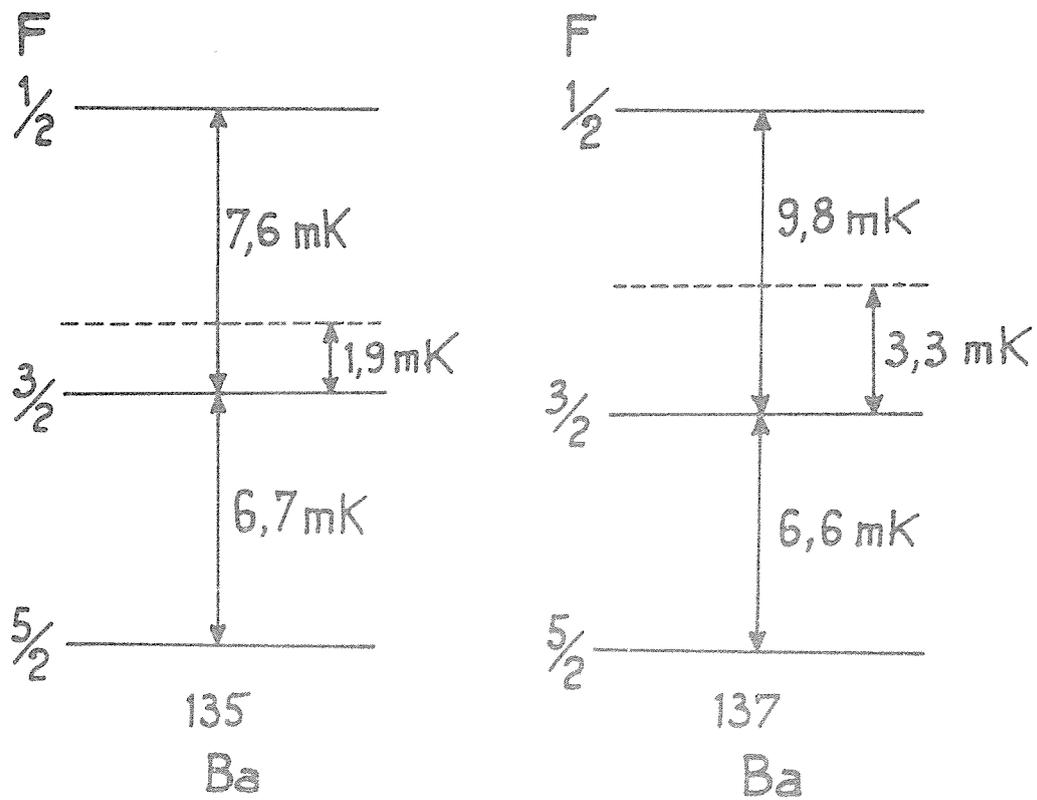


fig 25



	138	137	136	135	134	132	130	Erreur mK
138 O.R	98,04	1,45	0,26	0,15	0,05	0,02	0,02	
S	98,44	1,33	0,15	0,06	0,02			
137 O.R	53,8	44,4	2,4	0,27	0,05			0,2
S	53,5	43,7	2,4	0,28	0,05			
136 O.R	26,2	15,4	52,0	5,8	0,6			0,15
S	25,9	15,5	52,0	6,0	0,57			
135 O.R	13,2	5,6	12,4	67,3	1,5	0,03	0,02	0,2
S	13,4	5,6	12,4	67,0	1,5			
134 O.R	16,1	4,8	7,3	21,6	50,3	0,2	0,2	0,15
S	16,2	4,8	7,4	21,6	50,0			
132 O.R	14,0	6,3	5,7	6,8	4,2	42,8	0,2	0,2
S	34,5	6,3	5,7	6,8	4,2	42,3	0,3	
130 O.R	42,9	9	8,6	10,0	5,6	1,0	22,8	0,3
S	43,0	9,1	8,6	10,0	5,7	1,0	22,6	
138 H	96,23	3,43	0,25	0,09	0,01			
S	96,22	3,42	0,25	0,09	0,02			
137 H	68,1	25,8	5,2	0,9	0,03			0,3
S	67,6	26,3	5,1	0,8	0,2	0,003	0,002	
136 H	21,2	9,0	63,9	5,5	0,4			0,2
S	21,0	8,8	64,6	5,4	0,3	0,003	0,002	
134 H	10,7	3,0	5,3	16,6	64,4			0,1
S	11,0	3,0	5,3	16,9	63,7	0,34	0,04	

