

N° d'ordre :

THÈSES

présentées à la
Faculté des Sciences d'Orsay
Université de Paris

pour obtenir

Le Grade de Docteur ès Sciences Physiques

par

Jean-Marie HELBERT
Laboratoire : AIME COTTON C.N.R.S.

1 ère THESE : Contribution à l'étude du déplacement isotopique
relatif dans les spectres des terres rares.
Importance de l'effet spécifique de masse et de
la déformation nucléaire.

2 ème THESE : Propositions données par la Faculté.

Soutenues le 1969 devant la Commission d'Examen

M. P. JACQUINOT.....Président
MM. A. KASTLER..... } Examineurs
R. LENNUIER..... }
S. GERSTENKORN.....Invité

ORSAY 1969

1

2

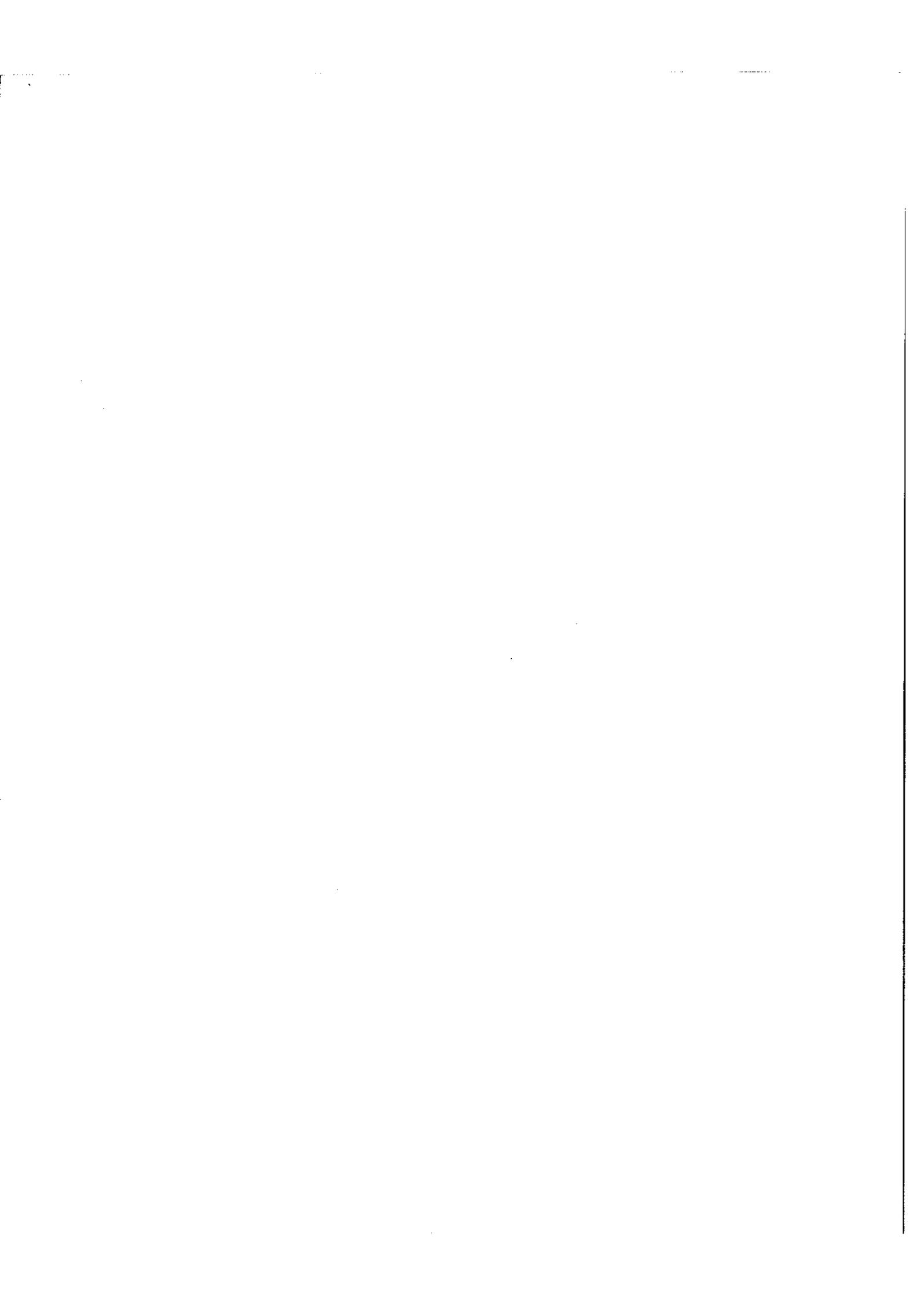
3

4

A Messieurs les Professeurs JACQUINOT et CHABBAL, je tiens tout d'abord à exprimer ma profonde gratitude pour l'aide qu'ils m'ont apportée tout au long de mes études et leur accueil au Laboratoire AIME COTTON, ensuite.

Monsieur le Professeur CHABBAL et Monsieur le Docteur Simon GERSTENKORN m'ont dirigé dans ce travail et je les remercie vivement pour les conseils et appuis qu'ils m'ont donnés.

Mes remerciements s'adressent aussi à C. BAUCHE ARNOULT et à P. LUC pour l'aide qu'ils m'ont apportée dans la mise au point des techniques digitales, à Mademoiselle D. MERLE et Monsieur FATTAZ pour leur participation de tous les jours, à tous mes camarades chercheurs et au personnel du Laboratoire. Enfin les calculs ont été effectués au Centre de la Faculté d'ORSAY et je tiens à remercier l'ensemble de son personnel.

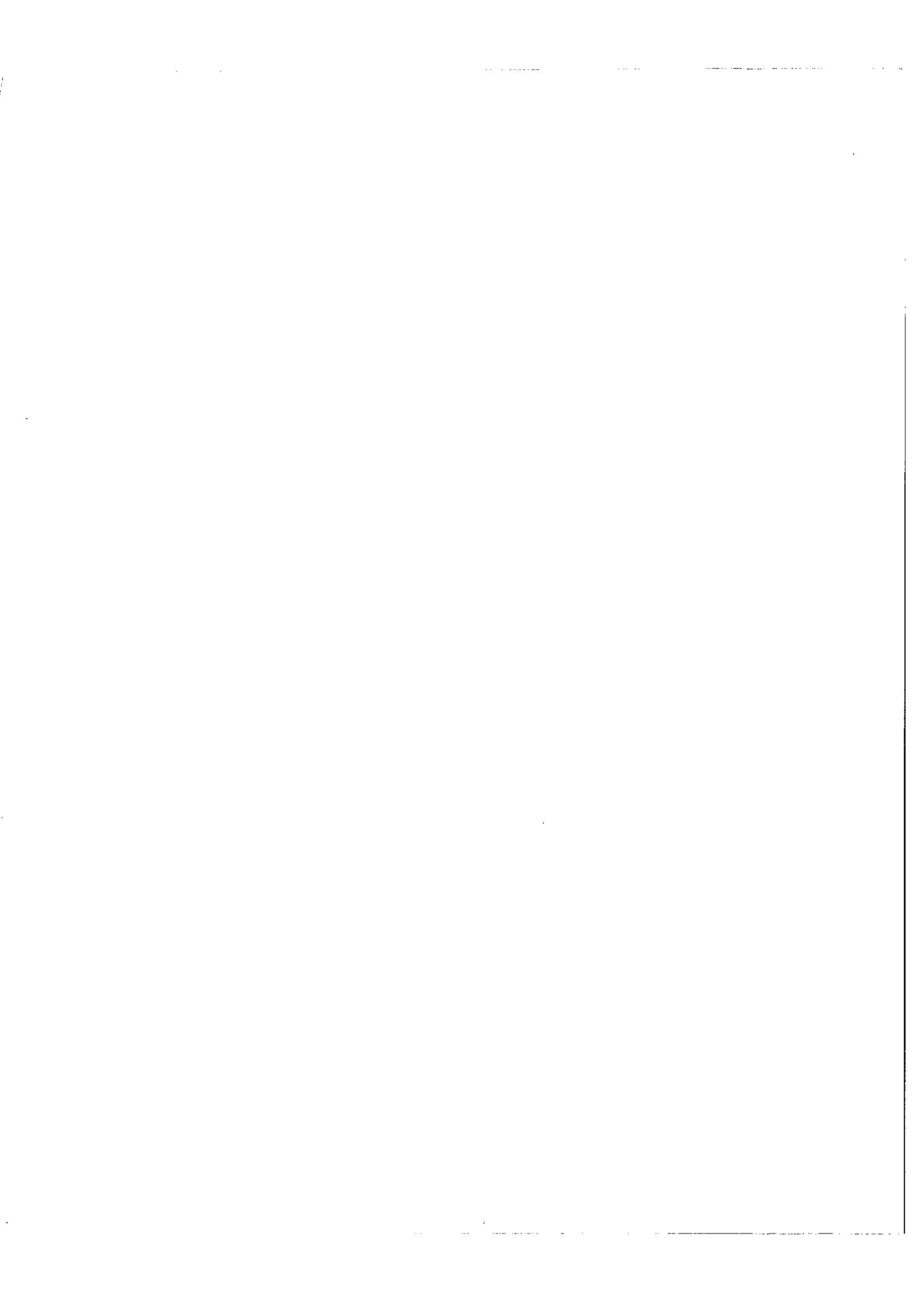


- I N T R O D U C T I O N -

L'étude systématique du déplacement isotopique a servi essentiellement jusque ces dernières années de moyen de contrôle pour la classification des spectres. Simultanément cependant, les constantes expérimentales de déplacement isotopique définies par BRIX et KOPFERMANN étaient évaluées avec une précision voisine de 20 % permettant ainsi l'élaboration des premiers calculs théoriques. L'utilisation des isotopes enrichis et des appareils à haute résolution a permis ces dernières années d'améliorer la précision des mesures et de mettre ainsi en évidence la variation du déplacement isotopique relatif considéré comme constant jusque là.

Le présent travail est une contribution à l'amélioration des techniques expérimentales, amélioration qui nous a permis de déterminer les déplacements isotopiques relatifs de quelques éléments des terres rares.

Après avoir rappelé au cours du premier chapitre les éléments théoriques indispensables, nous décrirons au second chapitre les techniques expérimentales avant de consacrer le troisième à l'exposé de nos résultats et à leur interprétation.



CHAPITRE I

CALCUL THEORIQUE DU DEPLACEMENT ISOTOPIQUE -

I -

INTRODUCTION

L'étude théorique d'un atome exige pour que l'analyse puisse être faite l'utilisation d'hypothèses simplificatrices. En particulier, on suppose toujours au début de l'étude :

- que le noyau est ponctuel, de charge Ze , de masse infinie,
- que les vitesses des électrons sont faibles devant la vitesse de la lumière.

Cependant, au fur et à mesure que la précision des mesures augmente, il est nécessaire d'abandonner successivement ces différentes hypothèses pour faire coïncider les résultats expérimentaux et calculés.

La structure hyperfine et le déplacement isotopique ne peuvent s'expliquer qu'en levant celles relatives au noyau. C'est pourquoi avant de donner la définition du déplacement isotopique, nous allons rappeler brièvement les différentes étapes dans le calcul d'un atome qui précèdent l'étude de la structure hyperfine et du déplacement isotopique.

II - HYPOTHESE DU CHAMP CENTRAL : CONFIGURATION ; INTERACTION COULOMBIENNE : TERMES ; INTERACTION SPIN ORBITE : NIVEAUX.

La première des hypothèses simplificatrices est celle du champ central.

L'hamiltonien de départ s'écrit :

$$\mathcal{H}_0 = \sum_{i=1}^N \left(\frac{p_i^2}{2m} - \frac{Ze^2}{r_i} \right) + \sum_{i>j}^N \frac{e^2}{r_{ij}}$$

c'est à dire que l'on suppose le noyau infiniment lourd, de charge Ze de volume nul. Mais même dans ces conditions il n'est pas possible de séparer les variables de l'équation de Schrödinger, le terme $\sum_{i>j}^N e^2/r_{ij}$ n'ayant pas la symétrie sphérique et n'étant pas faible devant l'autre terme. C'est pourquoi dans l'approximation du champ central on prend comme hamiltonien principal :

$$\mathcal{H}_\infty^0 = \sum_{i=1}^N \left(\frac{P_i^2}{2m} + U(r_i) \right)$$

- $U(r_i)$ est la partie principale à symétrie sphérique du potentiel électrique dans lequel se meut l'électron i et $\mathcal{H}_\infty - \mathcal{H}_\infty^0$ est suffisamment petit pour être traité comme hamiltonien perturbateur. Dans ces conditions le traitement de \mathcal{H}_∞^0 est immédiat, la séparation des variables dans l'équation de Schrödinger étant réalisable, et chaque état est caractérisé par une énergie E_n^0 somme des énergies de chaque électron,

$$E_n^0 = \sum_{i=1}^Z E_i(n)$$

la fonction d'onde étant une combinaison linéaire des produits de fonction d'onde monoélectronique. L'introduction du spin de l'électron ne change pas l'énergie des états, les fonctions d'onde étant seulement des déterminants ayant pour fonction de base des produits construits à partir de fonction d'onde monoélectronique et de spin. C'est l'ensemble de ces états dont les valeurs propres de l'énergie ne dépendent que des nombres quantiques n, l que l'on appelle configuration, ces états étant hautement dégénérés.

L'introduction de l'hamiltonien perturbateur $\mathcal{H}_\infty - \mathcal{H}_\infty^0$

$$\mathcal{H}_\infty - \mathcal{H}_\infty^0 = \sum_{i=1}^N \left(-\frac{Ze^2}{r_i} - U(r_i) \right) + \sum_{i>j}^N \frac{e^2}{r_{ij}}$$

permet de lever partiellement la dégénérescence. La première partie de $\mathcal{H}_\infty - \mathcal{H}_\infty^0$ a une symétrie sphérique et possède les mêmes valeurs moyennes pour tous les états d'une configuration. La seconde partie, $\sum_{i>j}^N \frac{e^2}{r_{ij}}$ appelée interaction coulombienne sépare au contraire la configuration en termes Russell-Saunders d'énergie différente caractérisés par des fonctions d'onde, combinaison linéaire des états déterminantaux.

Enfin, on introduit comme second hamiltonien perturbateur l'hamiltonien d'interaction spin-orbite $\lambda = \sum_i \xi(r_i) \vec{\sigma}_i \cdot \vec{l}_i$

qui décompose les termes en niveaux.

Ce rappel du traitement de l'atome nous a permis de redonner les définitions classiques des expressions : configurations, termes, niveaux.

Nous insisterons simplement sur la remarque suivante : si l'hamiltonien perturbateur est radial, c'est à dire n'a pas de dépendance angulaire ou de spin, les énergies de tous les niveaux d'une même configuration sont modifiées d'une même quantité.

III - STRUCTURE HYPERFINE ET DEPLACEMENT ISOTOPIQUE. DEPLACEMENT ISOTOPIQUE ABSOLU, DEPLACEMENT ISOTOPIQUE RELATIF.

Nous étudions maintenant la décomposition des niveaux en multiplets hyperfins et la variation énergétique des niveaux lorsque l'on passe d'un isotope à l'autre. C'est l'attribution au noyau d'un spin, d'un moment quadrupolaire électrique qui permet d'expliquer la structure hyperfine des niveaux, c'est la considération de la masse et du volume finis du noyau qui explique le déplacement isotopique. La structure hyperfine est un phénomène gênant dans l'étude du déplacement isotopique mais nous admettons que les résultats que nous allons obtenir pour les isotopes pairs-pairs qui ne possèdent pas la structure hyperfine restent valables pour les centres de gravité des multiplets hyperfins (1°).

Lorsque l'on considère un noyau de masse M, sphérique de rayon R_0 , l'énergie cinétique totale s'écrit, en négligeant l'énergie de translation :

$$\sum_i \frac{P_i^2}{2\mu} + \frac{1}{M} \sum_{i>j} \vec{P}_i \cdot \vec{P}_j$$

μ étant la masse réduite de l'électron : $\mu = \frac{Mm}{M+m}$

l'énergie potentielle d'interaction coulombienne électrons protons devient

$V(r_i)$ avec :

$$V(r_i) \neq \frac{-Ze^2}{r_i} \quad \text{pour } r < R_0$$

$$V(r_i) = \frac{-Ze^2}{r_i} \quad \text{pour } r > R_0$$

L'hamiltonien complet s'écrit alors :

$$\mathcal{H} = \sum_i \left(\frac{P_i^2}{2m} - \frac{Ze^2}{r_i} \right) + \sum_{i>j}^N \frac{e^2}{r_{ij}} + \sum_l \xi(r_l) \vec{\sigma}_l \cdot \vec{l}_l$$

$$+ \sum_i \left(\frac{P_i^2}{2\mu} - \frac{P_i^2}{2m} \right) + \frac{1}{M} \sum_{i>j} \vec{P}_i \cdot \vec{P}_j + \sum_i \left(V_i + \frac{Ze^2}{r_i} \right)$$

Si T_{∞} représente la valeur propre de l'énergie du niveau pour l'hamiltonien

$$\mathcal{H}^0 = \sum_i \left(\frac{P_i^2}{2m} - \frac{Ze^2}{r_{ij}} \right) + \sum_{i>j}^N \frac{e^2}{r_{ij}} + \sum_i \xi(r_i) \vec{\sigma}_i \cdot \vec{l}_i$$

et T_r l'énergie du niveau pour \mathcal{H} on appelle déplacement isotopique absolu du niveau, la quantité :

$$\Delta T = T_r - T_{\infty}$$

ΔT est la somme de deux termes correctifs :

- le premier ΔT_M est dû à deux hamiltoniens

$$\sum_i \left(\frac{P_i^2}{2\mu} - \frac{P_i^2}{2m} \right) \text{ et } \frac{1}{M} \sum_{i>j} \vec{P}_i \cdot \vec{P}_j$$

et est appelé effet isotopique de masse

- le second dû à l'hamiltonien perturbateur $\sum_i \left(-\frac{Ze^2}{r_i} + V(r_i) \right)$

sera noté ΔT_V et est appelé effet isotopique de volume.

Avant d'aborder successivement l'étude du calcul théorique de ces deux effets nous définirons le déplacement isotopique relatif. On appelle déplacement isotopique relatif d'un niveau la variation de ΔT lorsque l'on passe d'un noyau de masse A à un noyau de masse $A + dA$.

$$\delta(\Delta T) = \left(\frac{\partial \Delta T}{\partial N} \right) \delta N \quad \text{puisque } A = (Z+N)$$

IV EFFET ISOTOPIQUE DE MASSE.

Il est la résultante de deux hamiltoniens perturbateurs :

$$\sum_i \left(\frac{P_i^2}{2\mu} - \frac{P_i^2}{2m} \right) \text{ et } \frac{1}{M} \sum_{i>j} \vec{P}_i \cdot \vec{P}_j$$

il peut donc se décomposer en deux parties :

- la première qui est seule à se manifester dans le cas de l'hydrogène est appelée effet de masse normal ou effet de Bohr et nous noterons sa valeur :

$$\Delta T_{MB}$$

- la seconde est appelée effet de masse spécifique et nous l'écrivons :

$$\Delta T_{MS/M}$$

IV - 1 Effet de masse normal ou effet de Bohr .

Puisque $\mu = \frac{Mm}{M+m}$ nous pouvons encore écrire l'hamiltonien perturbateur sous la forme :

$$\mathcal{H}_p = \sum_i \frac{1}{2M} (P_i)^2$$

le calcul montre alors (2) qu'au premier ordre on obtient :

$$\Delta T_{MB} = \frac{-m}{M} T_{\infty}$$

il est donc facile de calculer cet effet.

IV - 2 Effet de masse spécifique .

L'hamiltonien perturbateur s'écrit :

$$\frac{1}{M} \sum_{i>j} \sum \vec{P}_i \vec{P}_j$$

si nous désignons par ψ^0 la fonction d'onde caractéristique du niveau dans

l'approximation \mathcal{H}^0 nous avons :

$$\frac{1}{M} \Delta T_{MS} = \int_V \psi^{0*} \frac{1}{M} \sum_{i>j} \sum \vec{P}_i \vec{P}_j \psi^0 d\tau$$

la théorie du déplacement isotopique spécifique a été développée par Hughes et Eckart (3), Bartlett et Gibbons (4) puis par Vinti (2).

La difficulté essentielle est due à la nécessité de calculer les fonctions radiales. Grâce à l'existence des ordinateurs, il est possible maintenant d'utiliser des programmes de Hartree Foch, très efficaces qui permettent d'obtenir les fonctions radiales avec une bonne précision. C'est pourquoi les calculs d'effets spécifiques de masse ont été repris ces dernières années et un accord satisfaisant entre calculs et résultats expérimentaux a pu être obtenu dans certains cas. Nous résumerons ici les principaux résultats et les prévisions que l'on peut estimer raisonnables en ce qui concerne cet effet de la manière suivante (5) :

- au sein d'une même configuration les effets spécifiques de masse varient d'un terme à l'autre, mais cette variation est faible.
- la variation de l'effet spécifique est importante entre les configurations du type d^n et d^{n-1} , f^n et f^{n-1} , par contre elle est faible entre les configu-

rations du type d^n_s , d^n_p ou f^n_s f^n_p .

- il n'est pas possible de négliger l'influence des couches internes. Il est nécessaire de calculer l'effet spécifique de masse total pour le niveau intéressé. Ceci signifie que l'approximation du champ central est insuffisante pour calculer les fonctions d'onde radiales et il faut effectuer un calcul exact pour chaque niveau.
- enfin il est probable que la relativité est importante et c'est pourquoi dans le cas des terres rares, il devrait en être tenu compte.

IV 3. Le déplacement isotopique relatif de masse.

- le déplacement isotopique absolu de masse d'un niveau s'écrit :

$$\Delta T_M = \frac{-m}{M} T_\infty + \frac{1}{M} \Delta T_{MS}$$

- le déplacement isotopique relatif de masse s'écrit :

$$\delta(\Delta T_M) = \left[-m T_\infty + \Delta T_{MS} \right] \frac{1}{M^2} \delta M$$

au premier ordre ou d'une manière exacte

$$\delta(\Delta T_M) = \left(\frac{1}{M_2} - \frac{1}{M_1} \right) (-m T_\infty + \Delta T_{MS})$$

V - L'EFFET ISOTOPIQUE DE VOLUME.

Nous étudions maintenant le calcul théorique du déplacement isotopique de volume absolu pour un niveau. L'hamiltonien responsable de cet effet s'écrit :

$$H_{ov} = \sum_i \left(\frac{Z e^2}{r_i} + V(r_i) \right)$$

$V(r_i)$ est l'énergie potentielle de l'électron i dans l'hamiltonien. $V(r_i)$ n'est différent de $-Ze^2/r_i$ que si $r_i < R_0$, R_0 rayon nucléaire. La connaissance du potentiel nucléaire électrostatique $-V(r_i)/e$ est donc nécessaire pour le calcul du déplacement isotopique de volume et par là-même, la mesure de déplacement isotopique peut-être un moyen de tester certaines propriétés nucléaires.

V - 1 Le déplacement isotopique de volume est le même pour tous les niveaux d'une configuration.

D'après la remarque faite au paragraphe II, puisque $V(r_i)$ n'a pas de dépendance angulaire ou de spin, le déplacement isotopique de volume est le même pour tous les niveaux d'une configuration.

Cependant ce résultat n'est vrai que si la configuration étudiée est bien isolée, mais dans le cas du mélange de configurations, nous pouvons prévoir que le

déplacement isotopique du niveau sera de la forme :

$$\Delta T_v = a^2 \Delta T_v(1) + b^2 \Delta T_v(2)$$

si la fonction d'onde de ce niveau est de la forme :

$$\Psi = a \Psi(1) + b \Psi(2)$$

$\Psi(1)$ étant caractéristique de la configuration (1) et $\Psi(2)$ de la configuration (2).

En utilisant une méthode paramétrique, J. Bauche a pu montrer que cette loi du mélange était vérifiée de manière satisfaisante dans le cas du Samarium et de l'Osmium (6).

Notre étude du déplacement isotopique absolu est donc simplifiée puisqu'il suffit de montrer comment on peut calculer le déplacement isotopique absolu de volume d'un électron (n l) pour pouvoir obtenir le déplacement isotopique absolu de volume de la configuration :

$$\Delta T_v = \sum_{nl} Q_{nl} \Delta T_{nl}$$

Q_{nl} étant le nombre d'électrons n, l et $\Delta T_{(nl)}$ le déplacement isotopique de volume de l'un d'eux.

V - 2 Expression de l'énergie d'interaction coulombienne protons-électrons.

Le calcul de cette interaction demande la connaissance de la répartition de charges nucléaires. Il est nécessaire pour évaluer cette répartition de se placer dans le cadre d'un modèle nucléaire. Dans la région des terres rares le modèle qui semble le mieux adapté est le modèle unifié de Bohr - Mottelson. On peut alors écrire que le mouvement des nucléons est beaucoup plus rapide que le mouvement d'ensemble du noyau lequel est lui-même beaucoup plus rapide que celui des électrons. Dans ces conditions la densité protonique s'écrit :

$$\rho(\vec{r}) = \sum_{i=1}^Z \Psi_i^*(\vec{r}) \Psi_i(\vec{r})$$

$\vec{r}(r, \theta, \varphi)$ représente les coordonnées d'un point à l'intérieur du noyau.

$\vec{R}(R, \Theta, \Phi)$ désignant les coordonnées d'un électron pour une position d'ensemble du noyau l'énergie potentielle s'écrit :

$$U(R, \Theta, \Phi) = -e^2 \sum_1^N \int_{\tau} \frac{\Psi_i^*(\vec{r}) \Psi_i(\vec{r}) d\tau(\vec{r})}{(|\vec{R} - \vec{r}|)}$$

expression dont nous pouvons prendre la valeur moyenne sur Θ et Φ puisqu'il y a séparation des mouvements électroniques et nucléaires

$$U(R) = \frac{1}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\Phi \int_{-1}^{+1} U(R, \Theta, \Phi) d(\cos \Theta)$$

En réalité les expériences d'excitation coulombienne, les premières mesures de

déplacement isotopique ont montré qu'il n'était pas possible de considérer les noyaux comme sphériques mais qu'il était nécessaire de supposer soit une déformation permanente, soit des oscillations de la surface qui se traduisent pour le potentiel nucléaire par une symétrie axiale caractérisée par un paramètre de déformation que nous appellerons α et nous rappellerons cette propriété en écrivant $U(R)$ sous la forme $U\alpha(R)$.

V - 3 Nécessité de tenir compte des effets relativistes. Déplacement isotopique absolu d'un électron n, l, j.

Nous avons jusqu'ici supposé qu'il était possible de traiter l'effet isotopique de volume en utilisant l'équation de Schroedinger dans la théorie non relativiste. Or le déplacement isotopique n'est important que pour les atomes relativement lourds et il est dû à la présence des électrons s et $p_{1/2}$ dans la région nucléaire. Il est donc nécessaire de tenir compte de la relativité et le calcul du déplacement isotopique de volume ne peut se faire qu'en utilisant la théorie de Dirac. Nous pouvons encore obtenir dans l'hamiltonien une séparation des variables mais maintenant chaque fonction d'onde monoélectronique sera caractérisée par deux fonctions radiales qui doivent satisfaire aux équations de Klein Gordon suivantes :

$$\begin{aligned} 1 \quad & dF/dr - k F/r = 1/2 \tilde{a} \left(1 - \frac{E - U}{mc^2} \right) G \\ & dG/dr + kG/r = 1/2 a \left(1 + \frac{E - U}{mc^2} \right) F \\ & \text{avec :} \\ & \tilde{a} = \frac{Ze^2}{c} \end{aligned}$$

E est l'énergie de l'électron caractérisé par les nombres quantiques n, l, j, ($k = -(l + 1)$ pour $j = l + \frac{1}{2}$ et $k = l$ pour $j = l - \frac{1}{2}$)
U(r) est la somme de l'énergie potentielle de l'électron dans le champ du noyau et dans le champ des couches électroniques. U(r) est donc égal à la somme de V(r) et de $U^e(r)$. Comme le calcul du déplacement isotopique ne fait intervenir que des valeurs faibles de r (r sera de l'ordre de grandeur du rayon

nucléaire) il est possible de remplacer cette énergie potentielle due aux couches électroniques par une constante et les équations (1) deviennent :

$$(2) \quad dF/dr - kF/r = \frac{1}{2a} \left[1 - \frac{E' - U(r)}{mc^2} \right] G$$

$$dG/dr + kG/r = \frac{1}{2a} \left[1 + \frac{E' - U(r)}{mc^2} \right] F$$

$U_{\alpha}(r)$ ne dépendant plus que du noyau et $E' = E - U_0$, U_0 étant l'énergie constante due aux couches électroniques.

La nécessité de tenir compte des effets relativistes fait que la conclusion de notre § V n'est plus rigoureuse. En effet, nous devons écrire maintenant :

$$\Delta T_v = \sum_{nlj} q_{nlj} \Delta T_{nlj}$$

et le déplacement isotopique de volume ne reste pas constant au sein d'une même configuration puisque le déplacement isotopique d'un électron $n, p^{-3/2}$ ne sera plus le même que celui d'un électron $n, p^{-1/2}$ par exemple. Cependant nous verrons que l'effet de volume prépondérant est celui des électrons s et en première approximation notre conclusion du § 1 reste valable.

A partir des équations (2) Broch (7) montre que le déplacement isotopique peut se mettre sous la forme :

$$\Delta T_k = (GF_{\infty} - G_{\infty}F)_{R_0} / (2\pi) \int_{R_0}^{\infty} (F_{\infty}^x F + G_{\infty}^x G) dr \text{ cm}^{-1}$$

G_{∞} et F_{∞} étant les fonctions radiales pour le noyau ponctuel de charge Ze .

G et F étant les fonctions radiales pour le noyau de volume fini.

R_0 est une valeur arbitraire telle que pour :

$$r \geq R_0 \quad U_{\alpha}(r) = -Ze^2/r = U_{\infty}(r)$$

$U_{\infty}(r)$ étant quel que soit r égal à $\frac{-Ze^2}{r}$ puisque le noyau est ponctuel.

En prenant R_0 le plus petit possible le dénominateur tend pratiquement vers 2π et le déplacement isotopique s'écrit alors :

$$(3) \quad \Delta T_k = \frac{1}{2\pi} (GF_{\infty} - G_{\infty}F)_{R_0}$$

Calculer le déplacement isotopique de volume revient donc à calculer les fonc-

tions F et G en un point extérieur mais proche du noyau.

V - 3.1. CALCUL DES FONCTIONS F et G en UN POINT EXTERIEUR AU NOYAU.

Nous supposons r petit mais supérieur à R₀. Dans ces conditions, on peut considérer l'énergie non relativiste comme négligeable devant M C² et M C² négligeable devant U_α (r). Les équations (2) deviennent donc :

$$dF/dr - k F/r = \frac{1}{2 a m c^2} [1 + U_{\alpha} (r)] G$$

$$\text{et } G/dr + k G/r = \frac{1}{2 a m c^2} [1 - U_{\alpha} (r)] F$$

nous pouvons aussi écrire puisque r > R₀ U = $\frac{-Ze^2}{r}$; alors les équations admettent pour solutions les fonctions de BESSEL suivantes :

$$F = a C_+ J_{2\rho} (z) + a C_- J_{-2\rho} (z)$$

$$G = C_+ [(k - \rho) J_{2\rho} (\zeta) + \frac{\zeta}{2} J_{(2\rho+1)} (\zeta)] + C_- [(k - \rho) J_{-2\rho} (\zeta) - \frac{\zeta}{2} J_{(-2\rho+1)} (\zeta)]$$

$$\text{avec } \zeta = [2 Z r / a_H]^{1/2} \quad \rho = (k^2 - a^2)^{1/2}$$

C⁻ et C⁺ sont deux constantes que l'on doit déterminer. En substituant dans la formule (3) les expressions de F et de G ci-dessus et en utilisant l'identité mathématique :

$$\zeta/2 [J_{-2\rho} (\zeta) J_{2\rho+1} (\zeta) + J_{2\rho} (\zeta) J_{-(2\rho+1)} (\zeta)] = \frac{-2\rho}{\Gamma(1+2\rho) \Gamma(1-2\rho)}$$

on obtient :

$$\Delta T_k = -a \frac{2\rho}{\Gamma(1+2\rho) \Gamma(1-2\rho)} [C_+^{\circ} C_- - C_+ C_-^{\circ}]$$

C₊^o et C₋^o sont les constantes relatives à l'approximation du noyau ponctuel, C₊ et C₋ relatives au noyau réel. En étudiant le comportement de G_∞ et F_∞ lorsque r tend vers 0, il est possible de montrer que C₀^o est nulle tandis que le comportement des fonctions pour z suffisamment grand entraîne l'égalité de C⁺ et C₊^o. L'expression du déplacement isotopique devient donc :

$$\Delta T_k = -a \frac{2\rho}{\Gamma(1+2\rho) \Gamma(1-2\rho)} C_+^{\circ} C_- / C_+$$

Le développement en série des fonctions de Bessel pour z petit et limité au terme en y^p qui est le terme principal permet ensuite d'écrire :

$$F = a C_+ y^p \frac{1}{\Gamma(2p+1)} + a C_- y^{-p} \frac{1}{\Gamma(1-2p)}$$

$$G = C_+ [(k-p) y^p \frac{1}{\Gamma(2p+1)} + y^{p+1} \frac{1}{\Gamma(p+1)}] + C_- (k-p) y^{-p} \frac{1}{\Gamma(1-2p)}$$

d'où

en posant $X = F/aG$, $\frac{C_-}{C_+} = -1 \frac{\Gamma(1-2p)}{\Gamma(1+2p)} \frac{(k-p) X(r)-1}{(k+p) X(r)-1} y^{2p}(r)$
 nous obtenons alors la formule :

$$4. \Delta T_k = \frac{a}{2\pi} C_+^{O2} \frac{2p}{\Gamma^2(1+2p)} \frac{(k-p) X(r)-1}{(k+p) X(r)-1} y^{2p}(r)$$

r devant être voisin de R_0 et tel que $V_\alpha(r)$ soit égal à $\frac{-Ze^2}{r}$ ou très

voisin de cette valeur. Si nous assurons la continuité des fonctions radiales à la surface du noyau, nous pouvons calculer X pour R_0 et nous trouvons ainsi l'expression générale du déplacement isotopique absolu d'un électron, n, l, j .

$$5 \Delta T_k = \frac{a}{2\pi} C_+^{O2} \frac{2p}{\Gamma^2(1+2p)} \frac{(k-p) X(R_0)-1}{(k+p) X(R_0)-1} y^{2p}(R_0)$$

V - 3.2. INTERET DE LA FORMULE OBTENUE.

La formule que nous venons d'établir permet de calculer le déplacement isotopique d'un électron $n l j$ à condition qu'il soit possible :

- de calculer C_+^{O2} mais ce calcul est indépendant de l'isotope choisi puisque cette constante est relative au noyau ponctuel.
- de déterminer $X(R_0)$. Pour effectuer cette détermination il est nécessaire de supposer que le noyau possède un rayon limite R_0 tel que les conditions imposées au § précédent soient réalisées. Le calcul exposé est donc relatif au noyau fictif de volume fini. Cependant, il est bien évident qu'il doit être possible de définir un rayon nucléaire R tel que pour $r > R$ la densité protonique soit négligeable, donc tel que le potentiel soit alors $\frac{-Ze^2}{r}$

C'est à démontrer cette possibilité que Ionesco - Pallas s'est particulièrement attaché et l'intérêt de son travail est de montrer comment à partir d'une distribution de charges nucléaires réelle, il est toujours possible de calculer le rayon d'un noyau équivalent au point de vue déplacement isotopique et qui aurait une répartition de charge homogène. C'est pour cette raison et aussi parce que nous avons utilisé les calculs de Ionesco - Pallas dans le cas précis de la distribution de charge d'Elton que nous consacrerons un paragraphe à l'exposé de ce mode de calcul. Cependant, nous soulignons dès maintenant, en supposant le résultat admis, l'importance de la formule (5) car elle permet de mettre le déplacement isotopique de volume d'un électron sous la forme d'un produit de deux facteurs :

- le premier purement électronique et qui ne dépend que du noyau ponctuel.
- le second purement nucléaire, car nous allons montrer maintenant que dans le cas d'un noyau de rayon fini $X(r)$ ne dépend que du potentiel nucléaire.

V - 3.3. CALCUL DE $X(R_0)$ DANS L'HYPOTHESE DU NOYAU DE VOLUME FINI, de RAYON R_0 .

Bodmer (9) montre que $X(R)$ peut se calculer à partir de la formule :

$$6. X(r) = -\frac{1}{Ze^2} r^{-2k} \int_0^r [E - mc^2 - U(r')] [1 + a^2 \frac{E + mc^2 - U(r')}{E - mc^2 - U(r')} X^2(r')] r'^{-2k} dr'$$

formule qui exige les mêmes hypothèses qu'au § 3.1. E négligeable devant mc^2 et mc^2 devant $U_\alpha(r)$.

Au premier ordre le calcul de $X(r)$ donne :

$$X(R_0) = -\frac{Z}{2|k|} + \frac{Z}{2|1+2k|} \frac{\langle R^{2|k|} \rangle}{R^{2|k|}} + \frac{1-E}{1+2|k|}$$

en posant :

$$\langle R^{2|k|} \rangle = -\frac{1}{Ze} \int_V \rho(r', \theta, \varphi) r'^{2|k|+2} dr' \sin \theta d\theta d\varphi$$

pour un électron ($k=1$), nous trouvons que le déplacement isotopique absolu ne dépend au premier ordre que d'un seul paramètre : le carré moyen de la distribution de charge nucléaire :

$$\langle R^2 \rangle = \frac{1}{Ze} \int_V \rho(r', \theta, \varphi) r'^4 dr' \sin \theta d\theta d\varphi$$

Pour effectuer le calcul aux ordres supérieurs, il est nécessaire d'explicitier

$U_{\alpha}(r')$ et d'employer des méthodes de développement en série. Nous suivons celle choisie par Ionesco-Pallas, dans le cas d'une sphère de rayon R et avec une répartition uniforme de charge. Dans ces conditions l'énergie potentielle U_{α} s'écrit :

$$U^{\circ} = \frac{-Ze^2}{R} : \frac{3}{2} \left(1 - \frac{1}{3} x^2 \right) \text{ pour } r \leq R$$

$$U^{\circ} = \frac{-Ze^2}{r} \text{ pour } r > R \text{ avec } x = r/R$$

la formule (6) s'écrit avec les hypothèses faites

$$X(r) = -\frac{1}{Ze^2} r^{-2} \int_0^r U_{\alpha}(r') (1 - a^2 X^2(r')) r'^2 dr'$$

dans le cas d'un électron s .

On calcule alors successivement $X(r)$ aux différents ordres et on exprime le résultat sous la forme suivante en posant $x = r/R$

$$X(x) = \varepsilon_1(x) + a^2 \varepsilon_2(x) + a^4 \varepsilon_3(x) + \dots$$

L'étape suivante du calcul est alors la détermination de :

$$I = \frac{1 - (1+p)X(r)}{1 - (1-p)X(r)} y^{2p}(r)$$

qui peut se mettre sous la forme

$$I = \frac{1 - (1+p)X(r)}{1 - (1-p)X(r)} x^{2p} y^{2p}(R) = J y^{2p}(R)$$

En utilisant le développement $X(x)$ et en calculant un développement en série de J on trouve pour la distribution de charge uniforme dans une sphère de rayon R que J est constant et très peu différent de $1/5$ quelque soit $x \gg 1$. Dans le cas d'un noyau de rayon R et à répartition de charge uniforme le déplacement isotopique prend la valeur pour un électron s :

$$\Delta T_{ms} = \frac{a}{2\pi} C_+^{02} \frac{2p}{\Gamma(1+2p)} \frac{1}{5} y^{2p}(R)$$

V - 3.4. CAS DE NOYAU REEL, DEFINITION DU RAYON EQUIVALENT.

Pour cela on suppose la distribution de charge $\rho(\vec{r})$ connue. A partir de cette distribution, on définit :

$$7. R = \left[\frac{5}{3} (\bar{r}^2) \right]^{1/2} \text{ avec } \bar{r}^2 = \frac{1}{Z} \int \rho(\vec{r}) r^2 d\tau$$

Et on écrit $X(x)$ pour la distribution réelle sous la forme :

$$X(x) = \varepsilon_1^0(x) + \Delta \varepsilon_1(x) + a^2 (\varepsilon_2^0(x) + \Delta \varepsilon_2(x)) + \dots \quad \varepsilon_1^0, \varepsilon_2^0$$

étant les valeurs relatives à la sphère de distribution homogène et de rayon R .

Ceci permet de mettre l'expression I sous la forme :

$$I = y^{2p}(R) \frac{1 - (1+p) X^0(1)}{1 - (1-p) X^0(1)} \left[1 - 10 a^2 \left(\frac{r}{R}\right) \Delta \varepsilon_2 + 5 a^4 \left(\frac{r}{R}\right)^2 \dots \right]$$

pour $x > 1$ que l'on peut encore écrire :

$$I = y^{2p}(R^x) \frac{1 - (1+p) X^0(1)}{1 - (1-p) X^0(1)}$$

en définissant le rayon équivalent comme suit :

$$8. R^x = \lim_{r \rightarrow \infty} R \left[1 - 5 a^2 \left(\frac{r}{R}\right)^2 \Delta \varepsilon_2(r) + a^4 (\dots) + \dots \right]$$

Ionesco Pallas a effectué les calculs dans le cas d'une distribution généralisée d'Elton tenant compte de la déformation. Ce sont en partie ses résultats que nous appliquerons dans nos calculs, mais la méthode reste valable quelle que soit la distribution de charges et le déplacement isotopique peut toujours s'écrire :

$$9. \Delta T_{ns} = \frac{a}{2\pi} C_+^{02} \frac{2p}{\Gamma(1+2p)} \frac{1 - (1+p) X^0(1)}{1 - (1-p) X^0(1)} y^{2p}(R^x)$$

R^x étant calculé à partir de (8).

V - 3.5. DEPLACEMENT ISOTOPIQUE RELATIF POUR UN ELECTRON n s.

Le déplacement isotopique relatif s'obtient en prenant la dérivée de l'expression (9) à Z constant :

$$\delta(\Delta T_{ns}) = \frac{a}{2\pi} C_+^{02} \frac{2p}{\Gamma(1+2p)} \frac{1 - (1+p) X^0(1)}{1 - (1-p) X^0(1)} y^{2p}(R^x) \cdot 2p \left(\frac{\partial R^x}{\partial N} \right)_Z \delta N$$

expression que l'on écrit généralement :

$$10 \delta(\Delta T_{ns}) = \frac{a}{2\pi} C_+^{02} \frac{2p}{\Gamma(1+2p)} \frac{1 - (1+p) X^0(1)}{1 - (1-p) X^0(1)} y^{2p}(R^x) \cdot 2p \frac{\delta A}{A} \left(\frac{\partial A}{\partial N} \right)_Z$$

V - 4 . DEPLACEMENT ISOTOPIQUE POUR UN NIVEAU.

Nous avons :

$$\Delta T_v = \sum_{nlj} g_{nlj} \Delta T_{nlj}$$

chaque déplacement élémentaire pouvant se mettre sous la forme d'un produit de deux facteurs, l'un caractéristique des fonctions d'onde électronique dans l'approximation du noyau ponctuel ($C_+^{\circ 2}$) l'autre des propriétés nucléaires, il est donc possible de mettre le déplacement isotopique sous la forme d'un produit de deux facteurs si nous connaissons le rapport des constantes nucléaires par rapport à une des constantes C_v (n s) par exemple. Nous pouvons donc écrire le déplacement isotopique absolu d'un niveau sous la forme suivante :

$$\Delta T \approx E \times V_i$$

E caractéristique des fonctions d'onde électroniques,

V_i caractéristique du noyau.

Au cours des } précédents nous avons montré qu'il était théoriquement possible de calculer l'effet isotopique de volume dès que la distribution de charges nucléaires est connue. Pour calculer le facteur V_i il suffit à cet effet d'utiliser les formules (7) (8) et (9). Pour pouvoir comparer les résultats expérimentaux et calculés, il nous faut donner maintenant le mode d'obtention de $C_+^{\circ 2}$

V - 5. DETERMINATION DE $(C_+^{\circ})^2$.

L'utilisation des fonctions de Bessel et l'étude des limites asymptotiques de ces fonctions en théorie relativiste et non relativiste permet de montrer que l'on a :

- pour un électron n s $C_+^{\circ} = \frac{a_H}{2Z} \sqrt{4\pi} \Psi_n(0)$

- pour un électron n, l, j, autre qu'un électron s.

$$C_+^{\circ} = \frac{a_H}{2Z} \sqrt{2 \cdot 1 \cdot (1+1) \cdot (2 \cdot 1 + 1) \cdot \left(\frac{1}{r}\right)}$$

nous obtenons donc :

$$\Delta T_{n\delta} = 2\pi R_{\infty} \frac{a_H^3}{Z} \psi_{n\delta}^2 \frac{2P}{V_{(1+2P)}^2} \frac{1-(1+P)X^0(1)}{1-(1-P)X^0(1)} y^{2P}(R^x)$$

Il est donc nécessaire de pouvoir déterminer $\psi_{n\delta}^2$. Pour cela on peut utiliser la formule de Fermi-Segré :

$$\psi_{n\delta}^2 = \frac{Z Z_a^2}{\pi a_H^3 n^{x3}} (1 - d\Delta/dn)$$

n^x nombre quantique effectif.

Δ : défaut quantique $n^x = n - \Delta$

$Z_a = 1$ pour l'atome neutre, 2 pour l'atome une fois ionisé, etc.

Lorsque la classification est suffisamment avancée, il est possible de calculer $\psi_{n\delta}^2$ à partir du potentiel d'ionisation. On peut aussi si l'élément possède un isotope avec structure hyperfine déterminer $\psi_{n\delta}^2$ à partir de $a_{ns'}$ avec la relation :

$$a_{ns} = \frac{8}{Z} R_{\infty} \frac{Z}{1836} \left[\frac{Za^2}{n_a^3} \frac{dn_a}{dn} \right] F_r(j, z) (1 - \delta) (1 - \epsilon) \frac{\mu}{I}$$

formule dans laquelle $F_r(j, z)$, δ et ϵ sont respectivement une correction relativiste, la correction de Breit-Crawford-Schawlow et la correction de Bohr-Weisskopf, I étant le spin et μ le moment magnétique nucléaire. Cependant l'utilisation de cette dernière formule ne peut se faire que lorsque la configuration est pure.

VI - DEPLACEMENT ISOTOPIQUE D'UN NIVEAU.

VI - 1. Déplacement isotopique absolu.

C'est la somme des déplacements de masse et de volume. Nous avons donc :

$$\Delta T = - \frac{m}{M} T_{\infty} + \frac{1}{M} \Delta T_{MS} + \sum_{nlj} q_{nlj} \Delta T_{nlj}$$

que nous écrivons encore (voir IV. 4)

$$\Delta T = - \frac{m}{M} T_{\infty} + \frac{1}{M} \Delta T_{MS} + E V_i$$

VI - 2. Déplacement isotopique relatif.

nous l'écrivons soit sous la forme :

$$11. \quad \delta(\Delta T) = \left[-\frac{1}{M^2} (-m T_{\infty} + k) + E \frac{dV_i}{dM} \right] \delta M$$

soit :

$$\delta(\Delta T) = \left(\frac{1}{M_2} - \frac{1}{M_1} \right) (-m T_{\infty} + k) + E (V_2 - V_1)$$

V_1 facteur nucléaire relatif à l'isotope (1).

VI - 3 Changement de Notation.

Jusqu'ici, nous avons utilisé les termes de déplacement isotopique absolu et de déplacement isotopique relatif conformément aux relations utilisées par Ionesco Pallas notamment.

Cependant à partir de maintenant le déplacement isotopique relatif sera désigné par déplacement isotopique et nous réserverons le terme de déplacement relatif comme le font les expérimentateurs pour désigner le rapport de deux déplacements isotopiques concernant un même niveau mais une variation de masse différente.

$$D I R : \frac{\delta(\Delta T)_{\delta M_1}}{\delta(\Delta T)_{\delta M_2}}$$

que nous noterons encore D I R : $\frac{\delta T(M_1 M_2)}{\delta T(M_2 M_3)}$

VII - LE DEPLACEMENT ISOTOPIQUE MESURE. DEPLACEMENT ISOTOPIQUE D'UNE TRANSITION.

Il est nécessaire maintenant de préciser comment la mesure du déplacement isotopique par spectroscopie permet d'atteindre le déplacement isotopique des niveaux afin de déterminer l'intérêt de cette mesure et les renseignements qu'on peut en attendre.

Lorsqu'on effectue une mesure de déplacement isotopique par spectroscopie,

on mesure la variation du nombre d'onde d'une transition entre deux niveaux a et b (b sera le niveau supérieur) lorsque l'on passe d'un isotope de masse M_1 à un isotope de masse M_2 . Nous désignerons par :

$\delta\sigma(M_1, M_2)$ cette mesure et nous écrirons :

$$\delta\sigma(M_1, M_2) = \sigma(M_2) - \sigma(M_1) \quad \text{avec } M_2 > M_1$$

Le déplacement isotopique ainsi mesuré sera dit positif lorsque $\delta\sigma(M_1, M_2)$ exprimé en cm^{-1} sera positif, négatif dans le cas contraire.

Nous écrirons :

$$\delta\sigma(M_1, M_2) = [\sigma_b(M_2) - \sigma_b(M_1)] - [\sigma_a(M_2) - \sigma_a(M_1)]$$

ou encore

$$\delta\sigma(M_1, M_2) = \delta T_{(M_1, M_2)}^b - \delta T_{(M_1, M_2)}^a$$

$\delta T_{(M_1, M_2)}^i$ étant le déplacement isotopique du niveau i pour le couple d'isotopes de masse M_1 et M_2 .

Nous pouvons donc en utilisant la formule (11) mettre cette expression sous la forme :

$$\delta\sigma(M_1, M_2) = -\frac{1}{M_1^2} (M_2 - M_1) \left[-m (T_\infty^b - T_\infty^a) + (k^b - k^a) \right] + (E^b - E^a) \frac{dV}{dM} (M_2 - M_1)$$

l'effet de masse normal peut se calculer facilement et nous supposons toujours que la correction a été faite. Pour rendre l'écriture plus facile, nous utiliserons la notation suivante :

$$\delta\sigma^i(M_1, M_2) = -\frac{1}{M_1^2} (M_2 - M_1) k^i + E^i V(M_1, M_2)$$

l'indice i permettant de désigner la transition étudiée,

$$k^i = (k^b - k^a), \quad E^i = (E^b - E^a) \quad \text{et} \quad V(M_1, M_2) = \frac{dV}{dM} (M_2 - M_1)$$

cette dernière expression étant indépendante de la transition étudiée.

Nous définirons aussi un déplacement isotopique relatif pour les transitions que nous noterons :

$$\text{DIR} \left(\frac{M_1, M_2}{M_3, M_4} \right) = \frac{\delta\sigma^i(M_1, M_2)}{\delta\sigma^i(M_3, M_4)}$$

un tel déplacement isotopique s'écrit :

$$D I R (M_1 M_2 / M_3 M_4) = \frac{-1/M_1^2 (M_2 - M_1) k^i + E^i V (M_1 M_2)}{-1/M_3^2 (M_4 - M_3) k^i + E^i V (M_3 M_4)}$$

Le D I R était supposé essentiellement constant quelle que soit la transition dans le cas des terres rares. Striganov (10) en le mesurant d'une manière très précise dans le cas du Samarium a montré qu'il pouvait varier de quelques pour cents, cette variation étant en dehors du domaine d'incertitude expérimentale. Pour expliquer cette variation Striganov envisageait l'abandon d'un certain nombre d'hypothèses nucléaires, mais King (11) suggéra simplement d'attribuer cette variation à un effet spécifique de masse non négligeable dans cette région de terres rares. En effet, si l'effet spécifique de masse est à peu près égal à l'effet de volume, il n'y a aucune raison que le D I R soit constant. Nous remarquerons de plus que si $V (M_1 M_2)$ est pratiquement du même ordre de grandeur que $V (M_3 M_4)$ le D I R n'est que très peu sensible à la valeur de l'effet spécifique de masse.

VIII - CALCUL DU DEPLACEMENT ISOTOPIQUE DES NIVEAUX A PARTIR DES MESURES EXPERIMENTALES.

Pour pouvoir comparer les résultats expérimentaux et théoriques, il faut obtenir la valeur du déplacement isotopique des niveaux, grandeur qui n'est pas directement accessible puisque le déplacement isotopique d'une transition dépend de deux niveaux. C'est pourquoi, il est nécessaire de prendre un terme de référence auquel on attribuera un déplacement isotopique nul. Le terme choisi est en général celui pour lequel l'atome est ionisé ... Cependant ce choix implique que le déplacement isotopique du cœur soit le même dans les deux cas. Prenons par exemple le cas de la configuration $f^4 s$. Si nous mesurons le déplacement isotopique de l'électron s dans $f^4 s$ par l'expression

$\Delta T (f^4 s) - \Delta T (f^4)$ nous supposons que le déplacement isotopique du cœur f^4 dans $f^4 s$ est identique à celui de f^4 . Or ceci n'est pas rigoureusement vrai car les fonctions d'onde du cœur sont modifiées par la présence de l'électron s dans la configuration $f^4 s$. Il en résulte qu'il serait nécessaire de calculer le déplacement isotopique absolu de $(f^4 s)$ et de (f^4) pour pouvoir

comparer le déplacement isotopique mesuré et théorique. Un tel calcul est particulièrement difficile et n'a pas été effectué jusqu'ici et pour pouvoir effectuer la comparaison on utilise généralement la notion d'effet d'écran que nous allons définir à partir d'un exemple.

Considérons dans le cas du néodyme deux transitions du type :

$$\begin{array}{ll} f^3 d s^2 & f^4 s^2 \quad \text{pour le spectre I} \\ f^4 p & f^4 s \quad \text{pour le spectre II} \end{array}$$

et trois isotopes M_1 , M_2 et M_3 .

Nous pouvons écrire :

$$\begin{aligned} \delta \sigma^1(M_1, M_2) &= -\frac{1}{M_1^2} (M_2 - M_1) k^1 + E^1 V(M_1, M_2) \\ (f^3 d s^2 - f^4 s^2) \delta \sigma^1(M_2, M_3) &= -\frac{1}{M_2^2} (M_3 - M_2) k^1 + E^1 V(M_2, M_3) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \delta \sigma^2(M_1, M_2) &= -\frac{1}{M_1^2} (M_2 - M_1) k^2 + E^2 V(M_1, M_2) \\ (f^4 p - f^4 s) \delta \sigma^2(M_2, M_3) &= -\frac{1}{M_2^2} (M_3 - M_2) k^2 + E^2 V(M_2, M_3) \end{aligned}$$

nous en déduisons le rapport :

$$\rho = \frac{\delta \sigma^1(M_2, M_3) - \delta \sigma^1(M_1, M_2)}{\delta \sigma^2(M_2, M_3) - \delta \sigma^2(M_1, M_2)} \neq \frac{E^1 (V(M_2, M_3) - V(M_1, M_2))}{E^2 (V(M_2, M_3) - V(M_1, M_2))}$$

$$\rho \neq \frac{E^1}{E^2}$$

le rapport ρ ainsi défini est une généralisation de la notion d'effet d'écran. Il permet immédiatement de trouver quel est le rapport des effets de volume pour deux transitions données. Nous remarquons que si nous prenons une transition de référence, toutes les transitions entre deux configurations données (si le mélange de configuration est faible) doivent avoir le même ρ . Ce ré-

sultat peut servir à la classification lorsque l'effet spécifique de masse est important et nous en verrons un exemple dans le cas du néodyme.

Enfin en choisissant un terme de référence ou plus exactement une transition telle que les conditions suivantes soient réalisées :

- niveau supérieur ayant un déplacement isotopique nul pour l'électron de valence,

- coeur du niveau supérieur identique au point de vue déplacement isotopique au coeur du niveau inférieur,

nous avons la possibilité de remonter au déplacement isotopique de l'électron $n s$ pour l'élément considéré. Dans ces conditions, il est possible de définir une constante de déplacement isotopique caractéristique des propriétés nucléaires telle que l'ont définie Brix et Kopfermann (12'1.) Cette constante est alors égale à :

$$C \text{ exp} = \delta T^{ns} \text{ volume} \bigg/ \frac{Za^2}{na^3} \frac{dna}{dn}$$

Cependant, si l'effet spécifique de masse n'est pas négligeable, il n'est pas possible d'obtenir directement cette constante. C'est pourquoi nous allons maintenant définir une grandeur indépendante de l'effet spécifique de masse, caractéristique des variations des propriétés nucléaires d'un couple d'isotopes à l'autre.

IX - CONSTANTE QUADRIISOTOPIQUE.

Considérons maintenant quatre isotopes M_1, M_2, M_3, M_4 et deux transitions nous pouvons écrire :

$$\delta \epsilon^1 (M_1 M_2) = \left(\frac{1}{M_2} - \frac{1}{M_1} \right) k^1 + E^1 V(M_1 M_2)$$

$$\delta \epsilon^2 (M_1 M_2) = \left(\frac{1}{M_2} - \frac{1}{M_1} \right) k^2 + E^2 V(M_1 M_2)$$

et deux relations identiques pour les isotopes M_3 et M_4 .

La quantité

$$I = \frac{\delta\sigma^1(M_1, M_2) - \frac{M_2 M_3}{M_1 M_2} \delta\sigma^1(M_2, M_3)}{\delta\sigma^1(M_1, M_2) - \frac{M_3 M_4}{M_1 M_2} \delta\sigma^1(M_3, M_4)}$$

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

est indépendante de la transition étudiée. Si les hypothèses faites dans le calcul du déplacement isotopique sont justifiées, nous devons alors trouver que la constante quadriisotopique est bien un invariant. Ce test est donc intéressant mais il nécessite une grande précision dans la mesure des déplacements isotopiques. En effet, I fait intervenir des différences de déplacement isotopique et ces différences sont en général de l'ordre de la dizaine de mK. Pour obtenir I avec une précision de l'ordre du pour cent, il sera nécessaire de mesurer les intervalles à quelques dixièmes de mK.

X - LE DEPLACEMENT ISOTOPIQUE ET LES MESURES NUCLEAIRES.