TABLEAU 7

ANALYSES DES MELANGES D'ISOTOPES ENRICHIS

130 U.R	33,9	5,72	4,70	4,86	2,34	0,21	<u>48,3</u>
136 O.R	4,24	1,77	<u>92,9</u>	1,08	0,1	0,05	0,05

TABLEAU 8

O.R. : OAK. RIDGE ; H : HARWELL ; S : SARCLAY



Isotopes enrichis :	"137"	"136"	"135"	"134"	"132"	"130"
OAK RIDGE						
3072 Å						
$\delta\sigma$ (m $\mu$ )	2,8	3,2	6,0	4,2	2,5	2,8
D. I (m $\mu$ )	6,5	3,3	7,8	4,1	3,0	3,8
E (m $\mu$ )	(0,7)	(0,7)	(0,7)	(0,7)	(0,7)	(0,7)
3501 Å						
$\delta\sigma$ (m $\mu$ )	3,1	3,3	6,4	3,3	2,9	-0,4
D. I (m $\mu$ )	7,0	3,7	8,5	2,0	4,1	-2,7
E (m $\mu$ )	(0,7)	(0,7)	(0,7)	(0,7)	(0,7)	(0,7)

T A B L E A U 9 a

Déplacements isotopiques des raies de Ba I :

$$3072 \text{ Å} : 6s 7p (^1P_1) - 6s^2 (^1S_0)$$

$$3501 \text{ Å} : 5d 6p (^1P_1) - 6s^2 (^1S_0)$$

Isotopes enrichis	"137"	"136"	"135"	"134"	"132"	"130"
OAK RIDGE						
$\delta\sigma$ (mk)	3,3 <sub>7</sub>	3,8 <sub>4</sub>	7,2 <sub>4</sub>	4,7 <sub>8</sub>	3,9 <sub>9</sub>	3,9 <sub>3</sub>
D.I (mk)	7,6	4,4	8,4	4,7	6,4	7,2
$\epsilon$ (mk)	(0,3)	(0,3)	(0,3)	(0,3)	(0,4)	(0,5)
HARWELL						
$\delta\sigma$ (mk)	2,0 <sub>9</sub>	3,3 <sub>2</sub>	-	4,4 <sub>9</sub>	-	-
D.I (mk)	7,8	3,9	-	4,5	-	-
$\epsilon$ (mk)	(0,5)	(0,3)	-	(0,2)	-	-

Mesures faites avec jet atomique en absorption ( ch. V)

D.I (mk)	7,0	4,1	8,1	4,6
	(0,3)	(0,3)	(0,3)	(0,3)

T A B L E A U 9a

Déplacements isotopiques de la raie Ba I 5536 Å



$$\lambda = 5536 \text{ \AA} \quad (6s^2 \text{ } ^1S_0 - 6s6p \text{ } ^1P_1) \text{ du BaI}$$

Isotopes	137	136	135	134	132	130
Arroe	5,2	2,2	7,4	4,4	-	-
Mack	4,7	3,0	6,7	5,0	-	mk
Razumovski & Chaika	5,7	4,2	7,6	4,4	-	mk
Jackson & Duong	7,7	4,2	8,4	4,6	6,3	7,2
(jet atomique)	7,0	4,1	8,1	4,6	-	mk

TABIEAU 9b

Isotope	138	137	136	135	134	132	130
JACKSON & DUONG	0	7,7	4,2	8,4	4,6	7,4	7,8 mK
RAZUMOVSKI & CHAIKA	0	5,7	4,2	7,6	4,7	-	- mK
par jet atomique	0	7,0	4,1	8,1	4,6	-	- mK