Pour calculer le déplacement isotopique il est nécessaire de connaître la répartition de charges nucléaires. Plus précisément deux grandeurs sont particulièrement intéressantes, le rayon de la sphère équivalente $R = \left(\frac{5}{3} \langle r^2 \rangle\right)^{1/2}$ et le coefficient caractéristique de la déformation α . Ce sont les expériences de diffusion des électrons de haute énergie par les noyaux qui ont permis à Elton (12) de déterminer la distribution de charges qu'utilise Ionesco-Pallas et de trouver la relation entre A et R :

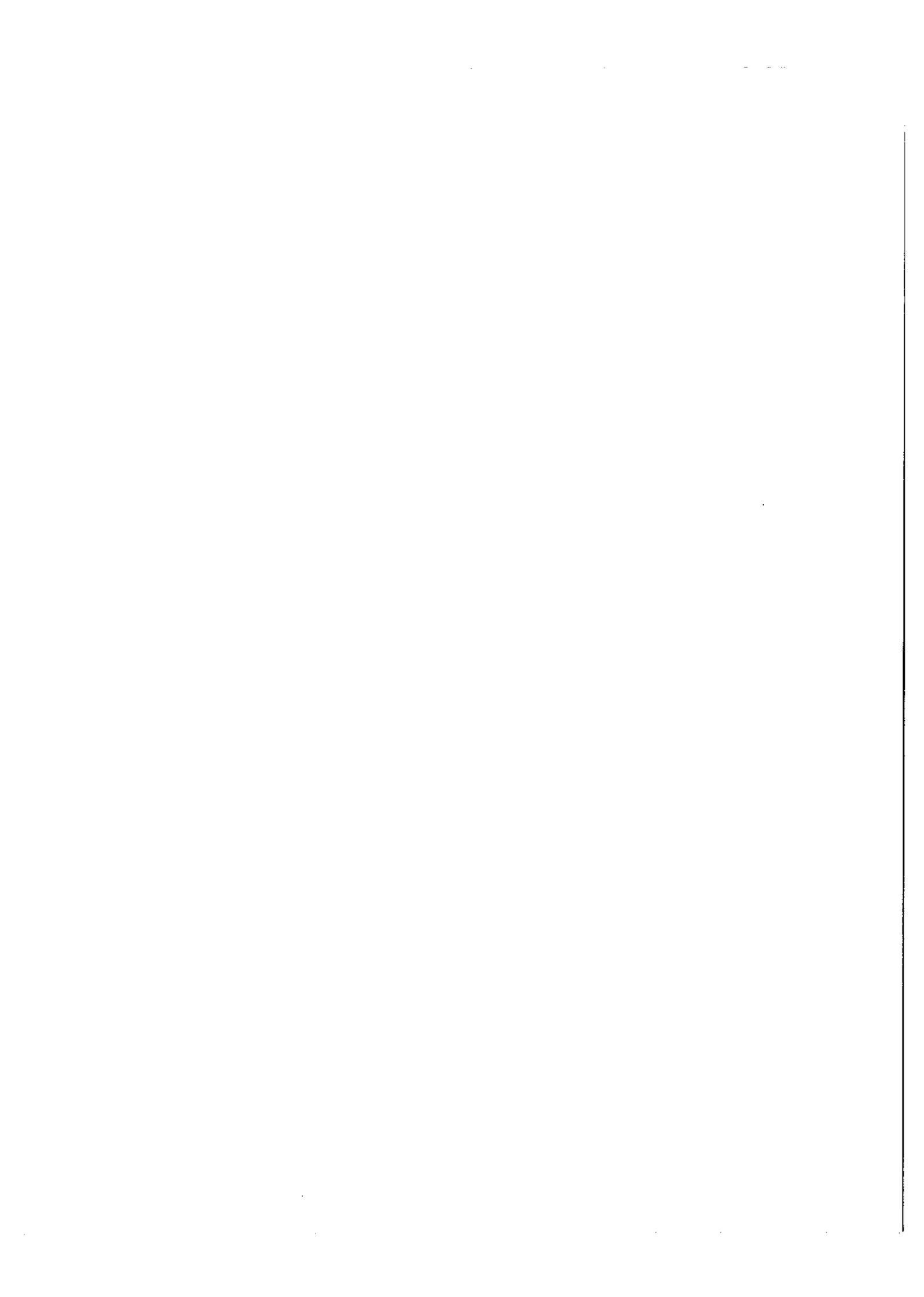
$$R = 1,123 A^{1/3} + 2,352 A^{-1/3} - 2,070 A^{-1}$$

C'est à partir des expériences d'excitation coulombienne que peuvent être calculés les coefficients de déformation. Nous donnons seulement ici la formule

qui permet à partir de la probabilité de transition entre le niveau fondamental et le premier niveau excité du noyau de calculer α :

$$\langle \alpha^2 \rangle = 0,4 \left(\frac{3}{4\pi} Z e r_0^2 \right)^{-2} B(E_2)_{0 \rightarrow 2}$$

Les coefficients de déformation utilisés pour le calcul des déplacements isotopiques sont en général déduits de cette formule et nous verrons au dernier chapitre la précision des valeurs ainsi obtenues.



CHAPITRE II

TECHNIQUES EXPERIMENTALES ET LIMITES D'ERREUR -

I - INTRODUCTION.

La mesure des structures hyperfines et des déplacements isotopiques exige l'utilisation d'appareils à haute luminosité, et de pouvoir de résolution élevé. Dans le domaine du visible, l'appareil qui, à résolution égale, est le plus lumineux est le spectromètre Fabry-Pérot photoélectrique, couramment appelé HYPEAC (12). C'est un de ces spectromètres que nous avons utilisé pour notre travail, et la figure 1 en rappelle le schéma de principe. La première modification que nous y avons apportée a été la substitution d'une tétracathode telle que celle décrite par Ben Ména (14), à la source unique indiquée sur le schéma, afin de pouvoir utiliser simultanément plusieurs sources. Après avoir indiqué les différentes techniques d'enregistrement que nous avons utilisées, nous nous attacherons plus particulièrement à justifier les autres modifications que nous avons apportées au montage afin d'améliorer la précision des mesures par la réduction des différentes causes d'erreurs autres que le rapport signal/bruit de la source. En effet, l'étude du déplacement isotopique relatif ne demande pas la mesure systématique du déplacement isotopique d'un grand nombre de transitions, mais exige par contre que la précision soit la plus grande possible pour quelques transitions que l'on peut choisir de manière que le rapport signal/bruit soit excellent. Enfin, la réalisation des modifications présente un intérêt technologique ; nous en donnerons le détail dans un paragraphe annexe.

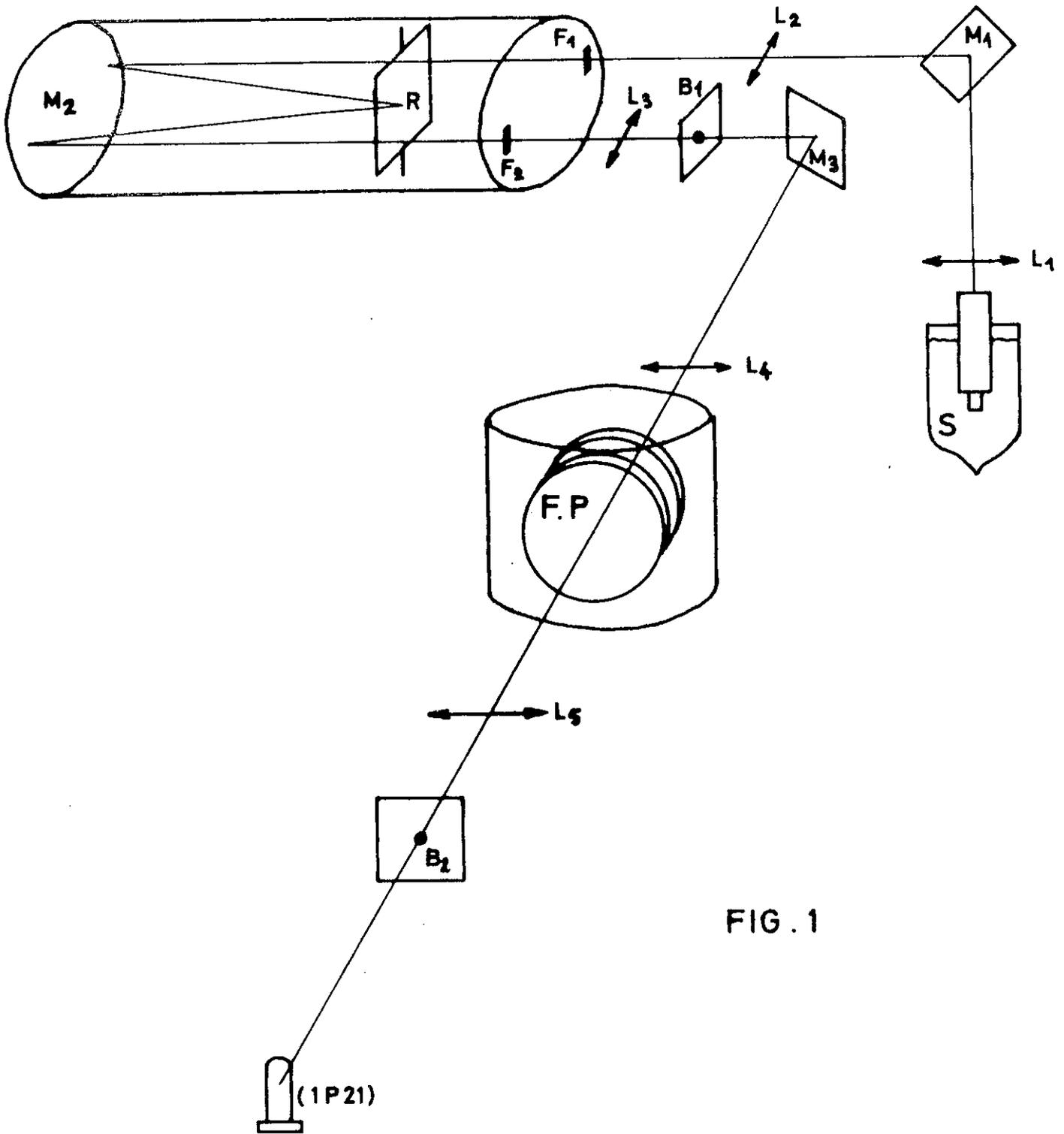
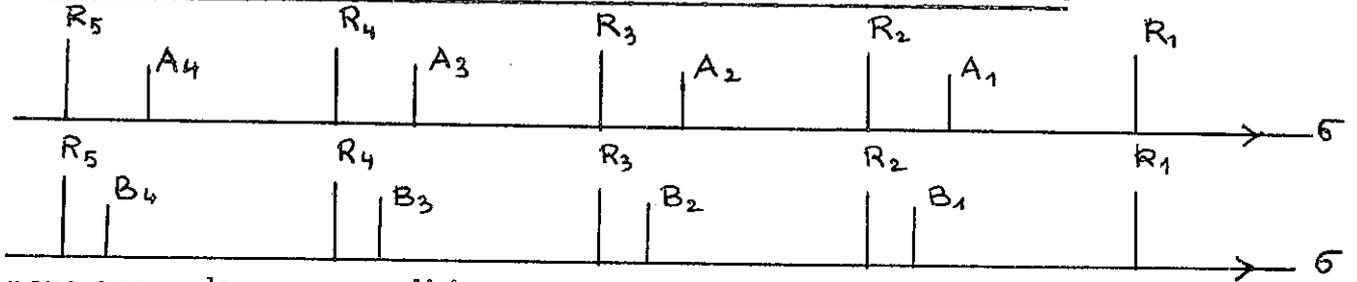


FIG. 1

II - DESCRIPTION DES ENREGISTREMENTS - LA METHODE DE MESURE.

Au cours de notre étude, nous avons utilisé trois techniques d'enregistrement que nous pouvons caractériser par les schémas suivants :

II - 1 Utilisation d'une seule cathode et d'une raie de référence.



nous avons dans ces conditions :

$$\delta(R, A) = \Delta\sigma \times \frac{R_1 A_1}{R_1 R_2}$$

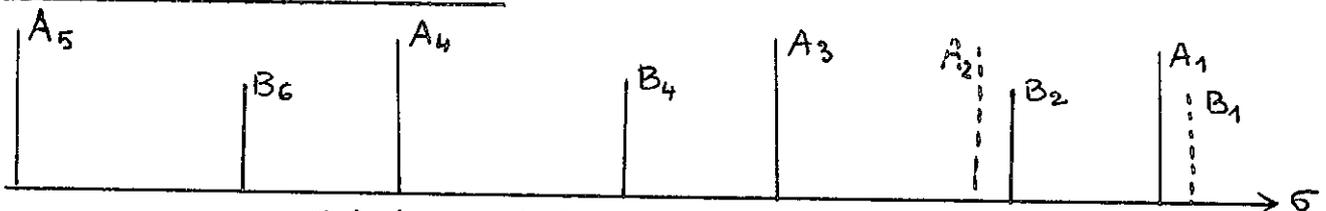
$$\delta(R, B) = \Delta\sigma \times \frac{R_1 B_1}{R_1 R_2}$$

$\Delta\sigma$: intervalle entre ordre du Fabry-Perot

$$\delta(A, B) = \delta(R, A) - \delta(R, B)$$

La raie de référence est toujours obtenue par un isotope du même corps. Par exemple, pour mesurer l'intervalle entre les isotopes 142 et 144 du néodyme, nous avons mesuré successivement l'intervalle 142-150, et l'intervalle 144-150.

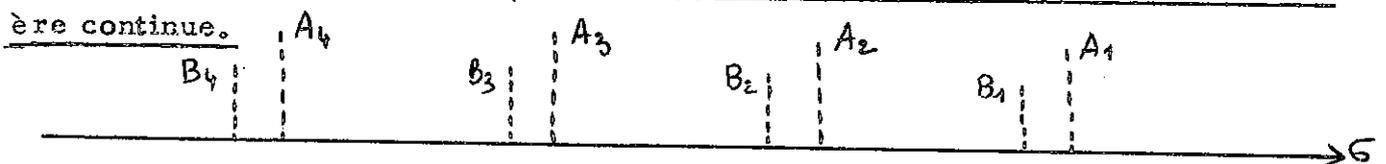
II - 2 Utilisation de deux cathodes avec substitution de l'une à l'autre un intervalle entre ordre sur deux.



$$\delta(A, B) = \Delta\sigma \left[\frac{A_1 A_{3/2} - A_1 B_2}{A_1 A_{3/2}} \right]$$

Dans ces conditions, chaque cathode contient un seul isotope.

II - 3 Utilisation de deux cathodes avec substitution de l'une à l'autre de manière continue.



$$\delta (A;B) = \Delta \sigma \times \frac{A_1 B_1}{A_1 A_2}$$

Toutes les seize secondes, par exemple, on passe d'une cathode à l'autre, et la mesure du déplacement isotopique est dans ce cas directe.

Nous remarquons que, dans les trois cas, la mesure du déplacement isotopique exige :

- La connaissance précise de l'intervalle entre ordre de Fabry-Pérot,
- la linéarité du balayage imposée par les rapports de la forme AB/AA,
- la détermination des axes des raies,

alors que, dans les deux dernières méthodes, nous introduisons une condition supplémentaire : coïncidence optique des faisceaux issus des deux cathodes, de façon que le déplacement isotopique mesuré pour deux isotopes identiques soit nul aux erreurs de mesures près.

La détermination de l'intervalle entre ordre qui est égal à $1/2e$, e étant l'épaisseur des cales utilisées, se fait soit en mesurant l'épaisseur des cales au comparateur, soit par voie interférentielle, en utilisant la méthode des excédents fractionnaires, et la précision est toujours voisine de 10^{-4} , ce qui, nous le verrons, est largement suffisant.

Nous allons étudier maintenant la linéarité du balayage.

III - LINEARITE DU BALAYAGE - ETALONNAGE DES SPECTRES.

III - 1 Définitions :

Nous supposons, tout au cours du paragraphe, que le pouvoir de résolution est infini, et que les raies sont infiniment fines. Ceci nous permet de représenter un enregistrement par l'imbrication de deux peignes de Dirac, et les seules erreurs possibles sont celles dues au balayage. Lorsque nous écrivons :

$$\delta (A,B) = \Delta \sigma \times \frac{A_1 B_1}{A_1 A_2}$$

nous supposons la loi qui lie l'abscisse de la raie à son nombre d'onde linéaire,

ce qui n'est jamais réalisé. Suivant les notations employées par R. Chabbal (15), si $d\sigma$ représente l'écart entre la loi enregistrée et la loi supposée, nous appellerons définience le rapport $D = \frac{\sigma}{d\sigma}$ et définience relative à un intervalle entre ordre la quantité $F = \frac{\Delta\sigma}{d\sigma}$ $d\sigma$ étant alors l'écart entre la loi théorique de balayage et la loi réelle pour l'intervalle entre ordre.

III - 2 Fuite utilisée au laboratoire.

Le balayage des intervalles entre ordres dans l'HYPEAC est obtenu par variation de la pression en fonction du temps. Pour cela, une fuite Edwards (fuite à aiguille), à débit variable, met en communication l'enceinte du Fabry-Perot avec la "salle", le vide ayant été fait au préalable.

En général on n'utilise la fuite que dans la zone 0,9 - 0,5 atmosphères, zone où il est possible d'admettre que la fuite est linéaire à un pour cent. Cette précision ne peut-être acceptée, et il est donc nécessaire soit d'avoir recours à un autre type de fuite, soit d'utiliser une méthode d'étalonnage des spectres, ce que nous avons fait au laboratoire (16).

III - 3 Utilisation d'un interféromètre de Michelson.

Pour étalonner les spectres, nous enregistrons donc simultanément les franges d'un interféromètre de Michelson et la structure étudiée. Un des bras de l'interféromètre est maintenu à pression constante, l'autre bras étant relié à l'enceinte du Fabry-Perot. A chaque interfrange correspond donc un balayage constant en nombre d'onde, et la mesure d'un intervalle entre ordre se réduit à la mesure d'un nombre entier de franges et de deux excédents fractionnaires. L'erreur absolue commise sur la mesure d'un intervalle entre ordre devient donc identique à celle commise sur la mesure du déplacement isotopique, et nous pouvons maintenant rechercher une linéarité de la fuite sur quelques franges successives seulement.

III - 4 Recherche de la meilleur zone de linéarité de la fuite et des meilleures conditions d'enregistrement.

Il est important que la fuite soit localement linéaire, ou plus exactement que sa loi de variation soit parfaitement connue. L'expérience montre que cette condi-

tion est d'autant mieux réalisée que la différence de pression entre l'amont et l'aval de la fuite est plus grande ou qu'elle reste constante. Pour réaliser cette condition et nous permettre aussi de supprimer les temps d'enregistrement inutiles, nous avons été amenés à utiliser deux fuites et un système de balayage va-et-vient. Le principe de balayage est alors le suivant :

L'enceinte dans laquelle est placé le Fabry-Pérot est reliée par l'intermédiaire de deux fuites Edwards, soit à une enceinte à pression élevée P_1 , soit à une enceinte à pression constamment nulle. Nous pouvons alors faire varier la pression dans l'enceinte entre deux valeurs $P_0 + \Delta p$ et $P_0 - \Delta p$, telles que la linéarité reste satisfaisante. Nous avons fixé P_1 à 1,6 atmosphère, P_0 à 0,8 atmosphère et Δp à 0,1 atmosphère, ce qui nous permet de balayer 1000 cm^{-1} dans un sens ou dans l'autre. Les graphiques (1) et (2) représentent la variation de l'interfrange i en fonction de l'abscisse n de la frange pour les deux fuites. Nous constatons que dans le cas ($P_1 \rightarrow P_0$) l'interfrange est pratiquement constant en fonction du temps, tandis que dans le cas ($P_0 \rightarrow 0$), c'est l'accroissement de l'interfrange qui est constant. Les graphiques (3) et (4) donnent la valeur

$\Delta i = (i_m - i_1)$ en fonction de l'abscisse n des franges, i_m étant l'interfrange mesuré en ce point, et i_1 l'interfrange théorique défini comme suit :

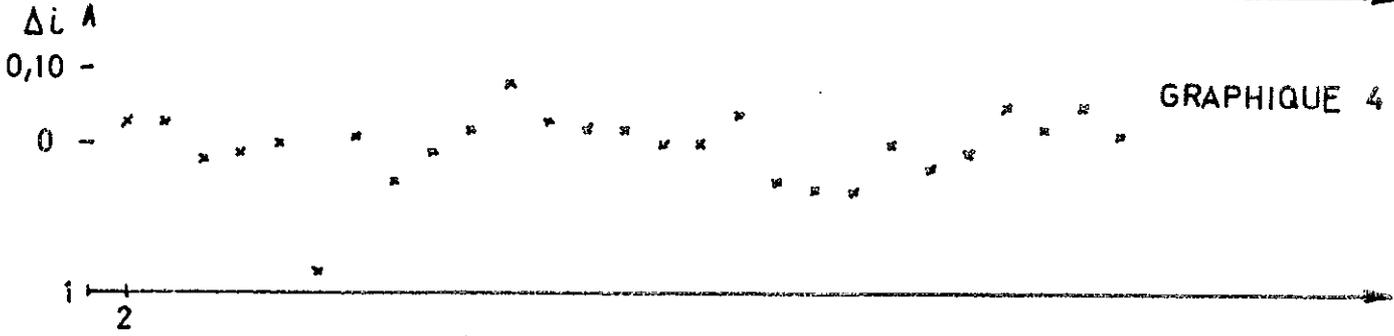
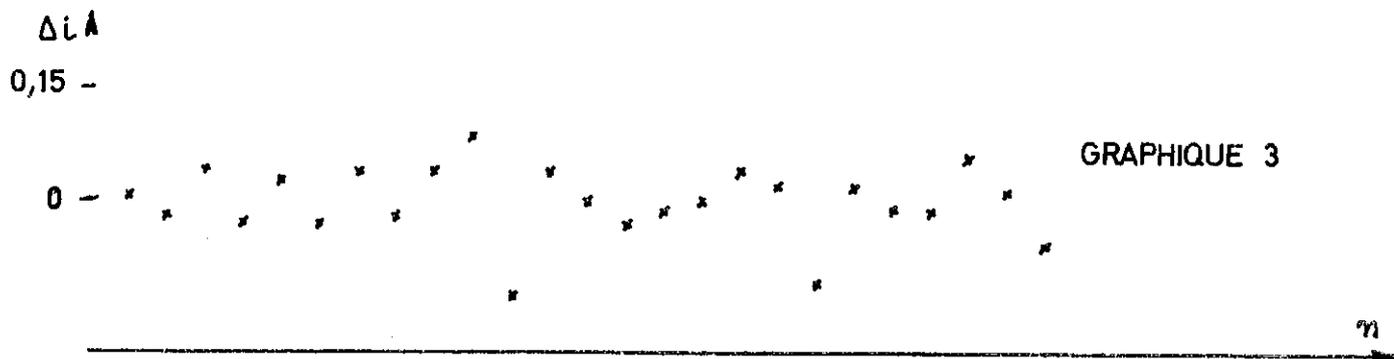
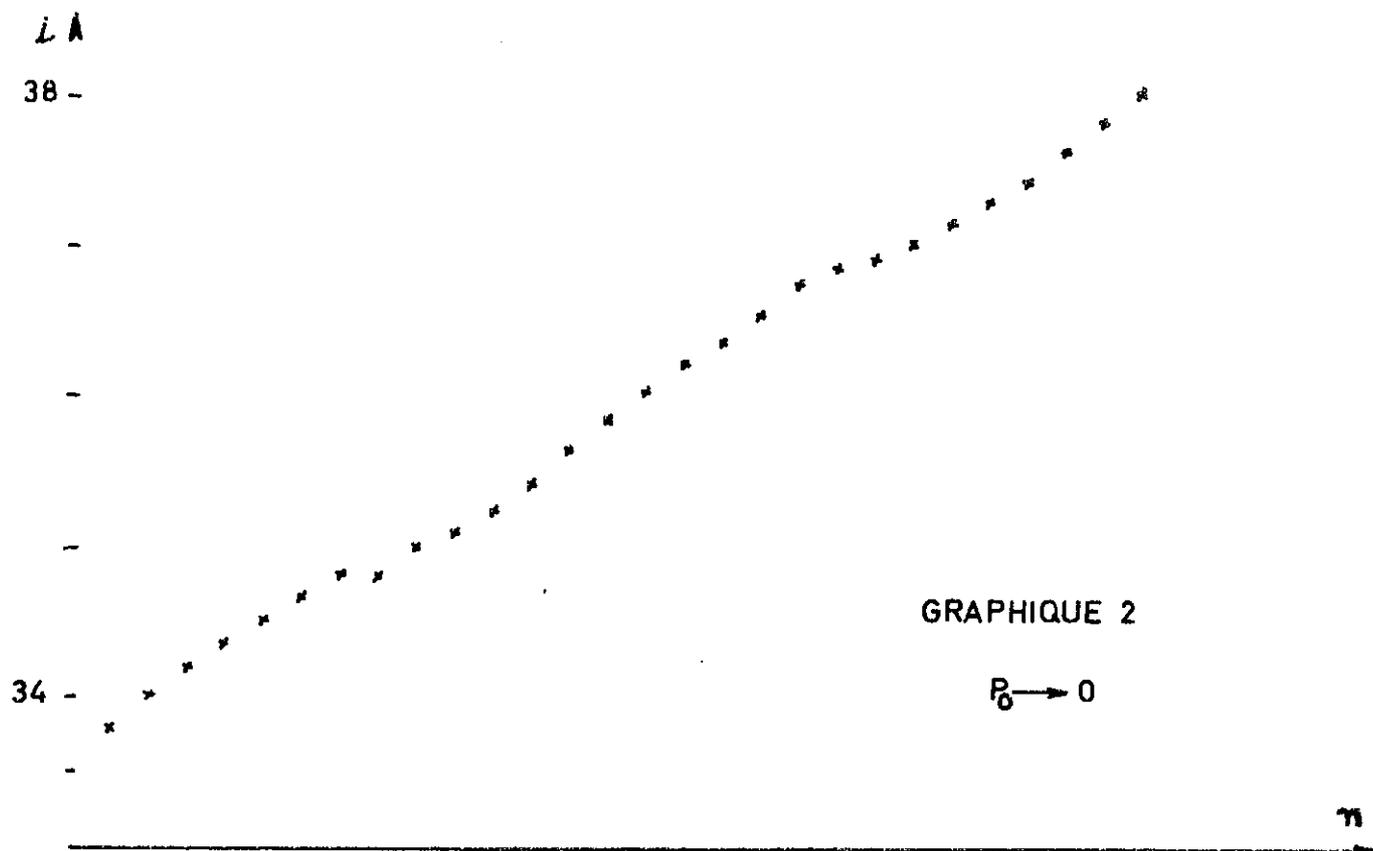
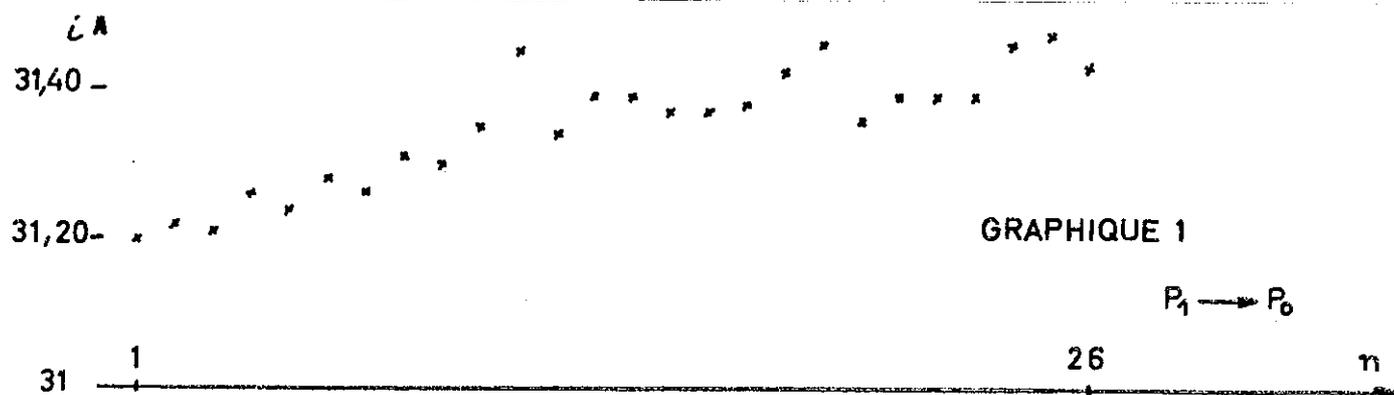
$$i_L(j) = i_m(j-1) + \sum_{i=2}^k i_m(i) - i_m(i-1) / k-1$$

Dans le cas de la fuite ($P_1 \rightarrow P_0$) le terme correcteur est de 310^{-4} franges et nous pouvons considérer la fuite comme linéaire.

Nous constatons dans les deux cas que l'erreur commise due à la non linéarité est inférieure à 0,003 frange. L'erreur commise sur un intervalle entre ordre est inférieure à 0,006 frange, et la défiance relative à un intervalle entre ordre peut donc s'écrire :

$$F = \frac{N}{0,006} = \frac{1000 N}{6}$$

N étant le nombre de franges de l'intervalle entre ordre. Au cours de nos enregistrements N a varié de 15 à 35, la défiance relative à un intervalle entre ordre était donc toujours supérieure à 2500.