T A B L E A U 9 C

Comparaison des mesures de déplacements isotopiques de la raie du

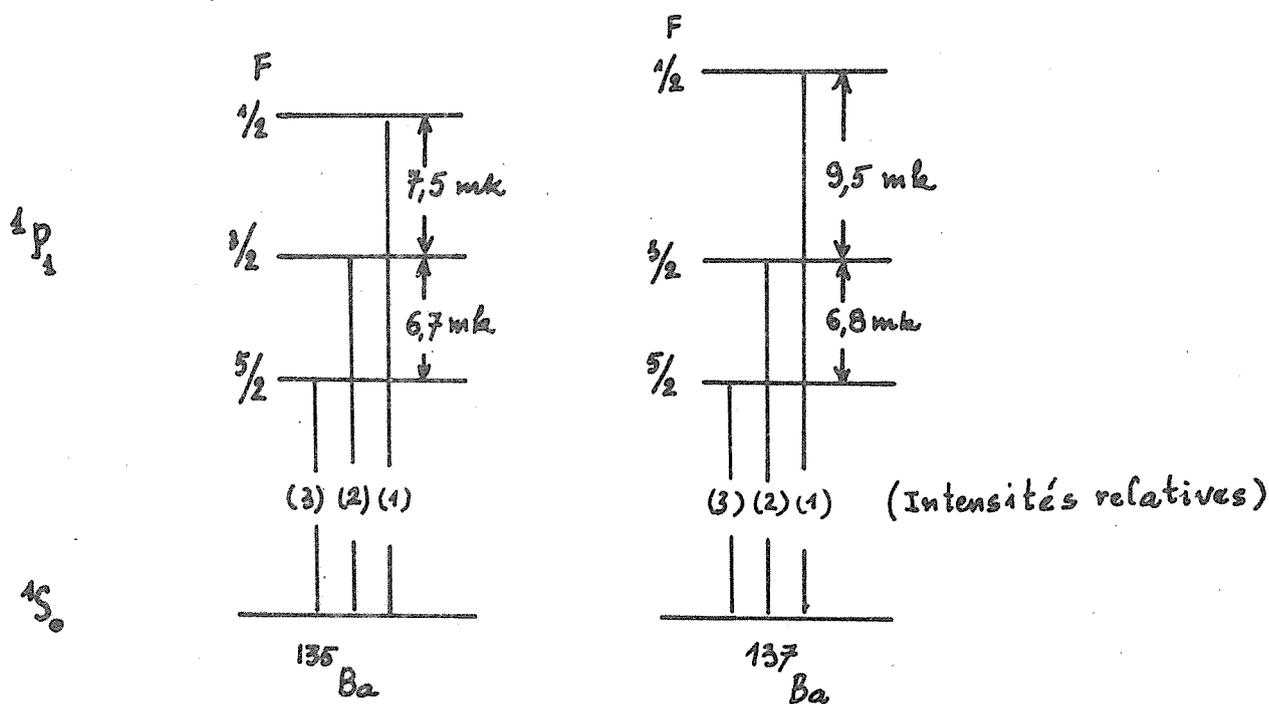
Ba I 5536 Å

$d_{\text{mm}}^2$ (mm <sup>2</sup> )	$d_{\text{mm}}^2$ (mm <sup>2</sup> )	$d_{\text{linéaire}}^2$ (mm <sup>2</sup> )	$\Delta d^2$ (mm <sup>2</sup> )	$\Delta d^2$ (mm <sup>2</sup> )	$\Delta d^2$ (mm <sup>2</sup> )	$\Delta t^\circ$
6,3327	40,1031	40,1300	- 0,0269	- 0,46	- 0,03	
6,3387	40,1791	40,1600	0,0191	0,33	0,02	
6,3413	40,2120	40,1900	0,0220	0,38	0,02	
6,3422	40,2235	40,2200	0,0035	0,06	0,004	
6,3456	40,2666	40,2500	0,0166	0,28	0,017	
6,3455	40,2654	40,2800	- 0,0146	- 0,25	0,016	
6,3490	40,3098	40,3100	- 0,0002	0,00	0,00	