III - 5 Intérêt de la fuite va-et-vient.

Nous résumons ici les raisons qui ont motivé un tel choix :

- simplicité et souplesse dans l'utilisation, sa réalisation ne posant aucune difficulté (voir annexe 1 : réalisation du système de balayage et d'étalonnage)
- possibilité de s'affranchir de l'obligation de balayer les intervalles entre ordre et d'augmenter ainsi (considérablement) les données utiles stockables lorsque l'on utilise l'enregistrement digital. En effet, les intervalles entre ordre doivent être supérieurs ou égaux au plus grand déplacement isotopique existant dans la source pour la raie étudiée, pour que les corrections dues à l'enrichissement insuffisant de l'isotope soient possibles. L'expérience montre qu'en enregistrant un intervalle entre ordre dans chaque sens de balayage en début et en fin de manipulation, l'intervalle reste stable et peut-être considéré comme constant durant l'enregistrement. Nous pouvons balayer ainsi uniquement la structure, ce qui diminue le nombre d'informations à enregistrer et le temps total nécessaire pour mesurer les déplacements isotopiques d'une transition. Or, dans le cas du gadolinium, nous ne possédions que 5 mg de l'isotope 152.
- stabilité de l'ensemble Michelson Fabry-Perot. Le fait de travailler à pression variant lentement autour d'une valeur moyenne constante est un facteur de stabilité très important.

IV - DETERMINATION DE L'AXE DES RAIES.

Nous supposons au cours de ce paragraphe que le profil émis et la fonction d'appareil sont symétriques. Cependant le problème se présente différemment suivant que l'isotope possède un spin ou non. Dans le premier cas la raie enregistrée possède une structure hyperfine et il est nécessaire de déterminer son centre de gravité tandis que dans le second cas, il suffit de déterminer l'axe de symétrie de la raie enregistrée.

IV - 1 Isotopes pairs-pairs.

Les erreurs sur la détermination des axes peuvent dans ces conditions être dues à la vitesse de balayage, à la linéarité du balayage, aux pointés enfin.

1 - 1 Vitesse de balayage.

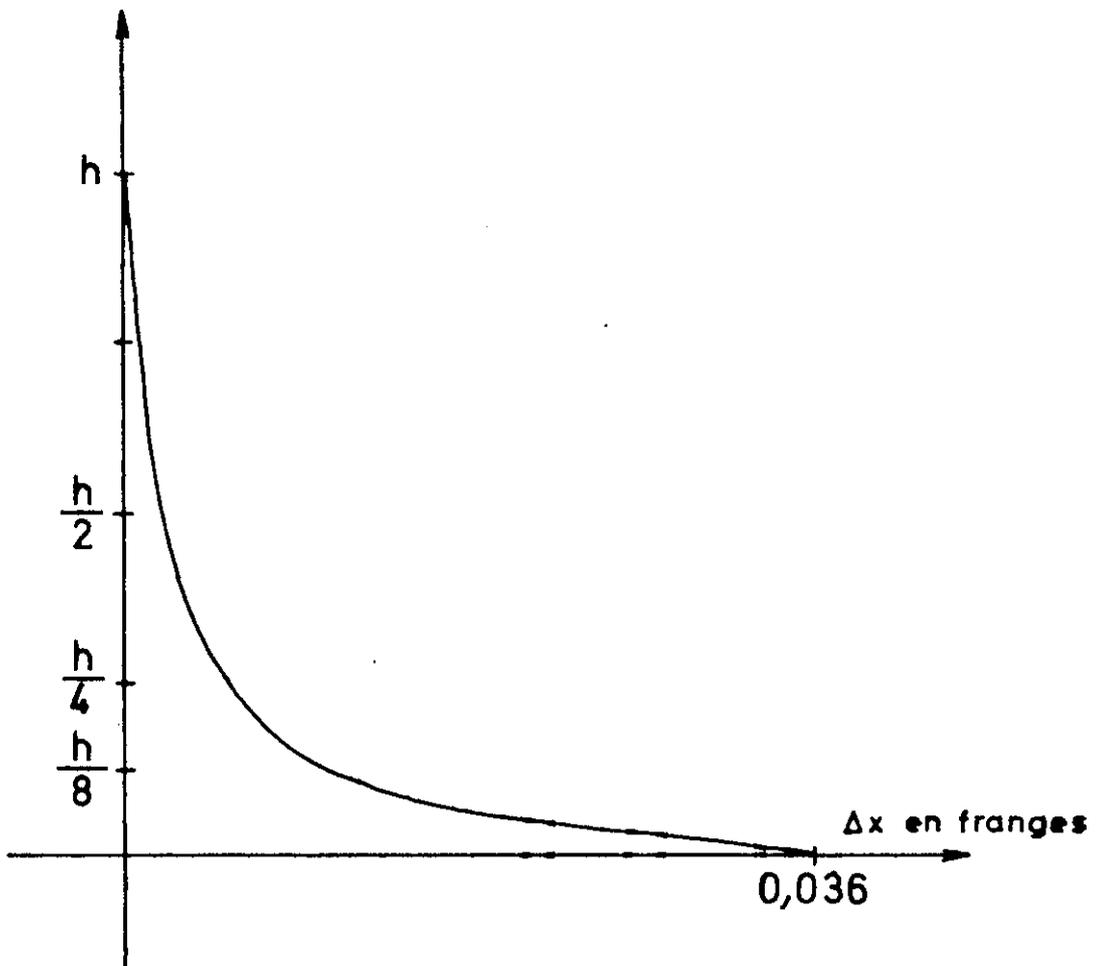


TABLEAU 1

L'ensemble enregistreur possède une constante de temps qui varie de 1 à 3 s. Pour que la vitesse de balayage n'introduise pas de dissymétrie on admet que le temps de balayage de la largeur à mi-hauteur doit être supérieur à 20 fois la constante de temps. Dans la plupart de nos enregistrements la constante de temps est de 3 s, la largeur à mi-hauteur de l'ordre de 30 mK cela signifie que la vitesse d'exploration doit être inférieure à 30 mK par minute qui correspond à deux franges de Michelson.

1 - Influence de la non linéarité :

Nous pouvons en utilisant le Michelson de référence rendre l'erreur de repérage d'un point, due à la non linéarité de la fuite, inférieure à 0,003 franges. Cependant le défaut de linéarité influe aussi sur la détermination des axes.

Dans le cas de la fuite (1,8 - 0,8) atmosphères, la loi d'exploration est linéaire à 0,003 franges. Il en résulte une incertitude identique sur la détermination de l'axe, c'est à dire, $3 \cdot 10^{-3}$ franges.

Dans le cas de la fuite (0,8 - 0) atmosphères l'accroissement de l'interfrange est linéaire en fonction du temps. Il en résulte une dissymétrie que nous devons évaluer. Pour cela nous utilisons les résultats du graphique (2) et nous supposons que la largeur totale du profil enregistré est de 8 franges, tandis que la largeur à mi-hauteur est de 2 franges.

Le tableau (1) représente l'écart Δx exprimé en franges entre l'abscisse du sommet de la raie de hauteur h et l'abscisse des milieux des segments de même hauteur $\frac{H_i}{n}$. Ce tableau permet d'évaluer l'erreur systématique commise suivant le choix des seuils au-dessus desquels l'axe est déterminé. Comme au cours de nos enregistrements nous avons toujours fixé des seuils supérieurs à $H/4$, Δx était toujours inférieur à 0,005 franges. De plus si les raies correspondant aux deux isotopes ont pratiquement le même profil l'erreur systématique commise est la même et elle s'élimine dans la mesure du déplacement isotopique. L'incertitude sur l'axe est alors la même que pour l'autre fuite, c'est à dire, 0,003 franges.

Si nous considérons maintenant l'erreur sur la détermination de l'axe et son repérage due à la linéarité, nous obtenons une erreur absolue de 0,006 franges, c'est à dire, 0,1 mK.

1 - 3 Erreurs de mesure :

Lors de notre étude du déplacement isotopique dans le spectre de l'uranium et du néodyme, nous avons utilisé l'enregistrement des données sur papier par l'intermédiaire d'un potentiomètre électronique MECI et déterminé les axes des raies à la règle. La vitesse de déroulement du papier est de l'ordre du mK par mm, ce qui correspond à l'exploration d'un intervalle de 1000 mK en une heure. Dans ces conditions en admettant que l'on fasse les pointés au 1/10 de mm l'erreur sur la détermination des axes est voisine de 0,2 mK. Cette erreur est plus importante que l'erreur due aux défauts de linéarité, et comme il n'est guère possible de diminuer la vitesse de fuite nous devons soit augmenter la vitesse de déroulement du papier, solution possible, soit utiliser un voltmètre digital qui transmettant les données sur une bande papier permet l'utilisation d'un ordinateur pour effectuer le dépouillement des spectres. C'est pourquoi après avoir indiqué les modifications apportés aux résultats précédents dans le cas des isotopes possédant un spin et avant d'étudier l'influence du rapport signal/bruit nous décrirons l'emploi des techniques digitales.

2 Isotopes possédant un spin :

Nous devons alors déterminer le centre de gravité de la structure. Les conclusions du paragraphe 1.1. restent valables, mais en ce qui concerne l'influence de la linéarité sur la détermination du centre de gravité, il n'est pas possible d'utiliser directement les enregistrements effectués avec la fuite ($P_1 \rightarrow 0$) car l'erreur systématique dépend de la structure hyperfine, varie donc d'un isotope à l'autre et est difficilement évaluable. Il est donc nécessaire de reconstituer la courbe avant de déterminer son centre de gravité et ceci pourra être fait en utilisant l'enregistrement digital. Dans le cas de l'autre fuite le calcul est réalisable directement par la calculatrice et permet là aussi d'améliorer la précision tout en évitant le travail fastidieux de la détermination du centre de gravité par planimétrie.

3 - Utilisation des techniques digitales pour l'enregistrement et l'exploitation des données :

3 - 1 Principe :

Le voltmètre digital est comme le potentiomètre électronique MECI à forte impédance d'entrée. Son utilisation est donc identique et pour effectuer nos mesures, nous avons branché en parallèle au MECI le voltmètre à la sortie des adaptateurs d'impédance. La constante de temps du voltmètre ($25 \mu s$) étant très inférieure à celle des adaptateurs d'impédance, nous enregistrons par l'intermédiaire d'un encodeur et d'une perforatrice une courbe analogue à celle tracée sur MECI, l'intervalle de temps entre chaque point relevé étant constant et déterminé à partir de la base de temps incorporé au "scanner". Nous utilisons d'ailleurs cette base de temps pour commander le changeur de cathode et la réalisation pratique de l'ensemble est décrite dans l'annexe II.

3 - 2 Exploitation des données :

Les programmes de lecture et d'exploitation ont été écrits par C. Bauche et P. Luc. Nous donnons le principe de ces programmes en annexe III.

La détermination des interfranges se fait par calcul des centres de gravité de portions de frange au dessus d'un seuil donné. Nous avons recherché le nombre de points minimum nécessaire à l'enregistrement et la précision avec laquelle l'interfrange est connu. Pour cela à partir d'un enregistrement à 120 points par frange nous avons fixé différents seuils de calcul et pour chacun de ces seuils calculé le centre de gravité en utilisant tous les points, un point sur deux, un point sur quatre, un point sur six. Ce sont ces résultats que donne le tableau (II), résultats qui permettent de déduire :

- qu'en dessus de vingt points par frange le calcul n'a plus de signification,
- que l'interfrange est défini à mieux de 10^{-3} près ce qui nous a permis d'ailleurs d'évaluer les défauts de linéarité au paragraphe III.

La détermination des axes des raies se fait par deux méthodes différentes suivant que l'enregistrement se fait en cathode unique ou séparée.

TABLEAU II

Axe	Seuils	120 Points	60 Points	30 Points	20 Points
28	800	99,5854	99,5955	99,5332	89,2903
	900	99,5799	99,5846	99,6061	88,9806
	1 000	99,5266	99,5262	99,5370	88,2255
36	800	107,3876	107,3932	107,3960	98,9819
	900	107,3867	107,4034	107,4295	98,9266
	1 000	107,4344	107,3604	107,3573	98,9848
48	800	110,3493	110,3522	110,3765	110,8146
	900	110,3827	110,3338	110,4219	110,7442
	1 000	110,4047	110,4138	110,4422	110,6790

Cependant, les résultats obtenus sont identiques et dans le cas du gadolinium nous avons pu obtenir pour deux séries de mesures où les sources et le Fabry Pérot étaient restés très stables un écart arithmétique maximum entre la valeur moyenne et les valeurs mesurées de 0,3 mK.

Or notre étude sur la linéarité nous laisse prévoir un écart arithmétique maximum voisin de 0,12 franges, c'est à dire 0,2 mK. Les écarts enregistrés sont donc du même ordre de grandeur que les défauts de linéarité. Dans le cas du néodyme, où toutes les mesures ont été faites avec le MECI seul, l'écart arithmétique maximum était de 1 mK pour le même nombre de mesures. Ceci montre l'intérêt de l'utilisation des techniques digitales, intérêt d'autant plus grand qu'il semble difficile d'améliorer les fuites et pour corriger les défauts de linéarité il sera nécessaire de faire appel à des méthodes de correction après enregistrement. Les deux exemples que nous avons cités sont les meilleurs, cependant, dans le cas du gadolinium sur les douze séries de mesures que nous avons effectuées l'erreur arithmétique moyenne a toujours été inférieure à 0,6 mK. Il nous semble difficile d'attribuer cet écart uniquement à l'incertitude due au rapport signal/bruit car nous devons tenir compte aussi des autres facteurs tels que : la fluctuation de la source, le dérèglement du Fabry-Pérot, facteurs que nous allons étudier maintenant.

VI - ERREURS DUES AUX SOURCES ET A LA FONCTION D'APPAREIL

Ben Mena dans sa thèse (14) a étudié l'ensemble de ces problèmes et nous insisterons seulement sur les points les plus importants concernant la mesure du déplacement isotopique. Nous distinguons d'ailleurs parmi ces erreurs celles purement aléatoires qui sont inévitables mais qui permettent des mesures statistiques et les erreurs systématiques qui peuvent être beaucoup plus importantes parce qu'il n'est pas toujours possible de les déceler.

VI - 1 Les erreurs aléatoires :

1 - 1 Variation de l'intensité des sources au cours du temps :

Bien que la cathode creuse soit relativement stable, il n'est pas possible d'éviter au cours d'enregistrement qui durent des heures de lentes variations de la

source. Ces erreurs peuvent introduire une erreur sur la détermination des axes parfois nettement décelable mais en général la variation est beaucoup plus faible et peut-être responsable d'une partie de l'écart signalé au paragraphe précédent. Cependant, il est possible de compenser ces variations en enregistrant le courant d'une cellule de référence qui reçoit une faible partie du flux lumineux issu du monochromateur. On peut alors avant d'exploiter l'enregistrement, corriger par le calcul les variations de la source, méthode qui sera utilisée dès que l'enregistrement sur bande magnétique sera réalisé, la capacité des bandes papiers ne permettant pas l'emploi de cette technique.

1 - 2. Déréglage de la fonction d'appareil :

Les dérégles aléatoires ne peuvent provenir que du Fabry-Pérot ou des déplacements de la bande passante du monochromateur. Pour le Fabry-Pérot l'utilisation de cales en invar permet d'obtenir une grande stabilité et les variations ne sont pas décelables. L'utilisation de la double cathode et de l'enregistrement simultané permet d'ailleurs dans le cas des Isotopes pairs et des faibles déplacements isotopiques de réduire encore cette erreur. Les erreurs causées par le déplacement de la bande passante du monochromateur ne sont à craindre que lorsque le déplacement isotopique est grand et le spectre trop riche pour qu'il ne soit pas possible de travailler avec une fonction d'appareil du type trapèze nettement plus large que la structure à étudier. C'est dans le but d'éliminer ces erreurs que nous effectuons un grand nombre de mesures, puisque nous pouvons appliquer alors à nos résultats les théories statistiques.

VI - 2 Les erreurs systématiques :

2 - 1 Erreurs dues aux conditions d'excitation des sources :

Elles sont dues soit à l'élargissement par pression, soit à l'absorption. Ben Mena a montré qu'aux courants de cathode utilisés le premier phénomène n'intervenait pas. Quant au second il est parfois très important et nous en verrons un exemple précis dans le cas de l'Ytterbium.

2 - 2 Erreurs systématiques dues à l'utilisation de deux sources séparées :

Le fait d'utiliser deux cathodes permet de mesurer des déplacements isotopiques très faibles, mais il est nécessaire de s'assurer que l'alignement optique des deux faisceaux est parfaitement réalisé. De plus les inhomogénéités

de brillance des sources peuvent introduire des déplacements arbitraires. Cependant, on peut facilement mesurer l'erreur introduite en enregistrant sur les deux voies, soit une raie du néon, soit le même isotope. La figure (3) montre le résultat obtenu avec l'enregistrement d'une raie du néon. Les contrôles que nous avons fait montrent qu'il est possible de réaliser la coïncidence expérimentale aux erreurs de pointé près, c'est à dire, à $\pm 0,2$ mK. Cela signifie que nous pouvons considérer que les erreurs introduites par le choix d'une telle méthode sont inférieures aux erreurs d'expérience en l'état actuel.

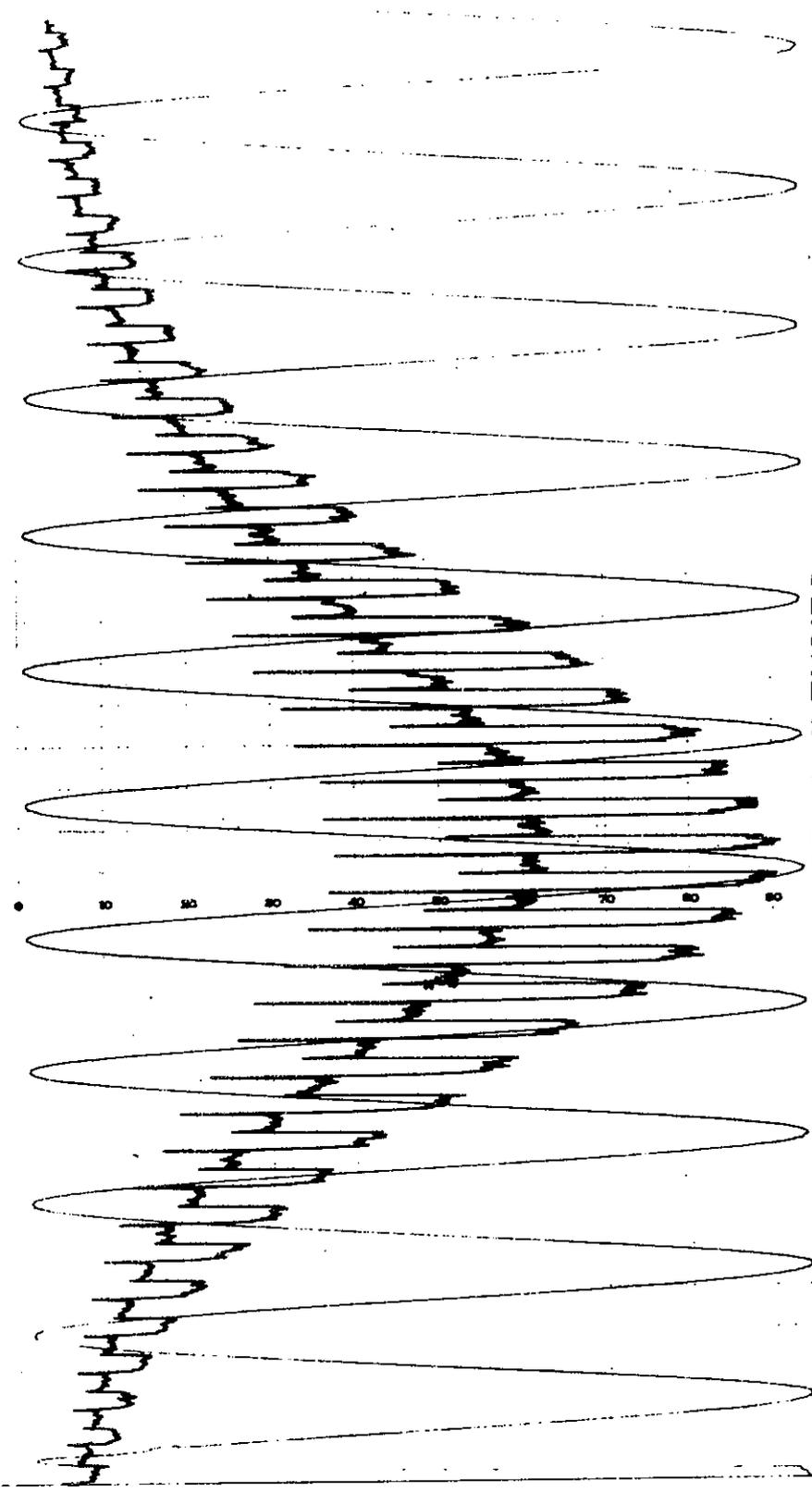
2 - 3 Erreurs dues à l'enrichissement isotopique insuffisant :

Nous utilisons en général des isotopes hautement enrichis, c'est à dire au moins à 90 %. Cependant, ceci est encore insuffisant pour que la présence des autres isotopes n'introduise pas d'erreur systématique. C'est pourquoi nous sommes obligés pour chaque transition de choisir les intervalles entre ordres supérieurs à la structure totale existant dans le mélange. Nous pouvons alors en donnant le profil enregistré, grâce à un programme mis au point par Luc calculer les corrections à apporter au résultat brut.

VII - LIMITE D'ERREUR.

Au cours de ce chapitre nous avons décrit les différentes techniques expérimentales que nous avons employées et les divers types d'erreurs possibles. Avec notre montage, nous sommes actuellement capable de mesurer des déplacements isotopiques allant de quelques mK à quelques centaines de mK avec une erreur quadratique moyenne de l'ordre de 0,08 mK dans les meilleurs cas, de 0,15 mK en général. Il n'est pas possible actuellement d'atteindre les limites imposées par le rapport signal/bruit, les erreurs dues aux défauts de linéarité étant la partie essentielle de l'incertitude. Cependant l'utilisation systématique des techniques digitales avec utilisation de bandes magnétiques devrait nous permettre d'améliorer la correction des défauts de linéarité, d'éliminer les fluctuations de la source et d'obtenir ainsi encore une meilleure précision.

CLICHE II 1. NEON



4341

CHAPITRE III

RESULTATS ET INTERPRETATION.

I - INTRODUCTION.

Nous présentons ici les résultats obtenus au cours de l'étude du déplacement isotopique relatif dans les spectres de l'uranium, du néodyme, du gadolinium et de l'ytterbium. Le choix de ces éléments est justifié pour des raisons variées. Ainsi l'étude de l'uranium a été menée avec J. M. Gagné (17) pour tester l'utilisation de l'interféromètre de Michelson, l'uranium offrant de grands déplacements isotopiques tandis que le choix du néodyme s'imposait pour vérifier l'influence de l'effet spécifique de masse dans le cas des terres rares. Par contre nous avons mesuré d'une manière très précise les déplacements isotopiques de la raie

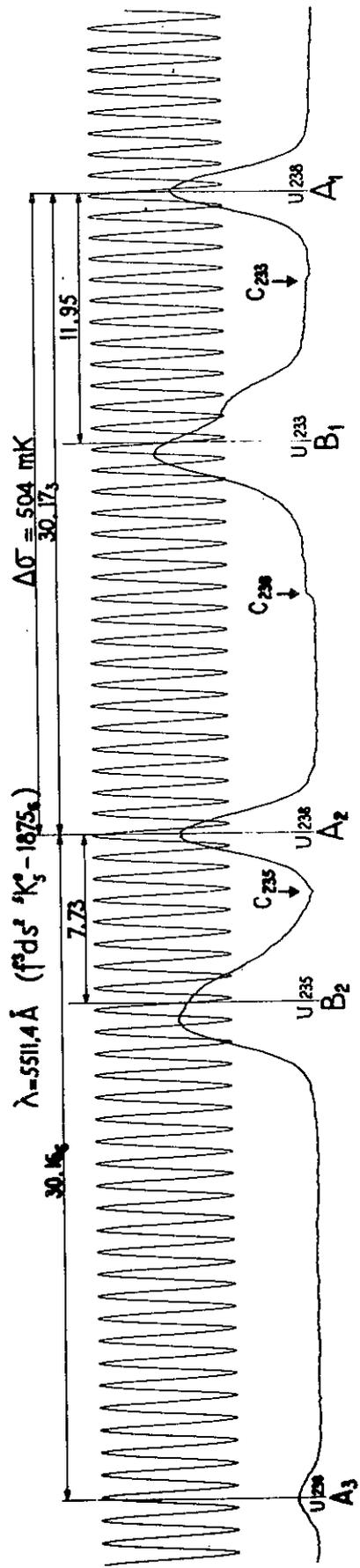
$\lambda = 3988 \text{ \AA}$ de l'ytterbium parce que les résultats de Chaiko mettaient en cause la théorie même de l'effet isotopique. Enfin l'étude du gadolinium vient compléter les études menées au laboratoire par Duong et Jackson (18) sur le baryum ($Z = 56$), par Champeau sur le cérium (19) ($Z = 58$) sur le néodyme ($Z = 60$), en Allemagne par Hansen (20) sur le Samarium ($Z = 62$) et au laboratoire Zeeman d'Amsterdam par Decker (21) sur le dysprosium ($Z = 64$). Nous présenterons successivement les mesures effectuées sur ces différents éléments et nous donnerons la valeur des déplacements isotopiques relatifs et des constantes quadriisotopiques pour chaque élément. Enfin dans un dernier paragraphe nous essaierons de dégager les divers renseignements que l'on peut obtenir de ces mesures soit sur l'effet spécifique de masse, soit sur les coefficients de déformation.

II - L'URANIUM.

II.1 - Les isotopes :

Nous avons pu utiliser au cours de notre étude les isotopes 238, 235 et 233, ces isotopes nous ayant été fournis par le C. E. A.

L'isotope 238 est constitué par un échantillon d'uranium naturel ce qui nous



CLICHE II 1

permet d'utiliser un pot cathodique en uranium.

L'isotope 235 nous a été fourni sous forme d'une pastille en métal que nous avons pu introduire au fond d'un pot cathodique en aluminium.

Enfin l'isotope 233 se présentait sous forme d'oxyde et nous avons alors recouvert les parois du pot cathodique.

Les trois sources étaient donc différentes dans leur constitution et nous avons été obligés de faire nos réglages avec la cathode en U 233 plus difficile à exciter et fonctionnant sous une pression de gaz rare (néon ou argon) plus faible que les deux autres.

II-2 - Choix des raies à étudier :

Pour choisir les raies à mesurer, nous possédons les résultats de Smith (1952) qui indiquent que le D I R U(233 - 238) varie de 1,34 à 3,35 pour 12 raies, ceux de Richards (1960) qui trouvait encore une variation de 1,33 à 1,55 et enfin la mesure systématique du déplacement U(235 - 238) faite par Diringer (22) en même temps que la classification.

Nous avons pu ainsi choisir 12 raies à déplacement isotopique négatif correspondant à des transitions du type $(f^{13} ds^2 - f^3 dsp)$ et 7 raies à déplacement isotopique positif correspondant à des transitions de $f^3 ds^2 - f^3 s^2 p$ ou $f^3 ds^2 - f^3 dsp$.

II-3 - Technique expérimentale :

C'est pour effectuer ces mesures que nous avons pour la première fois utilisé un étalon de Michelson de référence (17), l'interféromètre étant indépendant de l'enceinte du Fabry-Pérot. Les déplacements isotopiques à mesurer étant très grands, les raies présentant en général une structure hyperfine importante pour l'uranium 233 et 235 nous avons utilisé de grands intervalles entre ordres et la technique de substitution d'une cathode à l'autre un intervalle entre ordre sur deux. Pour contrôler le parfait alignement des trois sources, nous avons utilisé, d'une part le contrôle avec raie du néon, d'autre part le fait que l'uranium 235 contient un peu moins de 10 % d'uranium 238. Le cliché II(1) illustre la technique expérimentale, le passage d'une source à l'autre est marqué par les points C_{233} , C_{238} , C_{235} . Le nombre de franges mesurées correspondant à l'ordre $A_1 A_2$ est 30,17 et pour l'ordre $A_2 A_3$ 30,16. Les deux ordres sont donc égaux aux erreurs de mesure près et comme le pic A_3 appartient à la cathode en U 235, ceci montre qu'il n'y a pas de déplacement arbitraire. Le dépouil-

lement des enregistrements a été fait par planimétrie d'où l'incertitude de quelques pour cents sur chaque intervalle.

II-4 - Les résultats :

Le tableau II.1 donne les résultats pour 12 raies à déplacement isotopique négatif, le tableau II.2 pour 7 raies à déplacement positif.
 Le déplacement isotopique relatif $U(233-235)/U(235-238)$ est donc compris pour ces transitions entre 1,52 et 1,58. Les variations possibles du D I R sont donc très faibles mais cela ne signifie pas que le déplacement spécifique de masse soit négligeable. En effet, supposons que nous prenions 25 mK d'effet spécifique pour la raie $\lambda = 5063$ et cela pour un saut de 1 neutron, le D I R deviendrait 1,584 au lieu de 1,569, c'est à dire, que la variation ne serait que de 1 % alors qu'il y aurait 125 mK d'effet spécifique pour $U(233-238)$ et 75 pour $U(235-238)$. La précision expérimentale sur le déplacement isotopique de l'uranium est donc insuffisante mais il n'est guère possible d'espérer mieux étant donné l'importance des structures hyperfines et la richesse du spectre, donc la possibilité d'erreurs systématiques.

λ (A)	DEPLACEMENT (10^{-3} cm^{-1})		CLASSIFICATION	D. I. R.
	(238-35)	(238-33)		
5971,50	170 \pm 1,3	263 \pm 1,3	$f^3_{ds^2} 5K_5^\circ - 1736_6$)	1,54 \pm 0,015
5915,40	281 \pm 3	441 \pm 4	$f^3_{ds^2} 5L_6^\circ - 1690_7$)	1,56 \pm 0,03
5557,87	144 \pm 3	228 \pm 2	$f^3_{ds^2} 5K_5^\circ - 1860_7$)	1,58 \pm 0,05
5496,43	211 \pm 2	330 \pm 4,6	$f^3_{ds^2} 5K_6^\circ - 2246_6$)	1,56 \pm 0,03
5329,27	423 \pm 4	664 \pm 2	$f^3_{ds^2} 5I_4^\circ - 2321_5$) f^3_{dsp}	1,57 \pm 0,02
5271,99	334 \pm 2	517 \pm 3	$f^3_{ds^2} 5I_8^\circ - 2660_7$)	1,55 \pm 0,015
5063,77	289 \pm 2	453 \pm 2	$f^3_{ds^2} 5L_7^\circ - 2354_7$)	1,57 \pm 0,03
5027,38	410 \pm 4	634 \pm 6	$f^3_{ds^2} 5L_6^\circ - 1988_7$)	1,55 \pm 0,03
5011,42	365 \pm 4	564 \pm 5	$f^3_{ds^2} 5K_5^\circ - 2056_4$)	1,54 \pm 0,03
4476,46	332 \pm 2	515 \pm 2	$f^3_{ds^2} 5K_6^\circ - 2660_7$)	1,55 \pm 0,015
4383,27	321 \pm 2	495 \pm 2	$f^3_{ds^2} 5L_7^\circ - 2660_7$)	1,54 \pm 0,015
4313,13	512 \pm 4	783 \pm 7	$f^3_{ds^2} 5L_7^\circ - 2697_7$)	1,53 \pm 0,03
4275,69	313 \pm 4	490 \pm 3	$f^3_{ds^2} 5K_6^\circ - 2796_7$)	1,56 \pm 0,03

Tableau II - 1

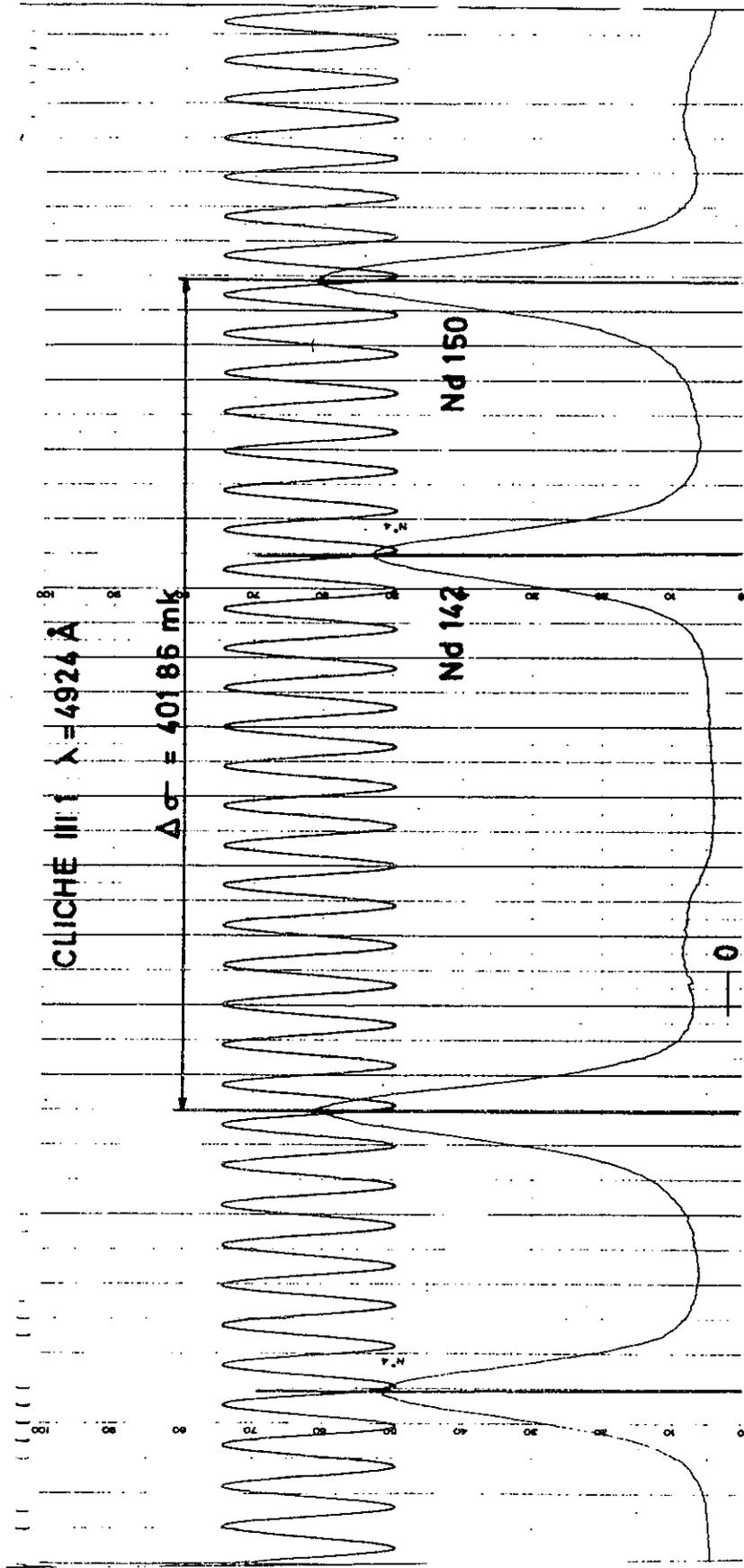
λ (A°)	DEPLACEMENT (10 ⁻³ cm ⁻¹)		CLASSIFICATION	D. I. R.
	(238-35)	(238-39)		
5511,49	129 ⁺¹ ₋₁	201 ⁺²	f ³ ds ² 5K ₅ ^o - 1875 ₆) f ³ s ² p	1,55 ^{+0,02}
4453,20	132 ⁺²	205 ⁺⁴	f ³ ds ² 5K ₅ ^o - 2306 ₆)	1,55 ^{+0,05}
5780,59	271 ⁺²	416 ⁺²	f ³ d ² s 7M ₆ ^o - 2354 ₇)	1,53 ^{+0,02}
5406,87	205 ⁺²	319 ⁺²	f ³ d ² s 7M ₇ ^o - 2660 ₇)	1,55 ^{+0,02}
5270,63	288 ⁺⁴	441 ⁺²	f ³ d ² s 7M ₇ ^o - 2708 ₈) f ³ dsp	1,52 ^{+0,03}
5164,14	176 ⁺³	267 ⁺⁴	f ³ d ² s 7M ₇ ^o - 2747 ₈)	1,52 ^{+0,04}
4910,33	247 ⁺⁴	380 ⁺²	f ³ d ² s 7M ₆ ^o - 2660 ₇)	1,54 ^{+0,03}

Tableau II - 2

III - LE NEODYME

III - 1 Caractéristiques et intérêt du néodyme.

Le néodyme de numéro atomique $Z = 60$ possède 7 isotopes naturels 5 pairs, les néodymes 142, 144, 146, 148 et 150 et deux impairs, les néodymes 143, 145. Comme le samarium ($Z = 62$) il possède un isotope ayant un nombre de neutrons magiques $N = 82$ (Nd 142) et comme dans le samarium on peut observer un saut dans le déplacement isotopique lorsque l'on passe de l'isotope possédant 88 neutrons (Nd 148) à l'isotope possédant 90 neutrons (Nd 150). Cette analogie justifiait à la suite des résultats de Striganov et ses collaborateurs sur le samarium (10) mettant en évidence la variation importante du D. I. R., la détermination précise des déplacements isotopiques pour quelques transitions de néodyme. Nos premiers résultats (23) ayant permis de confirmer la suggestion de King (11) d'interpréter cette variation du D. I. R. par un effet spécifique de masse non négligeable, nous avons poursuivi notre étude afin de pouvoir confronter nos résultats avec ceux obtenus par voie nucléaire d'une part,



essayer d'évaluer l'effet spécifique d'autre part. Au cours de ce paragraphe nous ne donnerons que les résultats obtenus et les grandeurs qui en dérivent immédiatement, les tentatives d'interprétation étant faites au paragraphe V. III - 2 Les isotopes et les techniques expérimentales.

Nous avons pu utiliser pour effectuer nos mesures des isotopes enrichis et le tableau III. 1 permet de comparer la composition de ces isotopes à la composition du néodyme naturel que les auteurs précédents (24, 25) avaient à leur disposition.

Tableau III. 1

Nd	142	143	144	145	146	148	150
142	93,2	2,83	2,92	0,39	0,44	0,10	0,07
143	6,1	75,2	15,1	1,9	1,4	0,2	0
144	0,56	0,67	93,3	0,8	0,67	0,05	0,05
145	1,33	0,95	3,03	90,06	4,05	0,38	0
146	0,5	0,44	1,47	0,97	96,19	0,43	0,1
148	1	0,59	1,38	0,77	2,28	92,93	1,06
150	0,69	0,37	0,89	0,45	1,03	0,94	95,65
Naturel	27,13	12,20	23,87	8,30	17,18	5,72	5,60

Pour effectuer nos enregistrements, nous avons utilisé la méthode de l'isotope de référence (paragraphe II.) en choisissant pour chaque transition nos intervalles de façon à éliminer les erreurs dues aux autres isotopes présents. (Cliché III. 1)

III - 3 Les résultats :

Le tableau III. 2 donne les résultats bruts pour 12 raies, 8 appartenant au spectre I, 4 au spectre II. Sur le même tableau sont indiquées les valeurs de trois D I R :

Spectre	λ	(142 - 150)	(142 - 148)	(146 - 150)	(144 - 150)	r_1	r_2	r_3
I	5729	90,6 \pm 0,5	56,60 \pm 0,8	55,1 \pm 0,5	72,3 \pm 0,5	1,60 \pm 0,02	1,31 \pm 0,02	1,85 \pm 0,1
I	5675	105 \pm 1,5	65,1 \pm 1	63,9 \pm 1	83,8 \pm 0,5	1,61 \pm 0,02	1,30 \pm 0,02	1,83 \pm 0,2
I	5620	101 \pm 1,5	63 \pm 1	61,40 \pm 0,5	79,9 \pm 0,5	1,60 \pm 0,02	1,30 \pm 0,02	1,80 \pm 0,1
I	5525	-343 \pm 1	-232 \pm 1	-190 \pm 1	-267 \pm 1	1,48 \pm 0,01	1,41 \pm 0,02	1,45 \pm 0,03
I	5291	-320,6 \pm 0,25	-216,6 \pm 0,7	-178,8 \pm 0,25	-247,5 \pm 0,25	1,48 \pm 0,008	1,384 \pm 0,003	1,42 \pm 0,01
I	5270	-318 \pm 2	-215 \pm 1,5	-180,4 \pm 1,5	-247,9 \pm 1,5	1,48 \pm 0,01	1,37 \pm 0,02	1,46 \pm 0,04
I	4924	-133,9 \pm 0,4	-92,9 \pm 0,3	-72,7 \pm 0,3	-102,7 \pm 0,3	1,441 \pm 0,006	1,411 \pm 0,007	1,31 \pm 0,02
I	4688	-440,4 \pm 3	-296,8 \pm 3	-248 \pm 2	-340,9 \pm 3	1,497 \pm 0,01	1,37 \pm 0,02	1,44 \pm 0,015
II	5319	177 \pm 0,6	116,6 \pm 0,5	102,1 \pm 0,5	138 \pm 1	1,518 \pm 0,008	1,351 \pm 0,01	1,55 \pm 0,04
II	5293	201,1 \pm 1	128,2 \pm 1	118,9 \pm 1	158,6 \pm 1	1,57 \pm 0,01	1,33 \pm 0,015	1,71 \pm 0,08
II	5273	231,7 \pm 1	153,1 \pm 0,5	133 \pm 1	180 \pm 1	1,513 \pm 0,008	1,35 \pm 0,01	1,52 \pm 0,02
II	4060	-202,6 \pm 0,5	139,5 \pm 0,5	-111,8 \pm 1	-156 \pm 0,5	1,453 \pm 0,008	1,39 \pm 0,01	1,39 \pm 0,02

Tableau III - 2. Déplacement isotopique relatif.

$r_1 = \Delta (142-150) / \Delta (142-148)$ et $r_2 = \Delta (144-150) / \Delta (146-150)$ se déduisent directement des mesures tandis que :

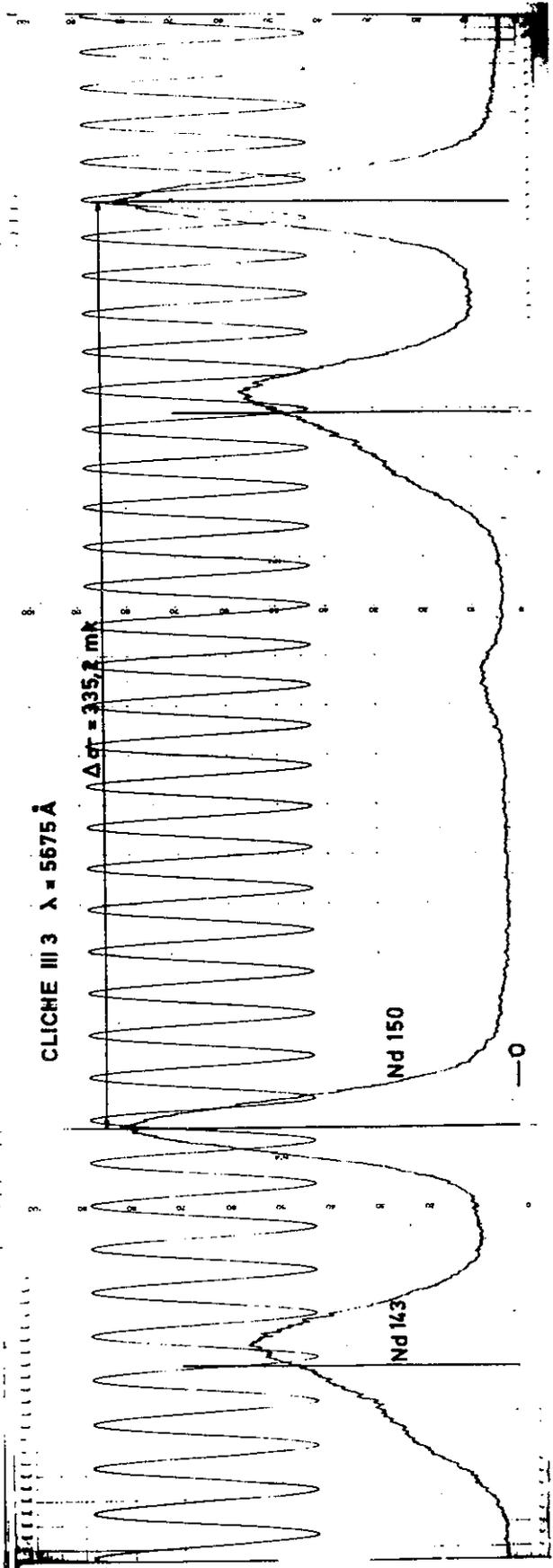
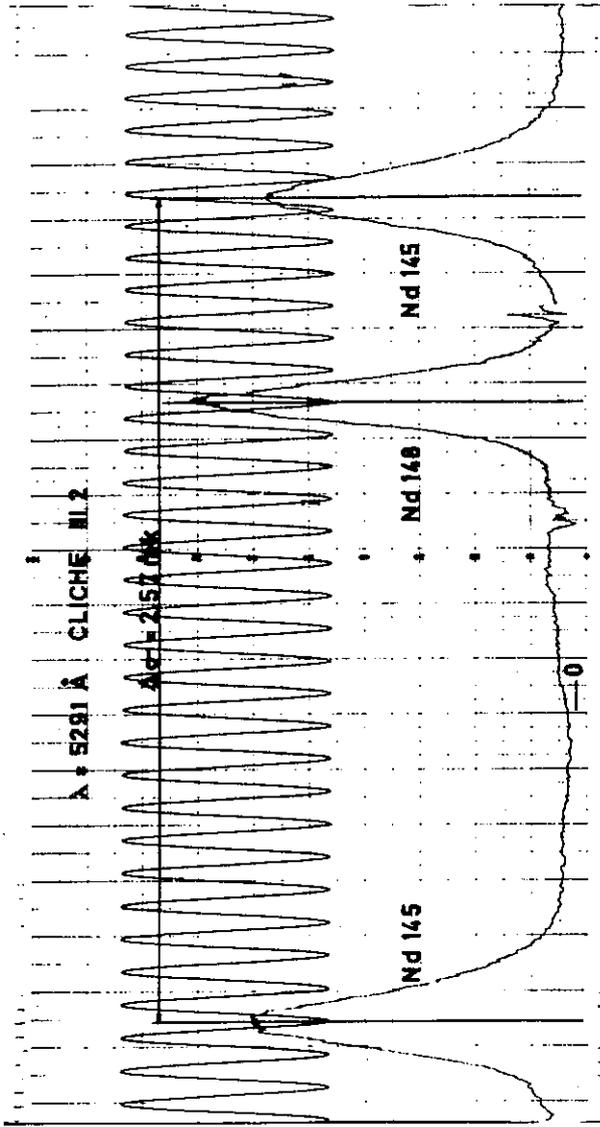
$r_3 = \Delta (148-150) / \Delta (142-144)$ doit être calculé. Nous remarquerons que la variation de r_1 et r_3 pour lesquels l'influence de la déformation est très différente pour les deux intervalles est beaucoup plus importante que pour r_2 où la déformation est équivalente dans les deux termes, ce qui montre la difficulté de mettre en évidence la variation du D I R dans les zones de déformation régulière. De ce tableau nous déduisons aussi que le D I R varie aussi bien pour les raies à déplacement négatif ($\lambda = 4924 \text{ \AA}$ et $\lambda = 5291 \text{ \AA}$) que les raies à déplacement positif ($\lambda = 5293 \text{ \AA}$ et $\lambda = 5273 \text{ \AA}$) et que toute moyenne à l'intérieur d'un groupe de raies n'a aucune signification.

Tableau III. 3

λ (Å)	$\Delta (142-144)$ mK °°	$\Delta (144-146)$ mK	$\Delta (146-148)$ mK	$\Delta (146-150)$ mK	$\Delta (143-145)$ mK
5675	$20,4 \pm 0,4$	$19,0 \pm 0,3$	$22,2 \pm 0,5$	$39 \pm 0,5$	$18,10 \pm 0,5 \text{ mK}$
5293	$+ 41,6 \pm 0,6$	$+ 38,4 \pm 0,6$	$+ 45,3 \pm 0,7$	$72,1 \pm 0,6$	
5291	$- 74,1 \pm 0,5$	$- 69,7 \pm 0,5$	$- 75,7 \pm 0,5$	$-105 \pm 0,6$	
4924	$- 32,3 \pm 0,4$	$- 31,7 \pm 0,4$	$-32,63 \pm 0,5$	$- 41,9 \pm 0,4$	$- 30,3 \pm 0,5 \text{ mK}$
4688	$-100,9 \pm 1$	$- 94 \pm 1$	$-104,8 \pm 2$	$-104,8 \pm 1$	
5319	$38 \pm 0,8$	$35,0 \pm 0,8$	$40,5 \pm 0,9$	$59,5 \pm 1$	
5273	$50,8 \pm 0,6$	$46,2 \pm 0,7$	$53,5 \pm 0,6$	$77,7 \pm 0,3$	
4061	$- 47,5 \pm 0,6$	$- 45,4 \pm 0,7$	$-49,00 \pm 0,6$	$- 65,31 \pm 0,5$	

.. mK = 10^{-3} cm^{-1}

Dans le tableau III. 3 sont donnés les intervalles déduits (effet de Bohr déduit) pour les huit raies que nous avons étudiées systématiquement en même temps que la valeur de l'intervalle Nd (143-145) pour les raies $\lambda = 5675 \text{ \AA}$ et 4924 \AA .



Nous avons choisi ces deux transitions pour mesurer la position des isotopes impairs, car leur structure hyperfine est faible, non résolue et se prête bien d'une part à la planimétrie, d'autre part aux corrections dues à la présence non négligeable des isotopes pairs. Les clichés III(2) et III(3) sont deux exemples d'enregistrement effectués pour ces deux isotopes.

III - 4 Calcul des constantes quadriisotopiques :

Ces constantes ont été définies au paragraphe I. Le tableau III. 4 donne pour les huit raies les valeurs de 5 de ces constantes, 3 seulement étant indépendantes. Ces cinq constantes sont calculées comme suit :

$$I_1 = \frac{\Delta(148-150) - 0,947\Delta(144-146)}{\Delta(148-150) - 0,973\Delta(146-148)} \quad I_2 = \frac{\Delta(148-150) - 0,921\Delta(142-144)}{\Delta(148-150) - 0,973\Delta(146-148)}$$

$$I_3 = \frac{\Delta(144-150) - 1,44\Delta(142-146)}{\Delta(144-150) - 1,479\Delta(144-148)} \quad I_4 = \frac{\Delta(142-150) - 2,056\Delta(146-150)}{\Delta(142-150) - 1,352\Delta(144-150)}$$

$$I_5 = \frac{2\Delta(148-150) - 0,934\Delta(142-146)}{2\Delta(148-150) - 0,960\Delta(144-148)}$$

Tableau III.4

	I_1	I_2	I_3	I_4	I_5
5675	$1,21 \pm 0,06$	$1,16 \pm 0,06$	$1,22 \pm 0,04$	$3,2 \pm 0,2$	$1,07 \pm 0,1$
5293	$1,25 \pm 0,05$	$1,20 \pm 0,04$	$1,26 \pm 0,02$	$3,26 \pm 0,1$	$1,09 \pm 0,01$
5291	$1,24 \pm 0,05$	$1,17 \pm 0,04$	$1,23 \pm 0,1$	$3,1 \pm 0,15$	$1,07 \pm 0,03$
4924	$1,23 \pm 0,04$	$1,20 \pm 0,03$	$1,26 \pm 0,06$	$3,17 \pm 0,6$	$1,08 \pm 0,1$
4688	$1,32 \pm 0,20$	$1,22 \pm 0,1$	$1,28 \pm 0,06$	$3,41 \pm 0,3$	$1,09 \pm 0,01$
5320	$1,28 \pm 0,07$	$1,19 \pm 0,05$	$1,28 \pm 0,05$	$3,43 \pm 0,2$	$1,09 \pm 0,01$
5273	$1,32 \pm 0,08$	$1,21 \pm 0,06$	$1,27 \pm 0,06$	$3,52 \pm 0,3$	$1,09 \pm 0,01$
4060,6	$1,26 \pm 0,15$	$1,22 \pm 0,04$	$1,28 \pm 0,1$	$3,19 \pm 0,3$	$1,10 \pm 0,05$
Valeur moyenne	$1,24 \pm 0,08$	$1,20 \pm 0,04$	$1,26 \pm 0,04$	$3,31 \pm 0,15$	$1,085 \pm 0,015$

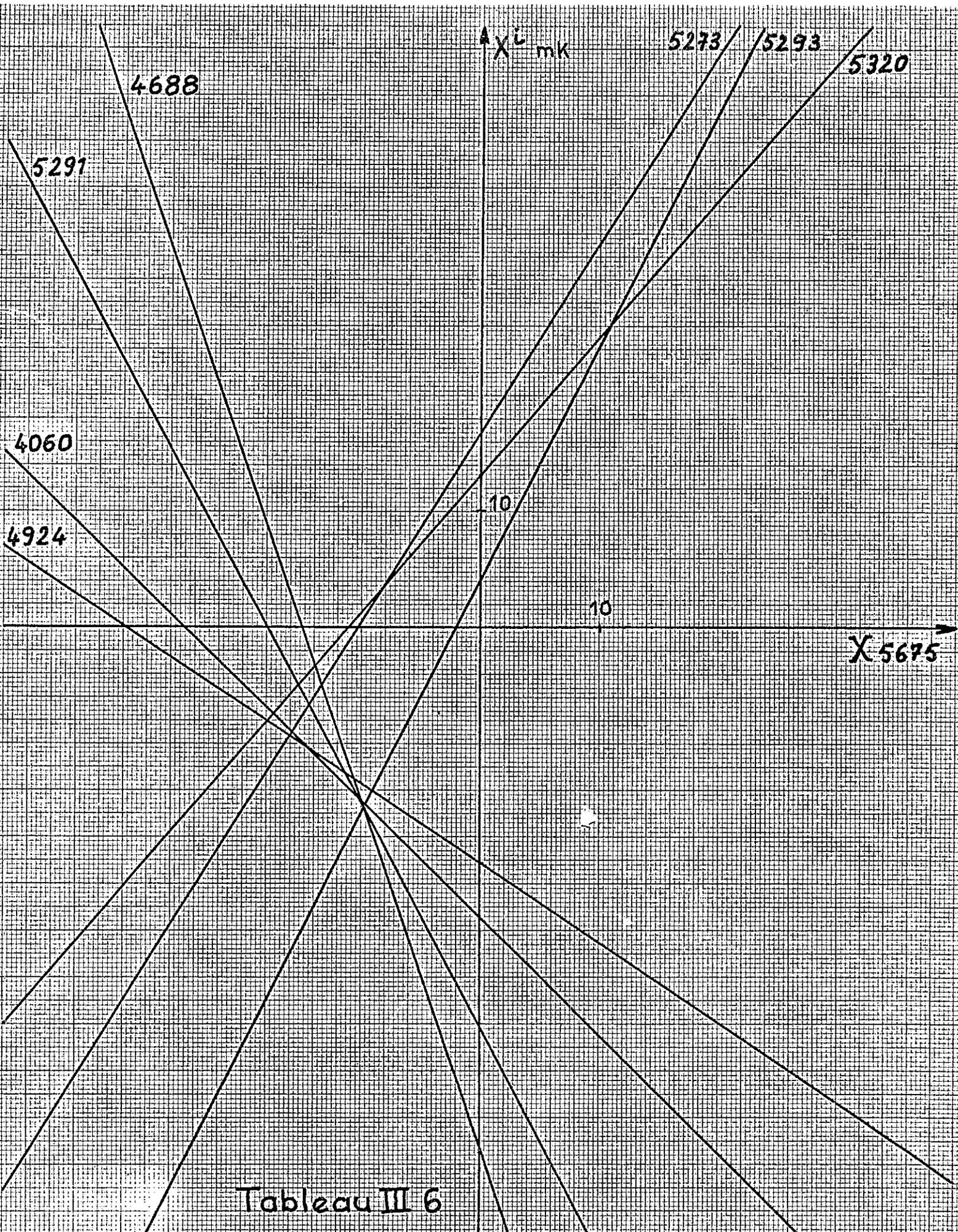


Tableau III 6

Des tableaux III.2 et III.4 nous déduisons que :

- la variation du D I R peut-être de 25 % : r_3 passe de 1,83 pour $\lambda = 5675 \text{ \AA}$ à 1,39 pour $\lambda = 4060 \text{ \AA}$ et la précision ne permet pas d'attribuer cette variation aux erreurs de mesure.

- la variation des constantes quadriisotopiques est toujours inférieure à 10 %. Dans le cas de R_5 elle est inférieure à 2 % alors que la précision peut-être inférieure à 5 %.

Ces résultats prouvent que la variation du D I R est bien due à la variation de l'effet spécifique de masse d'une transition à l'autre ou tout du moins à un phénomène suivant les mêmes lois.

III-5 Calcul des relations entre les effets spécifiques de masse de chaque transition :

Ecrivons le déplacement isotopique pour deux intervalles $\Delta(M_1, M_2)$,

$\Delta(M_3, M_4)$ et deux transitions i et j.

$$\Delta^i(M_1, M_2) = E^i V(M_1, M_2) + \frac{M_2 - M_1}{M_1, M_2} K^i \quad \Delta^j(M_1, M_2) = E^j V(M_1, M_2) + \frac{M_2 - M_1}{M_1, M_2} K^j$$

$$\Delta^i(M_3, M_4) = E^i V(M_3, M_4) + \frac{M_4 - M_3}{M_3, M_4} K^i \quad \Delta^j(M_3, M_4) = E^j V(M_3, M_4) + \frac{M_4 - M_3}{M_3, M_4} K^j$$

Ceci nous permet d'écrire :

$$\frac{\Delta^i(M_1, M_2) - \frac{M_2 - M_1}{M_1, M_2} K^i}{\Delta^j(M_1, M_2) - \frac{M_1 - M_2}{M_1, M_2} K^j} = \frac{E^i - \frac{\Delta^i(M_3, M_4) - \frac{M_4 - M_3}{M_3, M_4} K^i}{\Delta^j(M_3, M_4) - \frac{M_4 - M_3}{M_3, M_4} K^j}}{E^j - \frac{\Delta^j(M_3, M_4) - \frac{M_4 - M_3}{M_3, M_4} K^j}{\Delta^j(M_3, M_4) - \frac{M_4 - M_3}{M_3, M_4} K^j}}$$

et nous trouvons une relation linéaire entre les effets spécifiques de masse K^i et K^j . Dans le cas du néodyme nous posons :

$\frac{K^i}{148-150} = Y^i$ et nous calculons les relations entre les 8 transitions en prenant pour variable commune Y^{5675} . Le tableau III.5 donne les sept relations et le tableau III.6 leur représentation. Ceci nous permet si nous connaissons un des effets spécifiques de masse d'en déduire immédiatement tous les autres. Le tableau III.6 nous permet aussi de constater qu'il y a, quel que soit Y^{5675} choisi, toujours une transition pour laquelle l'effet spécifique de masse est supérieur à 10 fois l'effet de Bohr.