T A B L E A U 11

calculée	mk	0	2,2	4,1	9,5	18,3
	intensité	(20)	(1,5)	(3,8)	(1,7)	(0,8)
observée	mk	0	2,2	3,9	9,5	18,3
	intensité	(20)	(2)	(4)	(2)	(1)

1) POSITIONS CALCULEES (RELATIVE A  $^{138}\text{Ba}$ ), DES COMPOSANTES HYPERFINES DE  $^{137}\text{Ba}$  ET  $^{135}\text{Ba}$ , A PARTIR DE LA STRUCTURE DE LA RAIE (OBSERVEE PAR JACKSON) ET DES VALEURS DES D.I., D.I.(137) = 7,2mK, D.I.(135) = 8,4mK



2) SCHEMA DES NIVEAUX HYPERFINS DE LA RAIE  $\text{BaI}$ ,  $6s6p(^1P_1) - 6s^2(^1S_0)$ ,  $\lambda = 5536 \text{ \AA}$  D'APRES (1)

$^{137}\text{Ba}$	2,2	9,0	18,5	mk
$^{135}\text{Ba}$	3,8	10,5	18,0	mk

3) STRUCTURE OBSERVEE DE LA RAIE  $\text{BaI}$  5536  $\text{\AA}$  EMISE PAR LE BARYUM NATUREL ET STRUCTURE CALCULEE DES MESURES EXPERIMENTALES DES FIGURES HYPERFINES ET DES D.I. DES ISOTOPES ENRICHIS

T A B L E A U 13

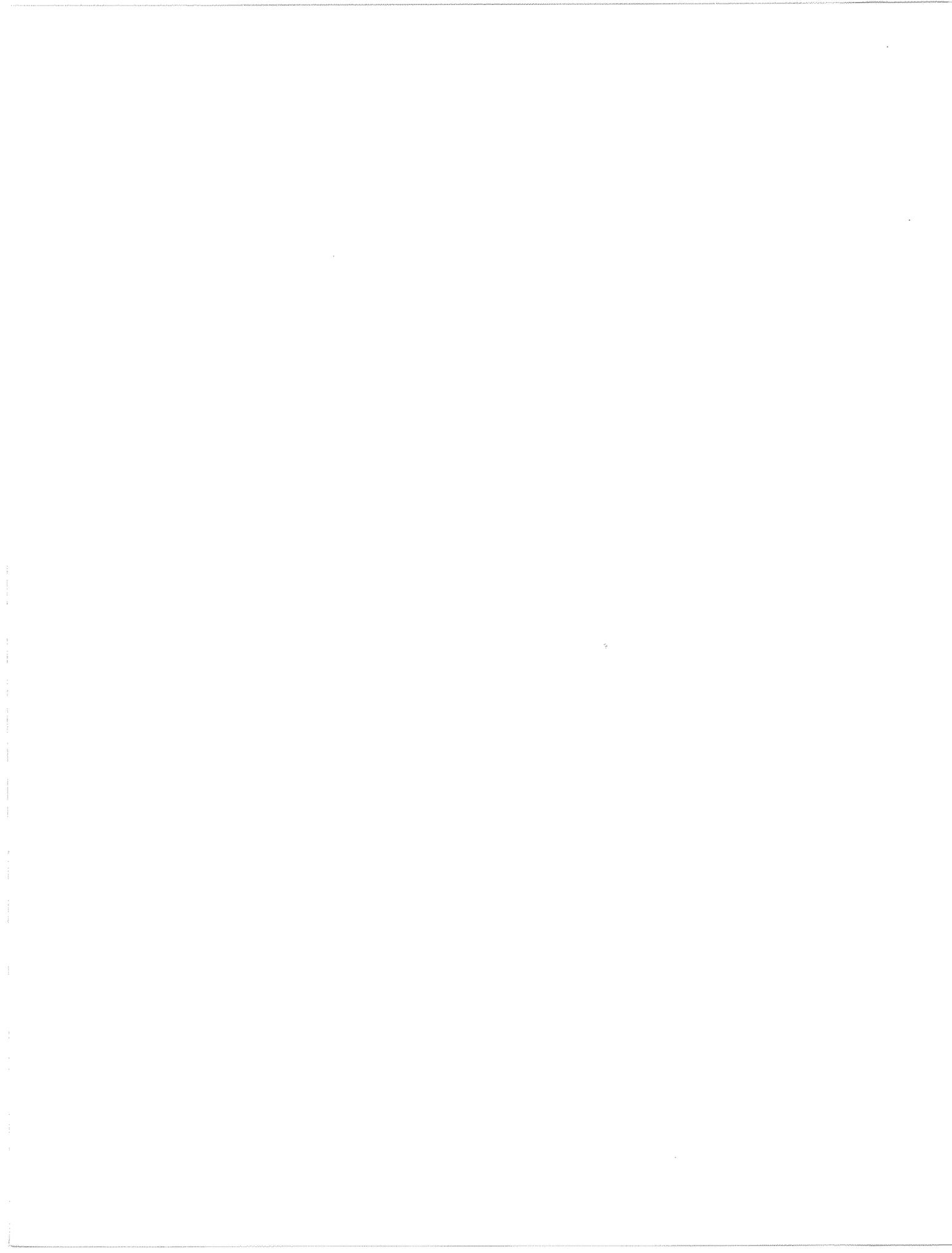
F. P. S de 6 cm

138	135	135	135
0	3,7	10,3	17,7 mK

T A B L E A U 14

F. P. S de 10 cm

138	135	135	135
0	3,6	10,0	18,3 mK



	$^{138}\text{Ba}$	$^{135}\text{Ba}$ (A)	$^{135}\text{Ba}$ (B)	$^{135}\text{Ba}$ (C)
F.P. S. de 6 cm				
Séparations (mK)	0	3,6	10,4	17,5
nombre de mesures	30	-	68	30
déviatiion moyenne (mK)	0,4	-	0,5	0,6
F.P. S. de 10 cm				
Séparations (mK)	0	3,5	10,1	18,2
nombre de mesures	22	-	22	14
déviatiion moyenne (mK)	0,3	-	0,3	0,4
Moyenne des F.P. S de 6cm et 10 cm (mK)	0	3,5	10,2	17,8

T A B L E A U 15

Résumé des mesures des positions des composantes hyperfines de la raie  
Ba 5536 Å de  $^{135}\text{Ba}$

<u>F.P. S. de 6 cm</u>				
distances	II . I		III . II	
	8,3		9,4 mK	
positions des composantes	13,8	13,7	13,7	13,7
	0	(2,1)	8,9	18,3 mK
<u>F.P. S de 10 cm</u>				
	138 (A)	137 (a)	137 (b)	137 (c)
jet de collimation 34:1	0	2,1	8,5	18,7 mK
jet de collimation 55:1	0	2,2	8,5	- mK

T A B L E A U 16

	$^{138}\text{Ba}$	$^{137}\text{Ba(a)}$	$^{137}\text{Ba(b)}$	$^{137}\text{Ba(c)}$
F.P. S de 6 cm				
Séparation (mK)	0	(2,1)	9,0	18,4
nombre de mesures	-	-	4,2	44
déviatiion moyenne(mK)	-	-	0,44	0,6
F.P. S de 10 cm (collimation 34:1)				
séparations (mK)	0	2,1	8,5	18,7
nombre de mesures	-	18	23	14
déviatiion moyenne (mK)	-	0,3	0,5	0,4
F.P. S de 10 cm (collimation 55;1)				
séparations (mK)	0	2,2	8,5	-
nombre de mesures	-	15	19	--
déviatiion moyenne (mK)	-	0,3	0,5	-
moyenne des mesures avec les F.P.S. de 6 et 10 cm				
	0	2,1	8,7	18,5

TABLEAU 17

RÉSUMÉ DES MESURES DES POSITIONS DES COMPOSANTES HYPERFINES DE LA  
RAIE Ba I 5536 Å, de  $^{137}\text{Ba}$ .