III-6 Relations entre les effets de volume de chaque transition étudiée :

Les coefficients angulaires des droites représentant l'effet spécifique de masse de chaque transition en fonction de l'effet spécifique de masse de la raie

$\lambda = 5675 \text{ \AA}$ représentant aussi les rapports des effets de volume des transitions par rapport à l'effet de volume de $\lambda = 5675 \text{ \AA}$. Or si nous appelons X l'effet de volume de $\lambda = 5675 \text{ \AA}$ que les auteurs classifient comme une transition $f^3 ds^2, f^4 s^2$, à partir des relations d'écran utilisés par Blaise (26) Gerstenkorn (27) et Gluck (28) il est normal d'attribuer à X la valeur de l'effet de volume de l'électron s dans $f^4 s$. Le tableau III. 7 représente alors les effets de volume en fonction de X attendus pour chaque transition.

Tableau III.5

λ	:			
5675	:		Y	
5291	:	- 34	$\pm 4 = (1,8 \pm 0,2)$	$+ Y_{5291}$
4924	:	- 19	$= 0,56 Y$	$+ Y_{4924}$
4688	:	- 45	$= 2,56 Y$	$+ Y_{4688}$
5320	:	13	$= -1,19 Y$	$+ Y_{5320}$
5293	:	7,3	$= -1,66 Y$	$+ Y_{5293}$
5273	:	17,5	$= -1,54 Y$	$+ Y_{5273}$
4060,6	:	- 25	$= Y$	$+ Y_{4060}$

Tableau III. 7

	: : $4 f^4 6 s^2$: 1,6 x	: : $4 f^4 5 d 6 s$: 0,8 x	: : $4 f^3 5 d 6 s 6 p$: 1,42 x	: : $4 f^3 5 d^2 6 p$: 0
$4 f^3 5 d 6 s^2$ 2,56 x	: : x	: : + 1,76 x	: : - 1,14 x	: : - 2,56 x
$4 f^4 6 s 6 p$ x	: : - 0,6 x	: : - 0,2 x	: : 0,42 x	: : - x
$4 f^4 5 d 6 p$ 0	: : - 1,6 x	: : - 0,8 x	: : + 1,42 x	: : 0
$4 f^3 5 d^2 6 s$ 1,26 x	: : - 0,34 x	: : + 0,5 x	: : + 0,2 x	: : + 1,26 x

D'autre part, pour la raie $\lambda = 4060 \text{ \AA}$ du spectre II la classification proposée par Albertson et al... (29) est $(f^4 s - f^4 p)$ et nous pouvons prévoir un déplacement isotopique voisin de x. Or l'effet d'écran mesuré est, pour cette raie, un aux erreurs d'expériences près, ce qui nous permet de supposer que la transition 5675 Å se fait entre deux niveaux peu mélangés. Dans ces conditions, la classification proposée par Hassan pour la raie 4924 Å $f^4 s^2 - f^4 sp$ correspond bien à l'effet d'écran mesuré (0,54) et pour les raies $\lambda = 5291 \text{ \AA}$ et $\lambda = 4688 \text{ \AA}$ non classées les coefficients d'écran, laissent prévoir des transitions du type $f^3 ds^2$ ($f^3 d^2 p + f^3 dsp$) avec prédominance de $f^3 dsp$ pour $\lambda = 5291 \text{ \AA}$ et $f^3 d^2 p$ pour $\lambda = 4688 \text{ \AA}$. Ces suppositions ont été confirmées par Blaise et Wyart (30) qui ont repris la classification du néodyme et le tableau III.7 donne la classification actuelle des huit raies étudiées.

Tableau III - 7

	niveau inférieur		niveau supérieur	
5675,9	$f^4 s^2$	$5I_5$	$f^3 ds^2$	$5H_4$
5291,6	$f^3 ds^2$	$5K_5$	$f^3 d^2 p$	$7L_6$
4924,5	$f^4 s^2$	$5I_4$	$f^4 sp$	$5K_5$
4688,5	$f^3 ds^2$	$5L_6$	$(f^3 d^2 p + f^3 d sp)$	
5319,80	$f^4 d$	$6L_{11/2}$	$f^4 p$	$6K_{9/2}$
5293,1	$f^4 d$	$6L_{15/2}$	$f^4 p$	$6K_{13/2}$
5273,4	$f^4 d$	$6L_{13/2}$	$f^4 p$	$6K_{11/2}$
4060,6	$f^4 s$	$6I_{15/2}$	$f^4 p$	$6K_{17/2}$

IV - L'YTTERBIUM.

IV - 1 Intérêt :

Nous avons décidé de mesurer les déplacements isotopiques de la raie 3988 \AA ($6 s^2 1 S_0 6s 6p^1 P_1$) de l'ytterbium à la suite de la publication des résultats de Chaiko (31), résultats en contradiction avec ceux publiés par Ross (32) relatifs à la raie $\lambda = 5556,48 \text{ \AA}$.

	Δ (170-172)	Δ (172-174)	Δ (174-176)
Ross	1,38	1,06	1
Chaiko	1,32	1,12	1

En effet de la précision indiquée par les deux auteurs (0,2 mK maximum pour des intervalles voisins de 20 mK.), il résulte une incertitude de 1 % sur les D I R et dans ces conditions l'invariant calculé à partir de ces trois intervalles aurait été différent, donc la théorie sur le déplacement isotopique incorrecte.

IV - 2 Les mesures :

Nous avons à notre disposition des isotopes enrichis d'ytterbium 170-172 173-174-176 et nous avons utilisé la méthode de mesure directe des intervalles. C'est en mesurant l'intervalle Δ (176-173) que nous avons constaté une auto absorption importante pour l'isotope pair, sa largeur à mi-hauteur étant plus grande que la largeur des composantes hyperfines de l'isotope impair. Nous avons été obligés de mesurer les déplacements isotopiques en limitant le courant de cathode à 4 mA ce qui explique la médiocrité du rapport/signal sur bruit obtenu. (cliché IV - 1).

IV - 3 Les résultats :

Nous avons mesuré les intervalles (174-176), (172-174) directement et nous avons déduit des mesures des intervalles Δ (170-173) et Δ (173-176) la valeur de l'intervalle Δ (170-176) donc Δ (172-174). Les résultats sont les suivants après corrections dues à l'enrichissement insuffisant :

$$\Delta (174-176) = (17,3 \pm 0,3) \text{ mK.}$$

$$\Delta (172-174) = (17,7 \pm 0,2) \text{ mK.}$$

$$\Delta (170-172) = (19,6 \pm 0,3) \text{ mK.}$$

Nous en déduisons donc :

Δ (170-172)	Δ (172-174)	Δ (174-176)
$1,13 \pm 0,03$	$1,02 \pm 0,03$	1

et les valeurs obtenues permettent de montrer que l'effet spécifique de masse est important puisque le D I R 172-174/174-175 est de 1,02 pour $\lambda = 3988 \text{ \AA}$ et 1,12 pour $\lambda = 5554,48 \text{ \AA}$ mais la constante quadriisotopique

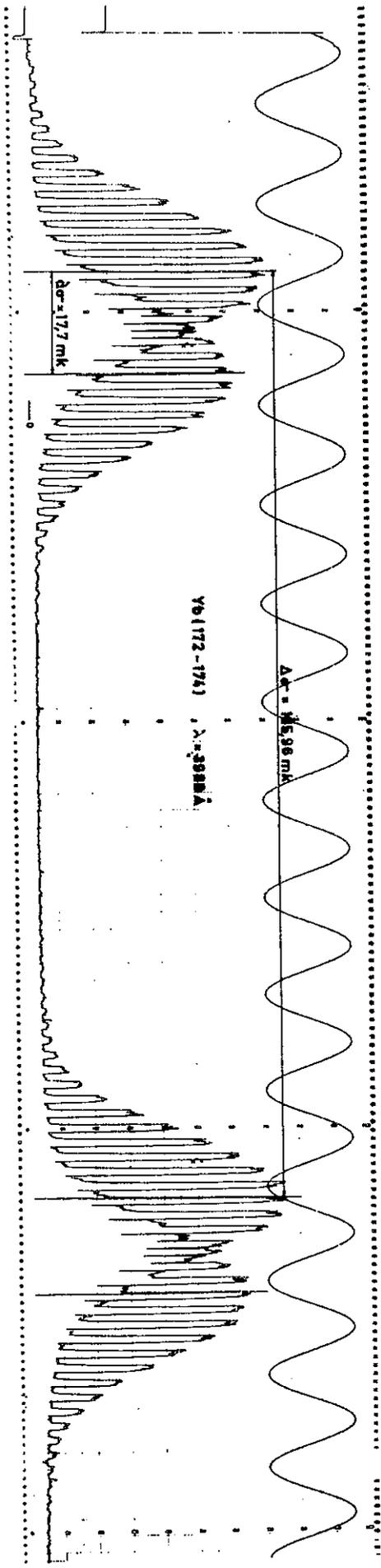
$$I = \frac{\Delta(170-172) - 174-176/172-170}{\Delta(170-172) - 174-170} \frac{\Delta(174-176)}{\Delta(172-174)}$$

vaut maintenant 1,12 pour $\lambda = 5556$, 0,97 pour $\lambda = 3988$, et ces deux valeurs sont compatibles contrairement aux résultats obtenus par Chaiko

V - LE GADOLINIUM.

V - 1 Caractéristiques et intérêt du gadolinium :

Le gadolinium a pour numéro atomique $Z = 64$ et possède comme le néodyme 5 isotopes pairs pour deux isotopes impairs stables. Comme dans le cas du néodyme et du samarium il existe un saut dans le déplacement isotopique lors-



CLICHE IV 1

que l'on passe du gadolinium 152 (N = 88) au gadolinium 154 (N = 90).

Si nous représentons les isotopes en fonction du nombre de neutrons pour ces trois corps nous obtenons le schéma ci-dessous :

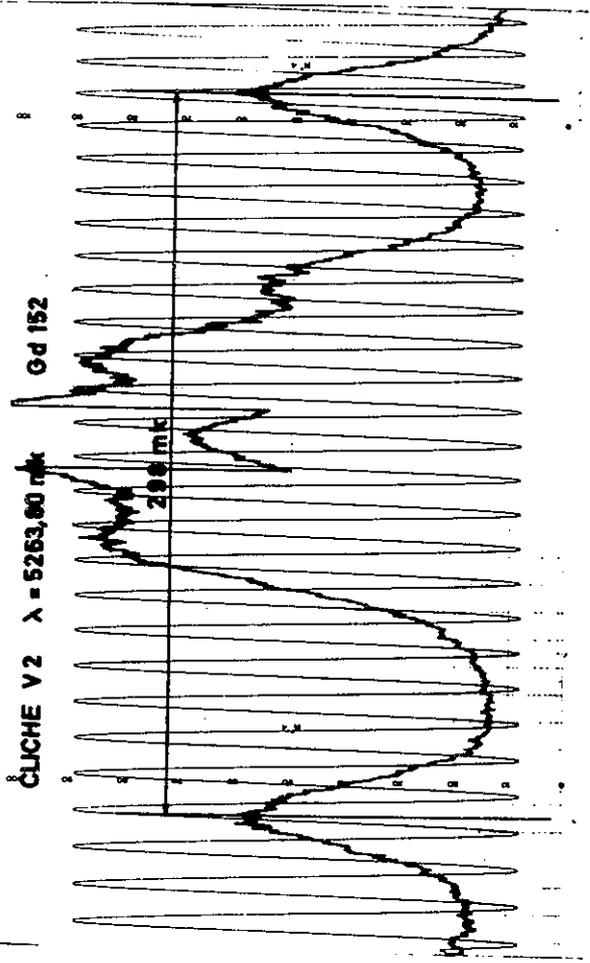
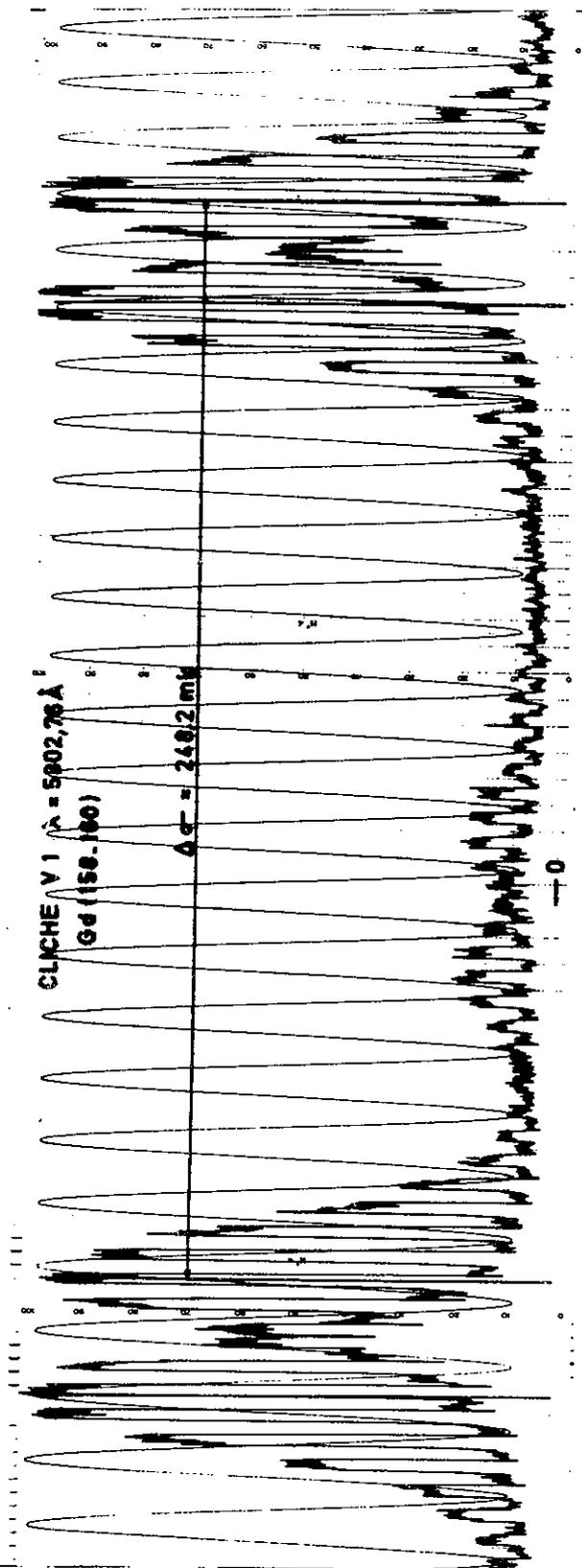
N	: 82	: 84	: 86	: 88	: 90	: 92	: 94	: 96
Nd Z = 60	: 142	: 144	: 146	: 148	: 150	:	:	:
Sm Z = 62	: 146	:	: 148	: 150	: 152	: 154	:	:
Cd Z = 64	:	:	:	: 152	: 154	: 156	: 158	: 160

Le samarium ayant été mesuré de nouveau par Hansen et al , il était très intéressant de compléter les renseignements obtenus par l'étude des déplacements isotopiques dans le spectre du gadolinium non pas pour mesurer une probable variation du D I R confirmée pour l'étude du néodyme et du samarium mais pour comparer les résultats obtenus par voie nucléaire et par déplacement isotopique autour du nombre de neutrons 90 caractérisé :

- au point de vue déplacement isotopique par une brusque variation,
- au point de vue nucléaire par le passage de la zone de spectre d'énergie nucléaire vibrationnel à la zone de spectre d'énergie nucléaire du type rotationnel.

V. 2 Les isotopes et les techniques expérimentales :

Nous avons à notre disposition des isotopes enrichis de gadolinium en quantité suffisante excepté pour le gadolinium 152 dont nous ne possédons que cinq milligrammes. C'est pourquoi nous avons limité notre étude à trois raies du spectre I en nous réservant la possibilité de reprendre les mesures sur une ou deux raies lorsque la classification sera suffisamment avancée. Le tableau V.1 donne l'enrichissement des isotopes et permet de constater que la présence des isotopes impairs en quantité non négligeable rend toute correction difficile. C'est pourquoi nous avons utilisé la méthode des enregistrements simultanés et pour la première fois systématiquement les techniques digitales. Le cliché V.1 est un exemple d'enregistrement de l'intervalle 158-160 pour la raie $\lambda = 5302,76 \text{ \AA}$ le déplacement mesuré n'étant que de 25 mK et le



cliché V.2 illustre la difficulté de mesurer la position de l'isotope 152, les autres isotopes couvrant presque entièrement l'intervalle entre ordre.

Tableau V. 1

	152	154	155	156	157	158	160
152	15,0	9,8	27,3	19,3	10,1	11,7	7,0
154	0	71,4	11,1	7,1	4,2	3,9	2,3
156	0	0	0,67	97,01	1,16	0,83	0,34
158	0	0	0,96	1,7	3,56	92	1,82
160	0	0,05	0,52	0,82	1,19	3,42	94

Tableau V. 2

	(152-154)	(154-156)	(156-158)	(158-160)	R ₁ (152-154/ 158-160)	R ₂ (154-156/ 158-160)
5345,8 Å	117,9 ⁺ _{-0,5}	49,80 ⁺ _{-0,6}	37,3 ⁺ _{-0,3}	40 ⁺ _{-0,2}	2,945 ⁺ _{-0,01}	1,25 ⁺ _{-0,02}
5302,8 Å	72,25 ⁺ _{-0,5}	30,35 ⁺ _{-0,6}	23,6 ⁺ _{-0,3}	24,4 ⁺ _{-0,4}	2,961 ⁺ _{-0,02}	1,24 ⁺ _{-0,03}
5263,8 Å	103,5 ⁺ _{-0,5}	45,10 ⁺ _{-0,5}	33,6 ⁺ _{-0,5}	34,85 ⁺ _{-0,2}	2,969 ⁺ _{-0,01}	1,29 ⁺ _{-0,02}

V- 3 Les résultats :

Le tableau V.2 donne les intervalles mesurés pour les trois raies à déplacement négatif et deux D I R. On peut constater que, pour ces trois raies, la variation du D I R si elle existe est très faible malgré l'utilisation de l'intervalle

Δ (152-154). Ceci s'explique probablement par le fait que les trois transitions étudiées appartiennent au même type et avec des effets spécifiques très voisins. Nous remarquons aussi que l'intervalle Δ (156-158) est dans les trois cas plus petit que l'intervalle Δ (158-160) ce résultat étant en opposition avec les mesures de Kopfermann (33) mais en accord avec celles de Murakawa.

V - 4 Calcul des constantes quadriisotopiques :

Ce calcul doit être fait pour pouvoir interpréter les résultats et nous avons choisi trois constantes qui relient les cinq isotopes. Ces trois constantes sont les suivantes :

$$I_1 = \frac{\Delta(152-154) - 1,0529 \Delta(156-158)}{\Delta(152-154) - 1,0263 \Delta(154-156)} \quad I_2 = \frac{\Delta(152-154) - 1,0799 \Delta(158-160)}{\Delta(152-154) - 1,0263 \Delta(154-156)}$$

$$I_3 = \frac{\Delta(154-156) - 1,0259 \Delta(156-158)}{\Delta(154-156) - 1,052 \Delta(158-160)}$$

et le tableau V. 3 donne leurs valeurs pour les trois transitions.

Tableau V. 3

	I_1	I_2	I_3
5345,8 Å	$1,17 \pm 0,02$	$1,12 \pm 0,02$	$1,52 \pm 0,15$
5302,8 Å	$1,15 \pm 0,03$	$1,12 \pm 0,03$	$1,32 \pm 0,20$
5263,8 Å	$1,19 \pm 0,02$	$1,15 \pm 0,02$	$1,26 \pm 0,20$

VI - INTERPRETATION DES RESULTATS :

Au cours du premier chapitre nous nous sommes efforcés de donner la justification théorique des formules permettant d'écrire le déplacement isotopique d'un niveau, d'une transition, sous la forme :

$$\Delta^i(M_1, M_2) = \beta^i E^{ns} V(M_1, M_2) + \frac{M_2 - M_1}{M_1 - M_2} K^i.$$

Nous en avons déduit que, lorsque l'effet spécifique de masse n'était pas négligeable, le déplacement isotopique relatif n'avait aucune raison d'être constant. Cependant on peut alors calculer les constantes quadriisotopiques, caractéristiques des propriétés nucléaires, donc indépendantes des transitions. Nos résultats expérimentaux nous ont permis jusqu'ici :

- de mettre en évidence une variation importante de D I R dans le cas du Néodyme et de l'Ytterbium.

- de vérifier la constance des expressions quadriisotopiques pour le Néodyme, l'Ytterbium et le Gadolinium après avoir rectifié les valeurs mesurées par Noeldke pour le Néodyme II et par Chaiko pour la raie 3988 de l'Ytterbium.

Nous pouvons donc maintenant essayer de séparer les différentes composantes du déplacement isotopique afin de pouvoir comparer les prévisions théoriques et les résultats expérimentaux. Pour cela nous explicitons le terme $V(M_1, M_2)$.

A partir des équations définies au chapitre I, on montre qu'il est toujours possible de l'écrire sous la forme :

$$V(M_1, M_2) = A \frac{(M_2 - M_1)}{2} + B (\alpha^2 M_2 - \alpha^2 M_1)$$

A et B étant deux constantes au premier ordre pour un élément donné, α étant le coefficient caractéristique de la déformation :

$$\alpha = \frac{2}{3} (a - b) \left(1 + \frac{a - b}{b}\right)^{1/3}$$

a et b étant les demi-axes de l'ellipsoïde dans le cas des noyaux possédant une déformation permanente, et $\alpha = \langle \epsilon^2 \rangle^{1/2}$ dans le cas des noyaux vibrationnels.

L'effet de volume se sépare donc en deux termes :

- le premier $A \frac{(M_2 - M_1)}{2}$ est l'effet de volume normal, et, comme l'effet spécifique de masse, il est proportionnel à $(M_2 - M_1)$

- le second $B (\alpha^2 M_2 - \alpha^2 M_1)$ est caractéristique de la variation de la déformation d'un isotope à l'autre.

Nous allons tout d'abord calculer l'effet de volume dû à la déformation.

VI - 1 Evaluation de l'effet de volume dû à la déformation :

Notre but est de calculer pour chaque transition la quantité

$$\beta^i E^{ns} B (\alpha^2 M_2 - \alpha^2 M_1)$$

Puisque nous savons déterminer expérimentalement les relations entre les différents β , il nous suffit d'ailleurs d'effectuer le calcul pour une transition, ce que nous pouvons faire si nous connaissons trois coefficients de déformation.

Nous écrivons alors :

$$\Delta^i(M_1 M_2) = \beta^i E^{ns} A \frac{(M_2 - M_1)}{2} + \beta^i E^{ns} B (\alpha_{M_2}^2 - \alpha_{M_1}^2) + \frac{M_2 - M_1}{M_1 M_2} K^i$$

$$\Delta^i(M_2 M_3) = \beta^i E^{ns} A \frac{(M_3 - M_2)}{2} + \beta^i E^{ns} B (\alpha_{M_3}^2 - \alpha_{M_2}^2) + \frac{M_3 - M_2}{M_3 M_2} K^i$$

en supposant $M_2 - M_1 = M_3 - M_2$ et $\frac{M_2 - M_1}{M_1 M_2} K^i - \frac{M_3 - M_2}{M_2 M_3} K^i \neq 0$

nous obtenons :
$$\beta^i B E^{ns} = \frac{\Delta^i(M_2 M_3) \Delta^i(M_1 M_2)}{\alpha_3^2 - \alpha_2^2 + \alpha_1^2}$$

La connaissance de trois coefficients de déformation permet : - de calculer

$\beta^i B E^{ns}$ donc B si β^i et E^{ns} sont connus .

- de déterminer

les autres coefficients de déformation.

C'est pourquoi, puisque les coefficients de déformation peuvent être déterminés directement par excitation coulombienne (cf chapitre I paragraphe X) nous pouvons espérer évaluer la contribution de la déformation si les valeurs de ces coefficients sont cohérentes avec nos mesures.

VI - 1 Comparaison des valeurs des coefficients de déformation mesurées par excitation coulombienne et des résultats obtenus par déplacement isotopique.

Nous utilisons les valeurs des coefficients de déformation extraites d'une part de l'article de Stacey (35) d'autre part de l'article de Stelson (36) et données dans le tableau VI - 1. L'erreur donnée a été estimée être de 10 % pour les valeurs de Stacey et a été calculée pour les valeurs de Stelson à partir de l'incertitude publiée sur les probabilités de transition.

Nous remarquerons que ces valeurs sont compatibles entre elles à l'exception du Nd 146 et 148, du Sm 152 et 154 ;

N	82	84	86	88	90	92	94	96
Nd Z = 60	a	2 868 (300)	3 176 (700)	6 840 (700)	28 960 (2 900)			
	b	4 324 (1 300)	4 928 (1 700)	10 368 (3 100)	15 526 (6 000)	31 136 (1 000)		
Sm Z = 62	a	4 240 (420)		8 920 (900)	12 800 (1 300)	30 260 (3 000)	38 840 (3 900)	
	b			9 925 (1 000)	14 440 (500)	36 966 (1 000)	49 280 (2 000)	
Gd Z = 64	a				31 360 (3 100)	40 960 (4 100)	47 800 (4 800)	49 840 (5 000)
	b			10 888 (2 000)	36 966 (1 850)	45 968 (1 900)	51 264 (2 100)	53 972 (2 200)

°° en 10⁻⁶

a - valeurs extraites de Stacey.
b - valeurs extraites de Stelson

Tableau VI - 1

	Classification	(144-148)	(148-150)	(150-152)	(152-154)
4910,40	4f ⁶ 6s 6p ⁷ D ₃ - 4f ⁶ 6s ² 7F ₄	- 55,27	- 31,18	- 41,80	- 24,67
5088,31	4f ⁶ 6s 6p ⁵ F ₃ - 4f ⁶ 6s ² 7F ₂	- 86,66	- 50,63	- 70,76	- 38,45
5175,42	4f ⁵ 5d 6s ² 7H ₇ - 4f ⁶ 6s ² 7F ₆	83,52	+ 52,58	80,97	36,88
5251,88	4f ⁵ 5d 6s ² 7H ₆ - 4f ⁶ 6s ² 7F ₆	99,55	+ 62,39	95,47	43,56
5271	4f ⁵ 5d 6s ² 7G ₃ - 4f ⁶ 6s ² 7F ₂	50,90	33,02	51,89	22,14

Tableau VI - 2

(Classification donnée par Blaise)

A partir du déplacement isotopique, en utilisant nos résultats pour le Néodyme et le Gadolinium et, pour le Samarium, ceux de Hansen que nous résumons dans le tableau VI - 2, nous obtenons les trois schémas suivants :

Nd	142	1	144	< 1	146	> 1	148	>> 1	150
Sm	144	2	148	> 1	150	>> 1	152	< 1	154
Gd	152	>> 1	154	> 1	156	< 1	158	1	160

La contribution de la déformation étant proportionnelle à la différence des carrés des coefficients de déformation nous devrions avoir :

$$\begin{aligned}
 \text{Nd} & (\alpha_{150}^2 - \alpha_{148}^2) \gg (\alpha_{148}^2 - \alpha_{146}^2) > (\alpha_{144}^2 - \alpha_{142}^2) > (\alpha_{146}^2 - \alpha_{144}^2) \\
 \text{Sm} & (\alpha_{152}^2 - \alpha_{150}^2) \gg (\alpha_{150}^2 - \alpha_{148}^2) > 1/2(\alpha_{148}^2 - \alpha_{144}^2) > (\alpha_{154}^2 - \alpha_{152}^2) \\
 \text{Gd} & (\alpha_{154}^2 - \alpha_{152}^2) \gg (\alpha_{156}^2 - \alpha_{154}^2) > (\alpha_{160}^2 - \alpha_{158}^2) > (\alpha_{158}^2 - \alpha_{156}^2)
 \end{aligned}$$

Nous donnons ci-dessous les résultats obtenus à partir du tableau VI - 1

$$\begin{aligned}
 \text{Nd} \quad a & 22\ 120 (3\ 600) \gg 3764 (600) > 2868 - X > 208 (600) \\
 & b \quad 15\ 000 (7\ 000) \gg 5255 (900) > 602 (3000) > 5\ 340 (4\ 800) \\
 \text{Sm} \quad a & 17\ 460 (4\ 200) \gg 3\ 880 (2\ 000) > 2\ 340 (800) > 8\ 580 (6\ 800) \\
 & b \quad 22\ 526 (1\ 500) \gg 4\ 454 (1\ 500) > 1/2 (9\ 985 - X) > 12\ 616 (3\ 000) \\
 \text{Gd} \quad a & (31\ 360 - X) \gg 9\ 600 (7\ 200) > 2\ 040 (9\ 800) > 6\ 840 (8\ 900) \\
 & b \quad 26\ 078 (3\ 850) \gg 9\ 002 (3\ 750) > 2\ 708 (4\ 300) > 5\ 272 (4\ 000)
 \end{aligned}$$

Cette comparaison montre immédiatement que le déplacement isotopique fournit des indications beaucoup plus précises sur la variation relative des coefficients de déformation que l'excitation coulombienne. Cependant, s'il ne nous est pas possible d'utiliser les résultats dans le cas du Gadolinium nous pouvons par contre remarquer, d'une part, que la différence des coefficients de déformation pour les isotopes 144 et 146 du Néodyme est très faible, d'autre part, que la valeur du coefficient de déformation du Samarium 154 est fautive. Pour le Samarium, si nous calculons le rapport $\frac{\Delta(152\ 154) - \Delta(150\ 152)}{\Delta(150\ 152) - \Delta(148\ 150)}$ nous trouvons - 1,55.

Le calcul effectué alors à partir des coefficients de déformation a ou b indique que $\alpha_{154}^2 - \alpha_{152}^2$ devrait être négatif dans les deux cas.

En utilisant ces deux remarques nous allons évaluer l'effet dû à la déformation pour le Samarium et le Néodyme.

VI - 1 Calcul de l'effet de volume dû à la déformation pour le Néodyme et le Samarium.

- Néodyme :

Nous avons pu remarquer que les coefficients de déformation des isotopes 144 et 146 étaient très voisins. L'intervalle Δ (144 146) mesure donc, en première approximation l'effet de volume normal augmenté de l'effet spécifique de masse. Pour évaluer l'erreur que nous commettons ainsi nous pouvons utiliser les résultats relatifs aux isotopes 143 et 145. En effet, la mesure des moments quadrupolaires hyperfins (37) montre que le moment quadrupolaire de l'isotope 143 est plus élevé que celui de l'isotope 145, ce qui entraîne, compte tenu des spins identiques :

$$\alpha_{143}^2 > \alpha_{145}^2$$

Il en résulte que l'effet de volume dû à la déformation se retranche à l'effet de volume normal pour l'intervalle 143 145.

Or nos mesures donnent :

$$\begin{aligned} &: 5675 \text{ \AA} \quad \Delta(143 \ 145) = 18,10 \quad \Delta(144 \ 146) = 19 \\ &: 4924 \text{ \AA} \quad \Delta(143 \ 145) = -30,3 \quad \Delta(144 \ 146) = -31,7 \end{aligned}$$

En prenant comme effet de volume normal augmenté de l'effet spécifique de masse la valeur de Δ (144 146) nous commettons dans les deux cas une erreur inférieure à 1 mk.

- Samarium

La contribution de la déformation pour l'intervalle Δ (144 148) est positive et d'une part par analogie avec le Néodyme, d'autre part à partir de la valeur des coefficients de déformation, nous pouvons l'estimer faible comme pour le Néodyme. Les deux isotopes impairs le Sm 147 et le Sm 149 sont tels que l'on ait :

$$\alpha_{147}^2 > \alpha_{149}^2$$

et la contribution de la déformation pour l'intervalle Δ (147 149) est négative. C'est pourquoi nous prendrons comme effet de volume normal augmenté de l'effet spécifique de masse la quantité :

$$1/2 \quad (1/2 \Delta(144 \ 148) + \Delta(147 \ 149))$$

Nous donnons dans les tableaux VI - 3 et VI - 4 les valeurs de l'effet de volume normal augmenté de l'effet spécifique de masse pour les diverses transitions du Néodyme et du Samarium ainsi que l'effet dû à la déformation que l'on peut en déduire pour les autres intervalles.

Nous ferons, concernant ces deux tableaux les remarques suivantes :

- nous n'avons pas tenu compte de la variation de l'effet spécifique d'un intervalle à l'autre ; ceci peut entraîner, lorsque ce dernier est grand une erreur de l'ordre du mK.

- si nous comparons pour le Néodyme la déformation déduite pour l'intervalle Δ (148 150) à l'effet de volume normal augmenté de l'effet spécifique de masse nous constatons que le rapport de ces deux grandeurs passe de la valeur 1 pour $\lambda = 5675$ à la valeur 0,3 pour $\lambda = 4924$.

Une telle variation ne peut s'expliquer que si l'effet spécifique de masse est très grand pour l'une des deux transitions. La même remarque peut-être faite pour le Samarium (raie 4 910 et 5 271 par exemple)

- pour toutes les transitions nous trouvons donc une déformation négative pour Δ (152 154). Nous avons donc $\alpha_{154}^2 < \alpha_{152}^2$.

λ	(144 146) mesuré	(142 144)	(146 148)	(148 150)
5675	+ 19 °°	1,4	3,2	20
5291	- 69,7	4,4	6	35,8
4924	- 31,7	0,6	0,9	10,2
4688	- 94	6,9	10,8	50,8
5320	35	3	5,5	24,5
5293	38,4	3,2	6,9	33,8
5273	46,2	4,6	7,3	31,5
4060	- 45,4	2,5	3,6	19,1

°° en mk

Tableau VI - 3

	1/2	1/2	(144 148)+	(147 149):	(148 150)	(150 152)	(152 154)
4910		- 26,70	°°		4,48	15,10	- 2
5088		- 41,71			8,92	29,05	- 3,26
5175		40,50			12,08	40,37	- 3,62
5251		48,40			14	47,07	- 4,54
5271		24,70			8,32	27,19	- 2,56

°° en mk

Tableau VI -4

Nous terminerons ce paragraphe en évaluant $\beta^{5675} E^{ns} B_{Nd}$ et $\beta^{5251} E^{ns} B_{sm}$.
 Pour cela nous utiliserons la valeur de la déformation calculée pour Δ (148 150) pour le Néodyme, Δ (150 152) pour le Samarium et les coefficients de déformation correspondants.

Il en résulte :

$$\beta^{5675} E^{ns} B_{Nd} = 1\,076 \pm 300$$

$$\beta^{5251} E^{ns} B_{sm} = 2\,440 \pm 600$$

VI - 2 Détermination de l'effet spécifique et de l'effet de volume normal.

Nous avons pu jusqu'ici séparer l'effet de volume dû à la déformation de l'effet total. Nous connaissons donc pour chaque transition du Néodyme et du Samarium la somme de l'effet de volume normal et de l'effet spécifique de masse que nous écrivons :

$$\beta^i E^{ns} A (M_2 - M_1) + \frac{M_2 - M_1}{M_1 M_2} K^i$$

Nous devons maintenant calculer l'un ou l'autre de ces deux termes. La détermination de l'effet spécifique de masse est possible théoriquement par le calcul mais il est nécessaire de tenir compte des effets relativistes et de la décomposition de chacun des niveaux sur une base faisant intervenir le mélange de configuration. Jusqu'ici seul un calcul prévisionnel a pu être fait par J. Bauche pour les transitions du type $f^3 d s^2 - f^4 s^2$, calcul qui donne comme ordre de grandeur - 18 mk.

C'est pourquoi il est préférable de déterminer tout d'abord l'effet de volume normal bien que ce choix nous impose de faire appel aux coefficients d'écran.

Nous devons évaluer successivement β pour une des transitions, E^{ns} et A.

- détermination de E^{ns} :

Nous savons (voir chapitre I) que la connaissance du potentiel d'ionisation ou de l'intervalle de structure hyperfine permet d'évaluer E^{ns} . Nous prendrons comme valeurs celles utilisées par les autres auteurs pour la détermination de C exp c'est à dire :

$$E^{ns}(\text{Nd}) = 0,37$$

$$E^{ns}(\text{Sm}) = 0,41$$

- détermination de A

Nous sommes obligés de faire appel aux évaluations théoriques, mais elles varient peu d'un auteur à l'autre et nous choisirons comme Meligy (38) et

Ionesco-Pallas :

$$A_{\text{Nd}} = 102$$

$$A_{\text{Sm}} = 117$$

- Détermination de β^i

Cette estimation ne peut se faire qu'en utilisant les effets d'écran. Nous choisissons comme première hypothèse d'attribuer à la différence $f^ns - f^nd$ la valeur X de l'effet de volume de l'électron s. Pour cela nous utilisons les résultats de Noeldke (24) (corrigés à partir de nos mesures) pour le Néodyme et ceux de Brix et Kopfermann (39) pour le Samarium, résultats qui leurs ont permis de déterminer les constantes expérimentales de déplacement isotopique de ces deux éléments.

Nd	(142 - 144)	(144 - 146)	(146 - 148)	(148 - 150)
	68,4 mk	67,40 mk	71,6 mk	100 mk

Sm	(144 - 148)	(148 - 150)	(150 - 152)	(152 - 154)
	(158-mk)	(90-mk)	(132-mk)	(71,5 mk)

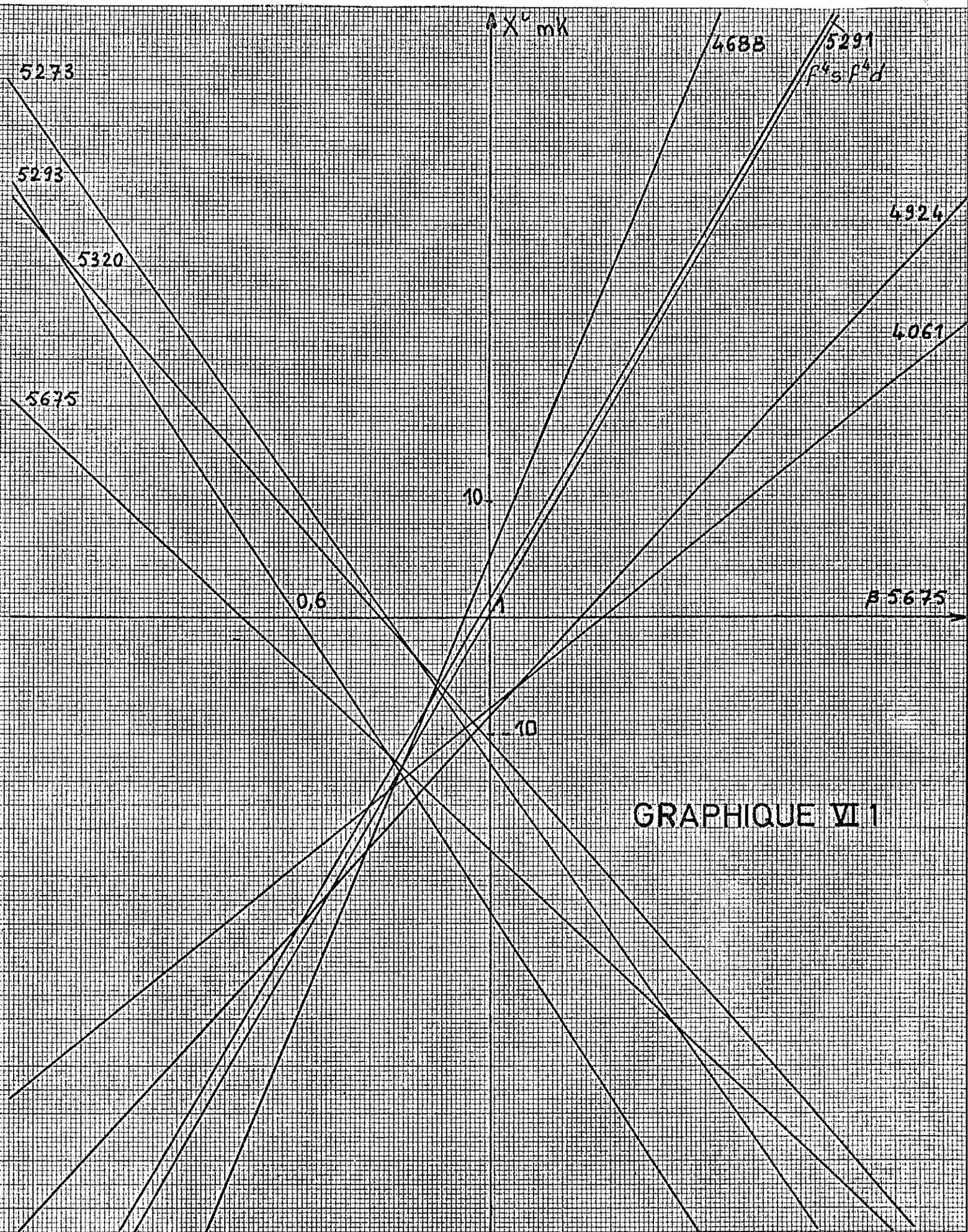
Nous calculons alors la valeur de β^{5675} pour le Néodyme et β^{5251} pour le

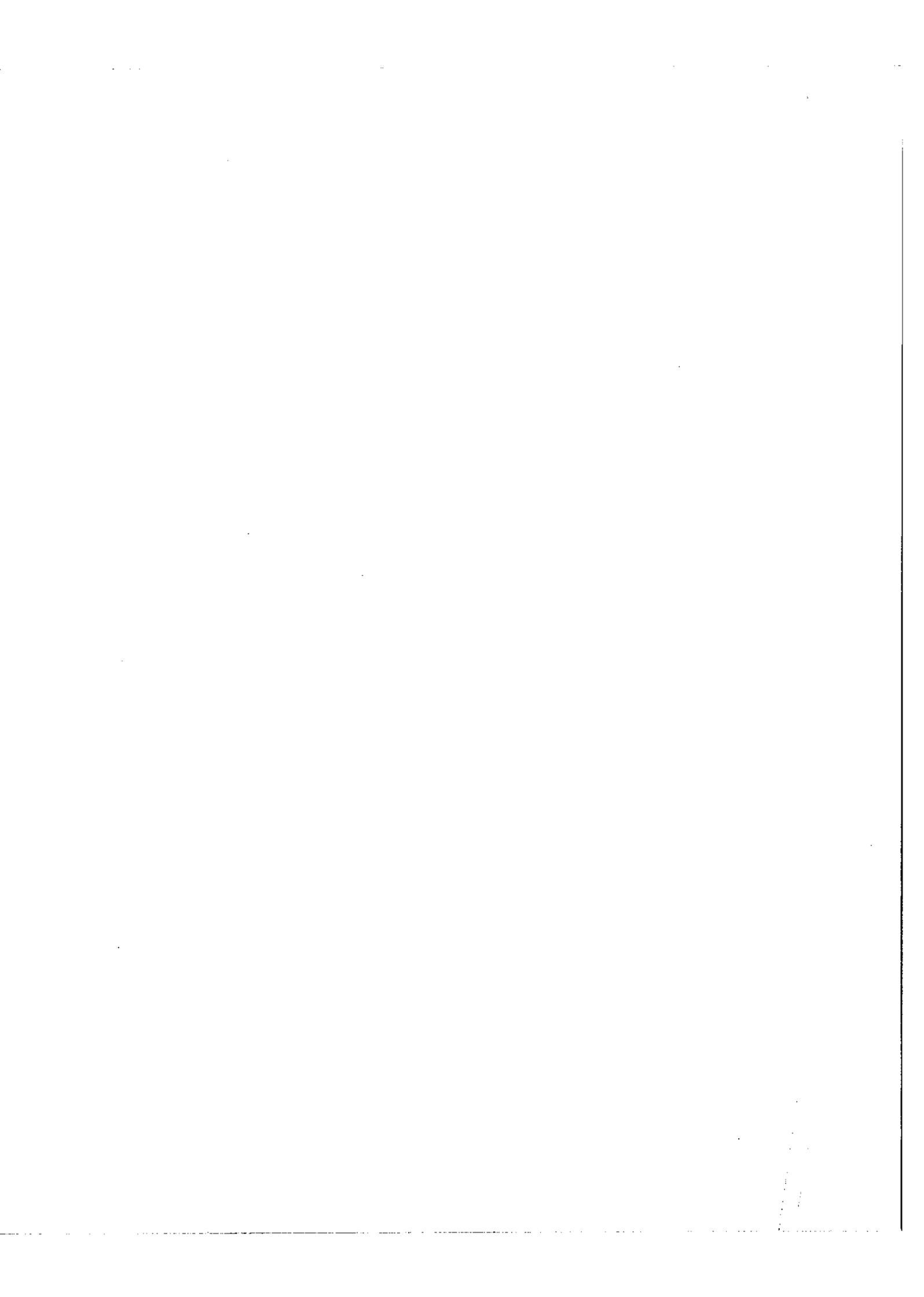
Samarium :

$$\beta^{5615} = 0,59 \pm 0,06$$

$$\beta^{5281} = 0,79 \pm 0,06$$

Pour contrôler ce résultat nous pouvons faire appel à la classification des raies que nous avons étudiées. En nous reportant au tableau III.7 nous constatons que nous devons attribuer à la transition $\lambda = 5675 \text{ \AA}$ la valeur $\beta = 1 \pm 0,2$.





Dans le cas du samarium la raie $\lambda = 5251 \text{ \AA}$ est une transition entre les niveaux $f^3 ds^2 \text{ } ^7H_6$ et $f^4 s^2 \text{ } ^7F_6$. Le calcul de l'interaction de configuration $f^5 ds^2 - f^6 sp$ a été effectué par A. Carlier et nous connaissons la composition de 7H_6 : $0,92 f^5 ds^2$ $0,08 f^6 sp$. Nous devons alors attribuer à cette transition le coefficient $\beta = 0,83 \pm 0,2$.

Nous constatons que l'accord est bon dans le cas du Samarium et nous prendrons la valeur $\beta^{5251} = 0,8$ pour calculer l'effet de volume normal. Par contre dans le cas du Néodyme l'écart entre les deux estimations est grand et nous ferons varier la valeur de β^{5675} entre 0,6 et 1.

Les tableaux VI.5 et VI.6 donnent le calcul de l'effet de volume normal pour le Néodyme et le Samarium ainsi que la valeur de l'effet spécifique de masse qui s'en déduit, et, dans la dernière colonne nous rappelons la valeur de l'effet de volume dû à la déformation pour les intervalles Δ (148 - 150) du Néodyme et Δ (150 - 152) du Samarium. Enfin les graphiques VI.1 et VI.2 représentent les variations des différents effets spécifiques en fonction de β^{5675} et β^{5251}

Tableau VI - 5.

Classification	$\beta^{5675} = 0,6$		$\beta^{5675} = 1$		Déformation (148-150)
	Volume Normal	effet spécifique	Volume Normal	effet spécifique	
5675 : $f^3 ds^2 - f^4 s^2$	23	- 4	38,5	- 19,5	+ 20
5291 : $f^3 ds^2 - f^3 ds^2$	- 43,5	- 26,2	- 71,7	+ 2	- 35;3
4924 : $f^4 sp - f^4 s^2$	- 14,9	- 16,8	- 23,5	- 8,2	- 10,2
4688 : $f^3 ds^2 - f^3 ds^2$	- 60	- 34	- 99,3	+ 5,3	- 50,8
5320 : $f^4 d - f^4 p$	27	8	45,4	- 10,4	+ 24,5
5293 : $f^4 d - f^4 p$	38,4	0	64	- 25,6	+ 33,7
5273 : $f^4 d - f^4 p$	35,3	10,9	58,9	- 12,7	+ 31,5
4061 : $f^4 p - f^4 s$	- 24,6	- 20,8	- 40	- 5,5	- 20
: $f^4 d - f^4 s$	- 38,4	- 29	- 69,4	+ 2	- 32,6

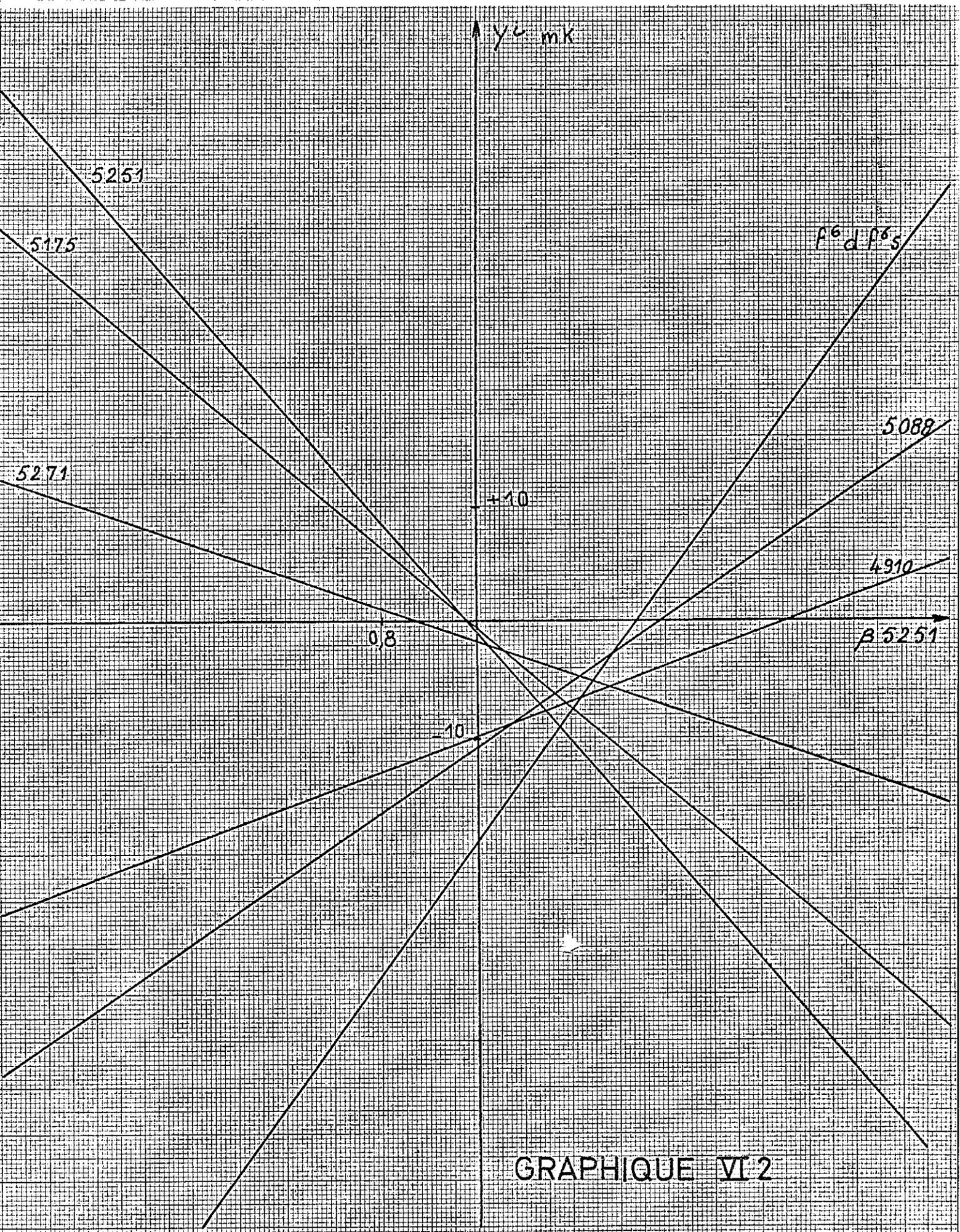


Tableau VI - 6

	Classification	Volume normal	Effet spécifique	Déformation (150-152)
4910	$4f^6 6s 6p 4f^6 6s^2$	- 26,70	- 13	- 15,10
5088	$4f^6 6s 6p 4f^6 6s^2$	- 41,71	- 16,7	- 29,05
5175	$f^5 ds^2 - f^6 s^2$	40,50	6,9	+ 40,37
5251	$f^5 ds^2 - f^6 s^2$	48,40	8,3	+ 47,01
5271	$f^5 ds^2 - f^6 s^2$	26,70	1,8	+ 27,19
	$f^6 d f^6 s$	- 50,3	- 30,7	- 47,4

VI - 3 Discussion des résultats obtenus.

VI - 3 - 1 Importance de l'effet spécifique de masse.

Les tableaux VI. 5 et VI. 6 montrent que l'effet spécifique de masse est du même ordre de grandeur que l'effet de volume dû à la déformation pour les intervalles où l'influence de cette dernière est la plus grande.

Si nous prenons les mêmes hypothèses que les auteurs précédents pour déterminer les constantes expérimentales de déplacement isotopique, l'effet spécifique de masse est du même ordre de grandeur que l'effet de volume normal. Il en résulte que ces constantes expérimentales doivent être réévaluées et nous donnons ci-dessous les valeurs obtenues après déduction de l'effet spécifique de masse, les valeurs entre parenthèses étant celles publiées jusqu'ici.

C exp Nd	(142 - 144)	(144 - 146)	(146 - 148)	(148 - 150)
	104 (181)	102 (178)	113 (189)	188 (265)
C exp Sm	(144 - 148)	(148 - 150)	(150 - 152)	(152 - 154)
	253 (360)	153 (216)	255 (317)	108 (172)

Nous remarquerons cependant que ces valeurs sont fonction du choix de β et de A, choix qui détermine la valeur de l'effet spécifique. Pour pouvoir tester la validité de A il est donc nécessaire :

- d'évaluer l'effet spécifique de masse soit par le calcul, soit en faisant appel à un autre type de mesures.

- de calculer théoriquement les coefficients d'écran.

Cependant les résultats obtenus jusqu'ici permettront de vérifier ces calculs puisque nous connaissons les relations entre les effets spécifiques et entre les effets d'écran.

VI - 3 - 2 Validité du calcul théorique de la déformation :

Nous pouvons comparer la valeur du coefficient B donnée par Ionesco-Pallas d'une part, Fradkin d'autre part, à la valeur que nous obtenons lorsque nous faisons dans l'expression :

$\beta^i E^{ns} B$
obtenue expérimentalement β^i et E^{ns}
Des valeurs de $\beta^{5675} E^{ns} B_{Nd}$ et $\beta^{5251} E^{ns} B_{Sm}$ calculées précédemment nous déduisons :

$$B_{Nd} = 4\,700 \pm 1\,500$$

$$B_{Sm} = 6\,870 \pm 1\,700$$

Or le coefficient tabulé par Ionesco Pallas vaut :

$$B_{Nd} = 10\,610 \qquad B_{Sm} = 12\,430$$

Les valeurs de B déterminées par Ionesco-Pallas ne sont pas compatibles avec les valeurs expérimentales quelle que soit la valeur de β . Nous confirmons la remarque faite par Stacey qui indique que les coefficients de déformation calculés à partir des formules de Ionesco-Pallas sont toujours trop faibles.

Si nous comparons maintenant les constantes théoriques calculées par Fradkin (40) pour les intervalles Δ (150 - 152) et Δ (152 - 154) du Samarium l'accord est bon pour l'intervalle Δ (150 - 152) puisque Fradkin obtient C_{th} (150 - 152) = 275 mk et que nous avons déduit 255 mk mais il y a désaccord pour l'intervalle Δ (152 - 154) Fradkin calculant 189 mk alors que nous en trouvons 108. Cependant ce désaccord est normal puisque Fradkin utilise la valeur du coefficient de déformation du Sm 154 obtenue par excitation coulombienne.

VII COMPARAISON DES RESULTATS AVEC LES AUTRES TYPES DE MESURE.

En dehors des techniques d'excitation coulombienne qui permettent de déterminer les coefficients de déformation il existe deux autres méthodes que nous pouvons comparer : l'étude des atomes muoniques et la mesure des transitions X entre les niveaux profonds des atomes.

VII - 1 Etude des transitions X entre les niveaux $1s_{1/2}$ $2p_{3/2}$ et $1s_{1/2}$ $2p_{1/2}$.

Cette étude a été menée récemment par Boehm et Bhattacharjee (41) dans le cas du Néodyme. Après avoir déduit l'effet de masse normal et spécifique, ces auteurs trouvent :

$$\begin{aligned} \Delta(142 - 144) &= (83,3 \pm 14,6) \text{ MeV} \\ \Delta(148 - 150) &= (109,1 \pm 13,5) \text{ MeV} \end{aligned} \quad \text{pour les transitions K } \alpha_1$$

et

$$\begin{aligned} \Delta(142 - 144) &= (80,8 \pm 9,1) \text{ MeV} \\ \Delta(148 - 150) &= (99,7 \pm 9) \text{ MeV} \end{aligned} \quad \text{pour les transitions K } \alpha_2$$

Nous en déduisons un rapport des effets de volume

$$\frac{\Delta(142 - 144)}{\Delta(148 - 150)} = (0,78 \pm 0,08)$$

et un effet spécifique de masse de $-(33 \pm 12) \text{ mk}$ pour $\lambda = 5675 \text{ \AA}$.

VII - 2 Etude des atomes muoniques.