Paired isotopes	137 - 138	136 - 138	135 - 138	134 - 138	132 - 138	130 - 138
(I) $6s^2(1s_0) - 6s\ 6p(1P_1)$ , $\lambda = 5536 \text{ \AA}$						
D. I (wk)	7,0	4,1	8,1	7,6	6,3	7,2
Erreur probable	$\pm 0,3$	$\pm 0,3$	$\pm 0,3$	$\pm 0,3$	$\pm 0,5$	$\pm 0,5$
[D.I. - $\Delta\bar{B}$ ]	7,52	5,15	9,68	6,73	9,54	11,58
(II) $6s^2(1s_0) - 6s\ 7p(1P_1)$ , $\lambda = 3072 \text{ \AA}$						
D. I. (wk)	6,5	3,3	7,8	4,1	3,0	3,8
Erreur probable	$\pm 0,7$					
[D.I. - $\Delta\bar{B}$ ]	7,44	5,18	10,65	7,94	8,84	11,70
(III) $6s^2(1s_0) - 5d\ 6p(1P_1)$ , $\lambda = 3501 \text{ \AA}$						
D. I. (wk)	7,0	3,7	8,5	2,0	4,1	-2,7
Erreur probable	$\pm 0,7$					
[D.I. - $\Delta\bar{B}$ ]	7,82	5,36	11,00	5,36	9,22	4,22

TABLEAU 18

Paires d'isotopes	(137 -138)	(136 - 137)	(135 - 136)	(134 - 135)	(132 - 134) :2	(130 -132) : 2
		(I) $6s^2 ({}^1S_0)$ -	$6s 6p ({}^1P_1)$ ,	$\lambda = 5536 \text{ \AA}$		
[D.I. - $\Delta \bar{B}$ ]	+ 7,5 <sub>2</sub>	- 2,3 <sub>7</sub>	+ 4,5 <sub>3</sub>	-3,9 <sub>5</sub>	+ 1,4 <sub>0</sub>	+ 1,0 <sub>2</sub>
		(II) $6s^2 ({}^1S_0)$ -	$6s 7p ({}^1P_1)$ ,	$\lambda = 3072 \text{ \AA}$		
[D.I - $\Delta \bar{B}$ ]	+ 7,4 <sub>0</sub>	- 2,2 <sub>6</sub>	+ 5,4 <sub>7</sub>	-2,7 <sub>1</sub>	+ 0,4 <sub>5</sub>	+ 1,4 <sub>3</sub>
		(III) $6s^2 ({}^1S_0)$ -	$5d 6p ({}^1P_1)$ ,	$\lambda = 3501 \text{ \AA}$		
[D.I - $\Delta \bar{B}$ ]	+ 7,8 <sub>2</sub>	- 2,4 <sub>6</sub>	+ 5,6 <sub>4</sub>	-5,6 <sub>4</sub>	+ 1,9 <sub>3</sub>	-2,9 <sub>0</sub>

Pour la raie 5536 Å, l'erreur probable pour toutes les paires d'isotopes jusqu'à (134-135) incluses est  $\pm 0,5$  mK et pour (132-134) et (130-132) elle est  $\pm 1$  mK. Il est improbable que ces erreurs dépassent respectivement 1 et 2 mK.

Pour les raies 3501 Å et 3072 Å l'erreur probable est égale à  $\pm 1$  mK; il est improbable qu'elle dépasse 2 mK.

Parents d'isotopes	137 - 138	136 - 138	135 - 138	134 - 138	132 - 138	130 - 138
(I) $6s^2 ({}^1S_0) - 6s 6p ({}^1P_1) ; \lambda = 5536 \text{ \AA}$						
$[D. I - \Delta \bar{B}] (wk)$	7,5	5,2	9,7	6,8	9,5	11,6
$\Delta \bar{K}_I$	- 0,2	- 0,4	- 0,6	- 0,8	- 1,2	- 1,6
Effet de volume	7,7	5,6	10,3	7,6	10,7	13,10
Erreur probable	$\pm 0,5$	$\pm 0,5$	$\pm 0,5$	$\pm 0,7$	$\pm 0,7$	$\pm 0,7$
(II) $6s^2 ({}^1S_0) - 6s 7p ({}^1P_1) ; \lambda = 3072 \text{ \AA}$						
$[D. I - \Delta \bar{B}] (wk)$	7,4	5,2	10,7	7,9	8,8	11,2
$\Delta \bar{K}_I$	- 0,2	- 0,4	- 0,6	- 0,8	- 1,2	- 1,6
Effet de volume	7,6	5,6	11,3	8,7	10,0	12,9
Erreur probable	$\pm 0,9$					

TABLEAU 20

païres d'isotopes	137-138	136-138	135-138	134-138	132-138	130-138
$\delta V (5536 \text{ \AA } 3072)$	7,7	5,6	10,6	7,9	10,6	13,3
$(\Delta\bar{B} + \Delta\bar{K}), 5536\text{\AA}$	-0,7	-1,5	-2,2	-3,0	-4,6	-6,3
$E(D.I, 5536)$	(0)	(0)	(0,3)	(0,3)	(-0,3)	(-0,2)
$(\Delta\bar{B} + \Delta\bar{K}), 3072\text{\AA}$	-1,1	-2,2	-3,4	-4,5	-6,9	-9,3
$E(D.I, 3072)$	(0,1)	(0,1)	(-0,6)	(0,7)	(0,7)	(0,2)
$ \delta V_{6s} $	13	9,5	17,5	13	17,5	22

TABLEAU 21 a

	$6s ({}^2S_{1/2}) - 6p ({}^2P_{1/2}), \lambda = 4934 \text{ \AA}$					
païres d'isotopes	137-138	136-138	135-138	134-138	132-138	130-138
D. I	9,5	7,8	13,4	8,5		
erreur probable	$\pm 1,0$		$\pm 1,3$			
$[D.I - \Delta\bar{B}]$	10,1	9,0	15,2	10,9		
	$6s ({}^1S_{1/2}) - 6p ({}^2P_{3/2}), \lambda = 4554 \text{ \AA}$					
D. I	8,4	7,8	12,6	8,5		
erreur probable	$\pm 1,1$		$\pm 1,3$			
$[D.I - \Delta\bar{B}]$	9,0	9,1	14,6	11,1		

TABLEAU 21 b

Couples d'Isotopes	136 - 138	134 - 136	132 - 134	130 - 132	135 - 137
$\Delta\delta E (M_1, M_2)$	-9,3	-3,3	-5,1	-4,0	-4,3
$C_{\text{expérimental}}$	-39	-14	-22	-17	-18
$C_H$	-76	-76	-76	-76 (100)	-76
$C_K \text{ expérimental}$	+ 37	+ 62	+ 54	+ 59	+ 58
$C_K$ (Calculé page 33)				+ 7	+ 18

C.T.U.

58

63 MK

119

93

TAB LEAU 22

102

240

0,23

0,22

0,18

0,18

Paires d'isotopes	138 - 138	137 - 138	136 - 138	135 - 138	134 - 138	132 - 138	130 - 138
Effet de masse total nul	0	7,0	4,1	8,1	4,6	6,3	7,2
Effet de masse total = effet de Bohr	0	7,5	5,2	9,7	6,8	9,5	11,5
Effet de masse total = 0,7	0	7,7	5,6	10,3	7,6	10,7	13,1
Effet de masse total = 1,0	0	8,0	6,1	11,1	8,6	12,3	15,2
Effet de masse total = 2,0	0	9,0	8,1	14,1	12,6	18,3	23,2

T A B L E A U 23

Effets de volume dans les raies 5536 et 3072 Å en fonction des effets de masse spécifique croissants.



**DEUXIÈME THÈSE**

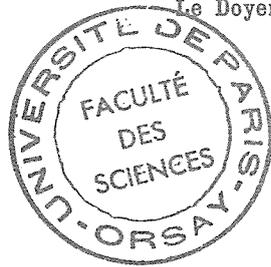
**Propositions données par la Faculté**

Les modèles nucléaires.

Vu et approuvé :

Orsay, le 25 Octobre 19 65

Le Doyen de la Faculté des Sciences,



*J. Bergerard*  
J. BERGERARD

Vu

et Permis d'imprimer :

Le Recteur de l'Académie  
de Paris,

*J. Roche*  
J. ROCHE



Imprimé aux Laboratoires de Bellevue  
1, Place Aristide-Briand, à Bellevue (Seine-et-Oise)