Bardin et Al (42) ont publié pour le Néodyme les valeurs suivantes pour les transitions $1s_{1/2} - 2p_{1/2}$

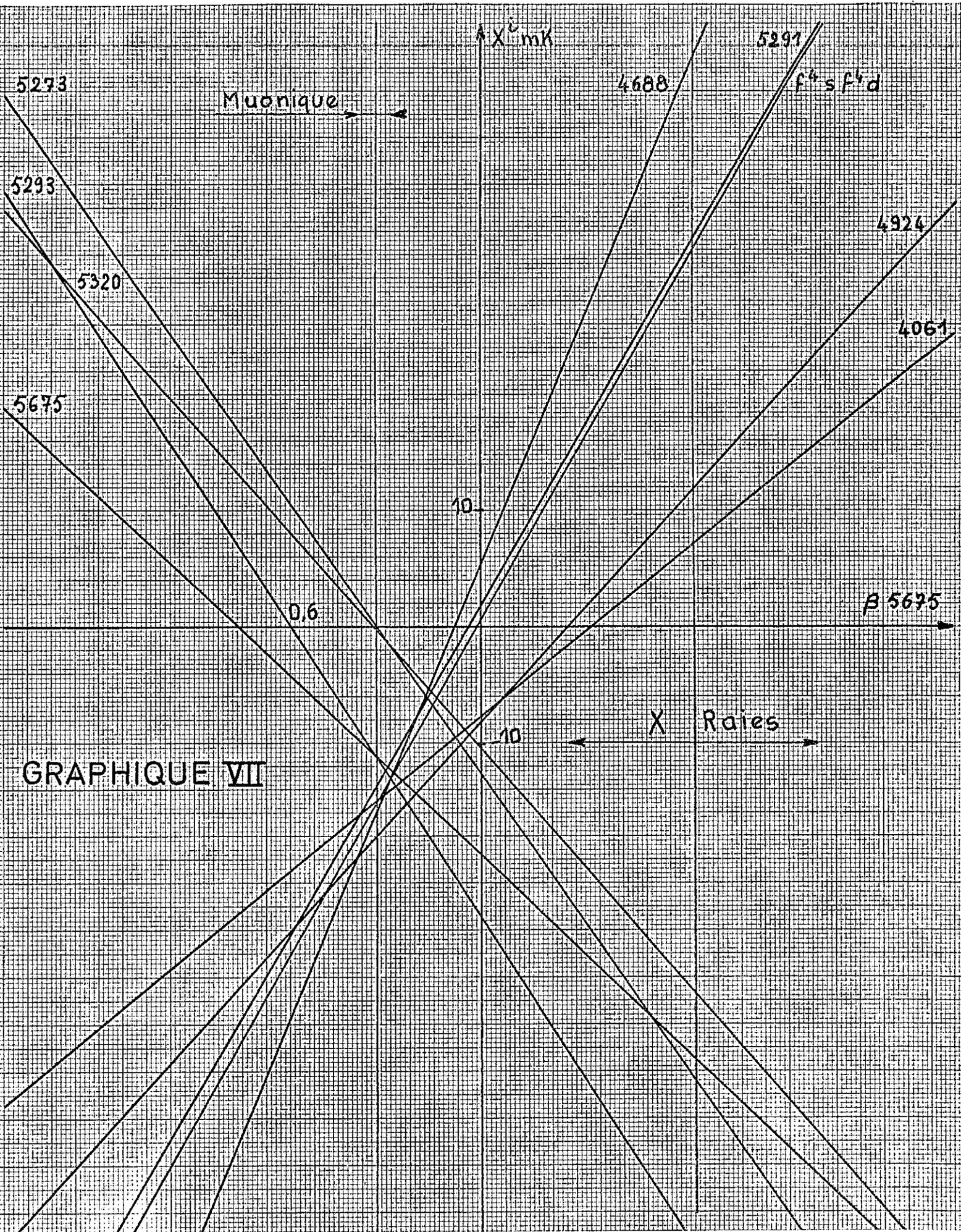
$$\begin{aligned} \Delta(142 - 144) &= 17 \pm 2 \text{ keV} \\ \Delta(144 - 146) &= 14 \pm 2 \text{ keV} \end{aligned}$$

Hansen dans son article sur le Samarium et le Néodyme utilise les valeurs obtenues par ces mêmes auteurs :

$$\begin{aligned} \Delta(146 - 148) &= 15,08 \text{ keV} \\ \Delta(148 - 150) &= 22,30 \text{ keV} \end{aligned}$$

sans indiquer la précision. Si nous admettons que la précision a été améliorée par un facteur 5 comme l'envisageait Bardin dans son article, nous en déduisons pour la raie $\lambda = 5675 \text{ \AA}$ un effet spécifique de masse de $-(11 \pm 2) \text{ mk}$.

VII - 3 Comparaison des 3 méthodes.



GRAPHIQUE VII

Le graphique VII présente de nouveau la variation des effets spécifiques pour les différentes transitions du Néodyme en fonction de β^{5675} mais sur ce graphique nous avons porté les valeurs de l'effet spécifique de masse déduites pour $\lambda = 5675 \text{ \AA}$ par les deux dernières méthodes avec leurs incertitudes.

Nous pouvons aussi résumer dans le tableau suivant les principaux résultats obtenus lorsque l'on prend comme valeur de l'effet spécifique de masse la valeur déduite par l'une ou l'autre de ces deux méthodes, en considérant que le coefficient A de l'effet de volume normal est le coefficient choisi jusqu'ici.

5675 Å

Résultats expérimentaux.

effet de volume normal + effet spécifique : 19 mk

effet de volume dû à la déformation pour $\Delta (148 - 150)$: 20 mk.

$$\frac{\beta^{5675}}{\beta^{f^4 d f^4 s}} = 0,6$$

	mesures muoniques	mesures transitions X.
Détermination de l'effet spécifique	$(-11 \pm 2) \text{ mk}$	$(-33 \pm 12) \text{ mk}$
effet de volume normal	$(30 \pm 2) \text{ mk}$	$(52 \pm 12) \text{ mk}$
β^{5675}	$0,77 \pm 0,05$	$1,37 \pm 0,3$
$\beta^{f^4 d f^4 s}$	$1,33 \pm 0,06$	$2,26 \pm 0,7$
$\gamma^{f^4 d f^4 s}$	-3 mk	$+15 \text{ mk}$

Ce tableau confirme bien que les effets de volume déduits ne sont pas cohérents mais il ne permet pas de choisir entre ces deux méthodes. Cependant il met en évidence la nécessité de considérer que le déplacement isotopique de $(f^4 d)$ n'est pas celui du coeur f^4 de $(f^4 s)$. De même il nous permet de montrer que seuls :

- le calcul de l'effet spécifique pour deux transitions,
- la détermination de l'effet de volume de l'électron s , soit par l'avancement de la classification, soit par le calcul théorique des effets d'écran, permettront d'une part d'évaluer l'effet de volume normal de toutes les transitions, d'autre part de tester la validité du coefficient A utilisé.

C O N C L U S I O N

Grâce à l'utilisation des techniques digitales et à l'étalonnage des spectres, notre montage permet actuellement de mesurer des déplacements isotopiques allant de quelques millikaysers à quelques centaines avec une incertitude de quelques dixièmes de millikaysers. La précision de nos mesures est encore limitée par les défauts de linéarité et il semble possible de gagner un facteur deux en améliorant la correction de ces défauts et en corrigeant les variations lentes de la source. La précision actuelle nous a permis de mettre en évidence une variation importante de déplacement isotopique relatif et de vérifier la constance des expressions quadriisotopiques. Nous pouvons donc rendre compte des mesures en considérant que le déplacement isotopique d'une transition est la somme de trois effets, l'effet de masse, l'effet de volume normal et l'effet de volume dû à la déformation, effets qui peuvent être du même ordre de grandeur pour certaines transitions.

C'est l'importance de la variation de la déformation nucléaire lorsque l'on passe de $N = 88$ à $N = 90$ qui permet de mettre en évidence la variation du $D I R$ pour le Néodyme, le Samarium et de calculer les relations entre les effets spécifiques de masse, les effets d'écran avec une précision convenable.

La mesure du déplacement isotopique permet aussi de contrôler la validité des coefficients de déformations déterminés par excitation coulombienne. C'est ainsi que nous avons pu montrer que le coefficient de déformation du Samarium 154 ne peut-être qu'inférieur à celui du Samarium 152. Malgré l'incertitude de notre estimation nous pouvons aussi affirmer que le coefficient B tabulé par Ionesco-Pallas et permettant de calculer la déformation est surestimé par un facteur voisin de 2, facteur correctif qui est d'ailleurs introduit par Fradkin.

La séparation de l'effet de volume normal et de l'effet spécifique de masse ne peut se faire uniquement à partir de nos mesures. Les techniques faisant appel au déplacement isotopique dans les atomes muoniques et les transitions X ne

permettent pas d'effectuer cette séparation puisqu'elles ne sont pas cohérentes entre elles. Il en résulte que seul le calcul théorique de l'effet spécifique de masse et des coefficients d'écran permettra à la fois de faire une comparaison valable entre les trois méthodes, et de calculer le coefficient A de l'effet de volume normal. Menée systématiquement pour les terres rares, cette étude permettra alors de fournir des renseignements expérimentaux sur la variation de A en fonction de N et Z, donc de tester la validité des répartitions de charge déterminées par les expériences de diffusion des électrons par les noyaux.

L'ensemble de nos résultats montre l'intérêt du déplacement isotopique comme moyen de contrôle :

- de la classification des spectres (utilisation des relations entre les effets d'écran),
- du calcul absolu de l'effet spécifique de masse (utilisation des relations expérimentales entre les effets spécifiques)
- du calcul des coefficients de déformation par excitation coulombienne (utilisation de l'effet de volume dû à la déformation)
- du calcul des répartitions de charge rendant le mieux compte des expériences de diffusion (utilisation de l'effet de volume normal).

A N N E X E - I -

REALISATION DU SYSTEME D'ETALONNAGE ET DE BALAYAGE.

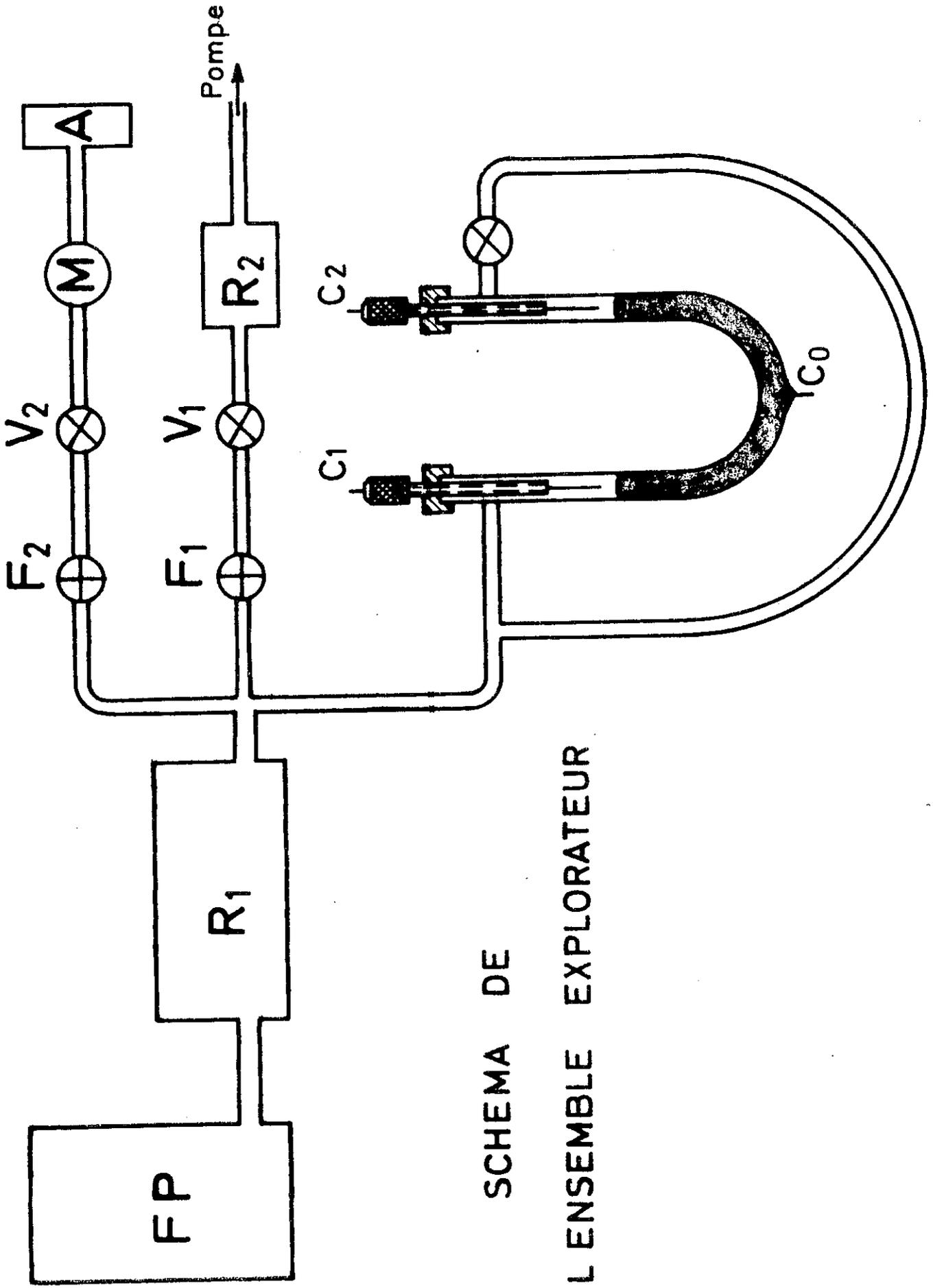
- L'interféromètre de Michelson.

Après avoir utilisé un étalon de Michelson indépendant, le bras à pression variable étant simplement relevé à la cloche du Fabry-Pérot, nous avons été amenés à incorporer l'étalon de Michelson à la cloche elle-même afin d'assurer la stabilité thermique maximum. Pour cela deux rainures sont percées dans la plaque d'acier qui constitue la base de l'enceinte, un tube de cuivre étant soudé dans une d'elle permettant d'isoler un des bras tout en assurant le contact thermique. Dans ce montage chaque bras de l'étalon est doté d'un miroir indépendant, le miroir relié à la cloche est collé à l'araldite afin de limiter au maximum les variations mécaniques dues aux changements de pression, l'autre miroir est doté de trois vis qui permettent le réglage de l'étalon. Afin d'éviter toute fuite entre les deux bras au niveau du prisme celui-ci repose sur une plaque de verre portant sur deux joints toriques. Dans ces conditions le réglage de Michelson est relativement aisé, très stable (plusieurs mois) et la profondeur de modulation peut atteindre 80 %.

- Le système de balayage.

Il peut-être représenté par le schéma ci-joint.

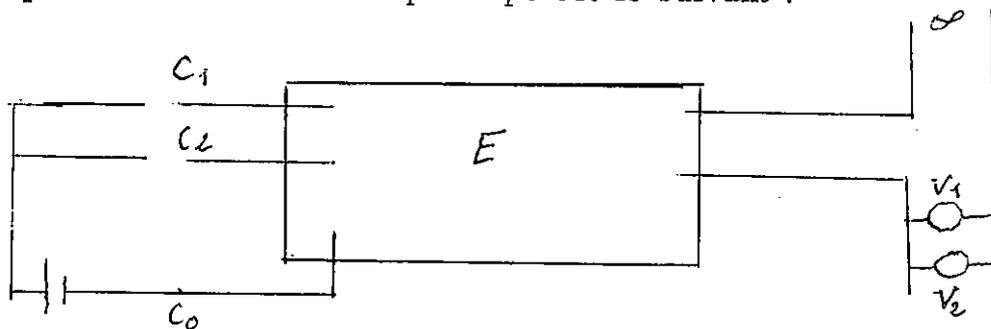
L'enceinte contenant le Fabry-Pérot et le Michelson est reliée à une réserve R_1 de volume pratiquement identique, l'ensemble étant isolé thermiquement de la pièce. Cette réserve R_1 est reliée :



SCHEMA DE
L'ENSEMBLE EXPLORATEUR

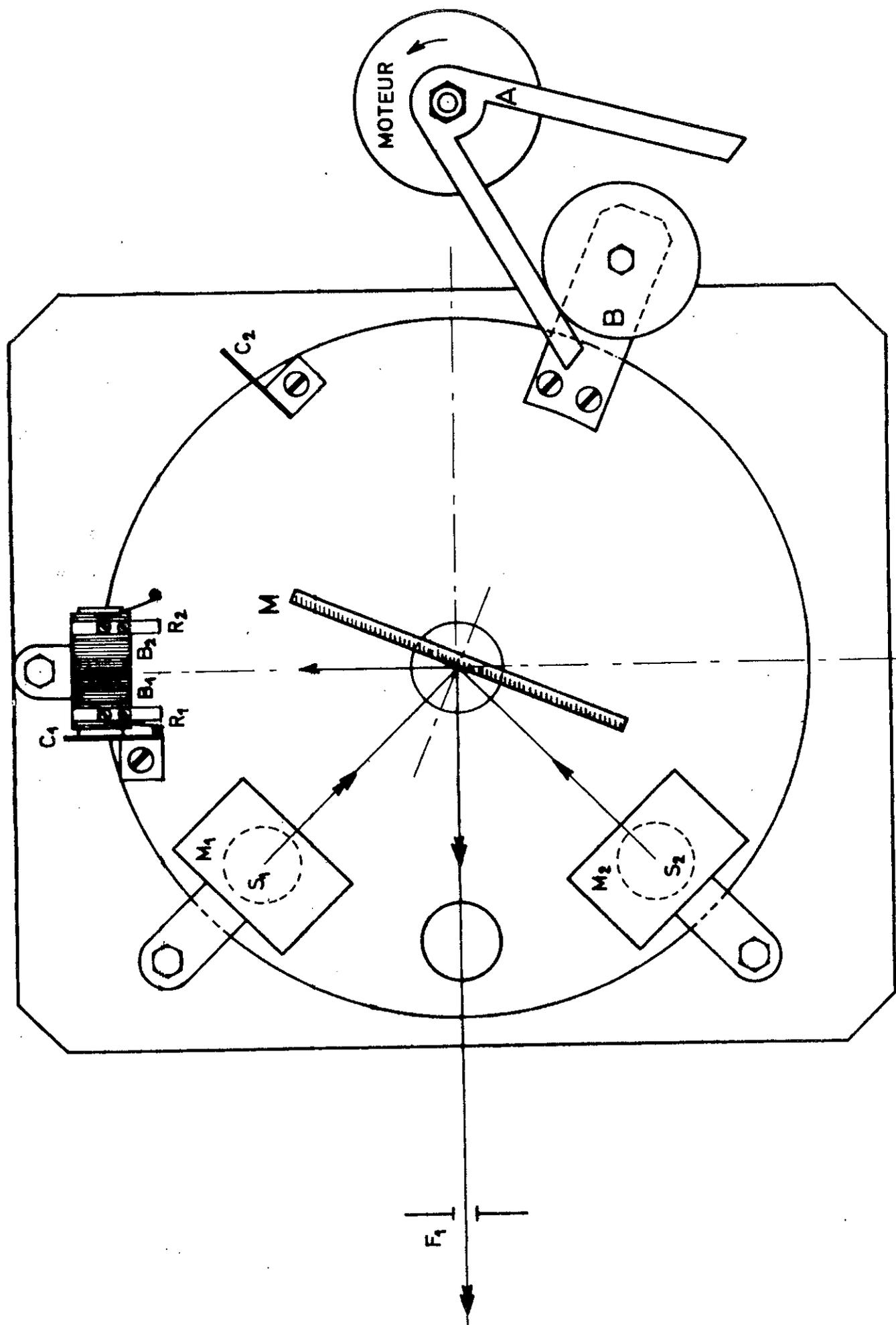
- à un manomètre à mercure à double contacts, la hauteur de ces contacts étant réglable par l'intermédiaire des vis C_1 et C_2 . Un robinet permet soit d'isoler le bras C_2 du manomètre, soit de le mettre à la même pression que C_1 .
- à une source haute pression constituée d'une bouteille d'azote comprimé A par l'intermédiaire d'une fuite Edwards F_2 , d'une vanne électrique V_2 et d'un manomètre M à double détenteurs qui permet de maintenir la pression amont à une valeur de 1,6 atmosphère.
- à une réserve de vide R_2 par l'intermédiaire de la fuite F_1 et de la vanne V_1 , R_2 étant reliée à une pompe à palette qui maintient la pression dans R_2 constamment voisine de 0.

Le manomètre à mercure est relié à un système de commande des vannes électriques dont le schéma de principe est le suivant :



E est un relais bistable qui sert d'interrupteur pour le circuit de commande des vannes. Les deux vannes fonctionnent en régime inverse : V_1 est ouverte en circuit fermé tandis que V_2 est fermée. Le choix de E pour commander les vannes permet d'éliminer les inconvénients créés par les oscillations possibles de la colonne de mercure au moment de l'inversion puisque pour qu'il y ait changement d'état du relais, il est nécessaire que le contact se fasse sur l'autre électrode.

CHANGEUR DE CATHODES



A N N E X E - II -

CHANGEUR DE CATHODES ET CHAINE DE MESURES.

- Changeur de cathodes -

Le disque portant le miroir M est mobile autour de son axe. C_1 et C_2 sont deux butées fixées sur ce disque tandis que B_1 et B_2 sont deux électro-aimants solidaires de la platine fixe. A est un bras entraîné par l'axe d'un moteur synchrone qui agit sur le bras B lié au disque pour amener suivant le sens de rotation les butées C_1 ou C_2 en contact avec B_1 ou B_2 . La liaison entre A et l'axe du moteur est à friction ce qui permet au moteur de continuer à tourner durant la mesure donc de maintenir le bras B en position, cette action étant complétée par les électro-aimants B_1 ou B_2 . R_1 et R_2 sont deux interrupteurs fermés dès que les butées C_1 et B_1 ou C_2 et B_2 sont en contact.

Le fonctionnement du système est le suivant :

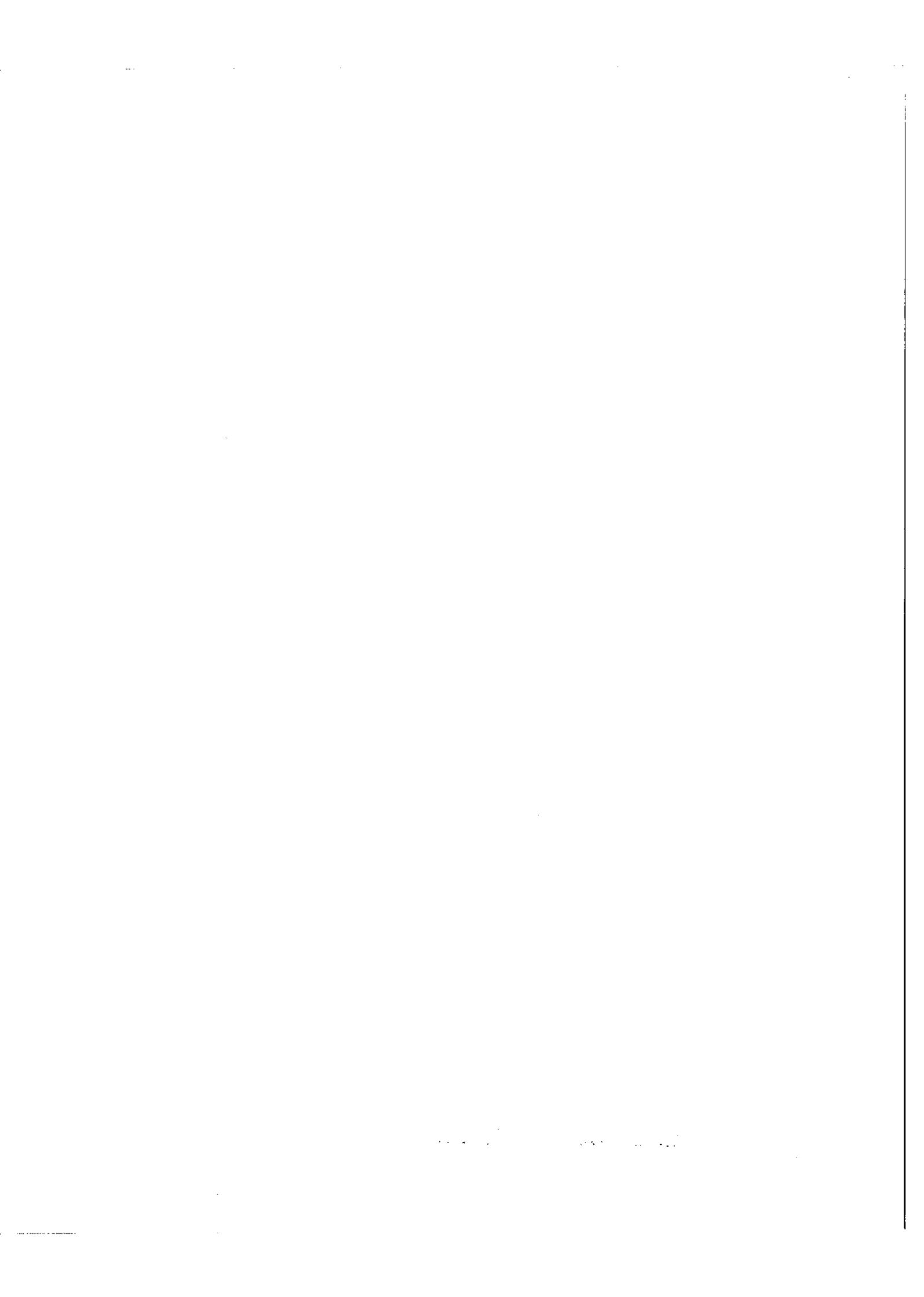
- dans le cas de figure, le sens de rotation du moteur est tel que C_1 soit appliqué sur B_1 , le relais R_1 est fermé, le courant passe dans la bobine B_1 et le faisceau issu de la cathode (1) tombe sur la fente d'entrée du monochromateur.

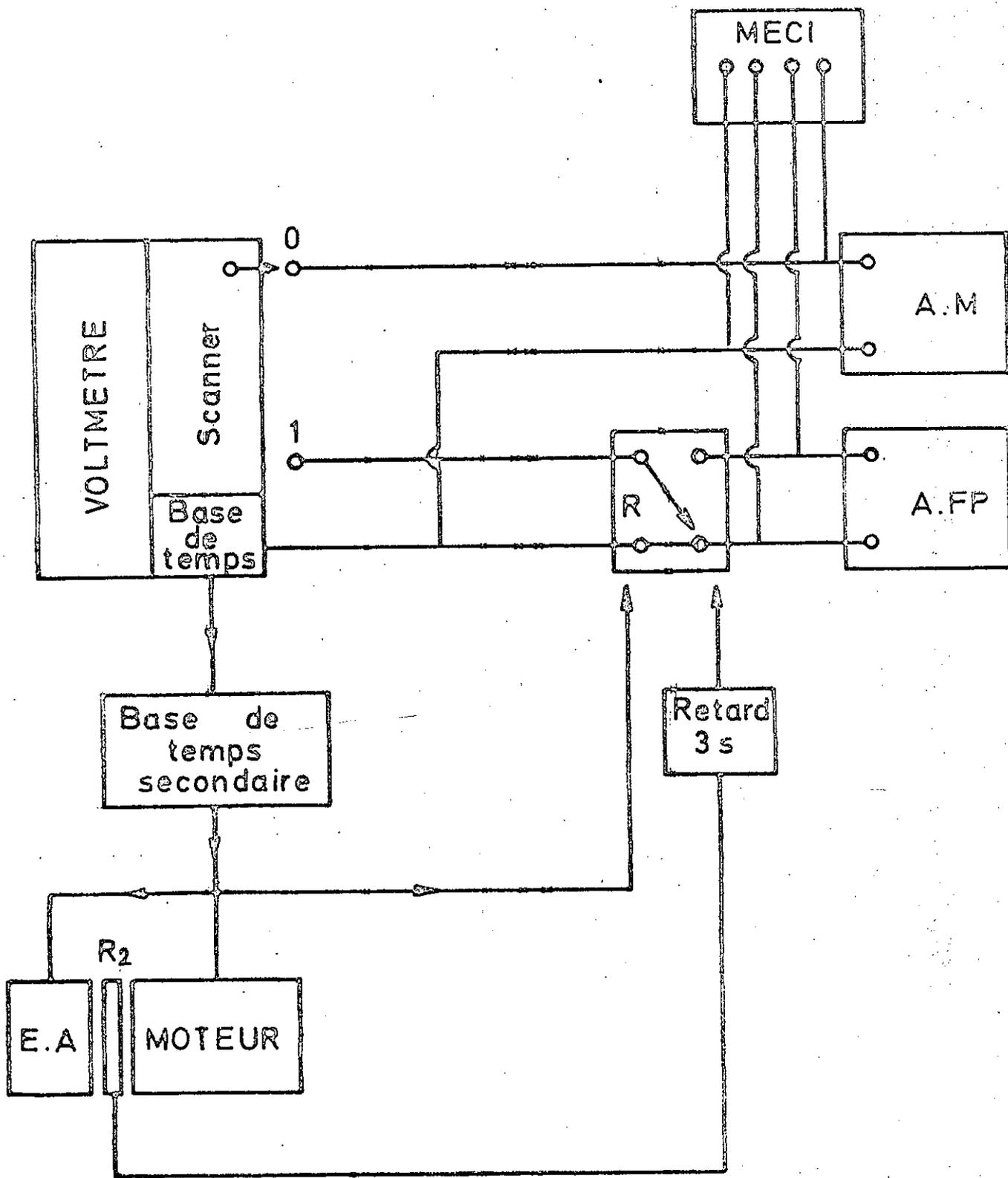
- pour passer sur la cathode (2) il faut inverser le sens de rotation du moteur, alimenter la bobine B_2 . Dès que le contact est réalisé, R_2 est fermé.

- Chaînes de mesures.

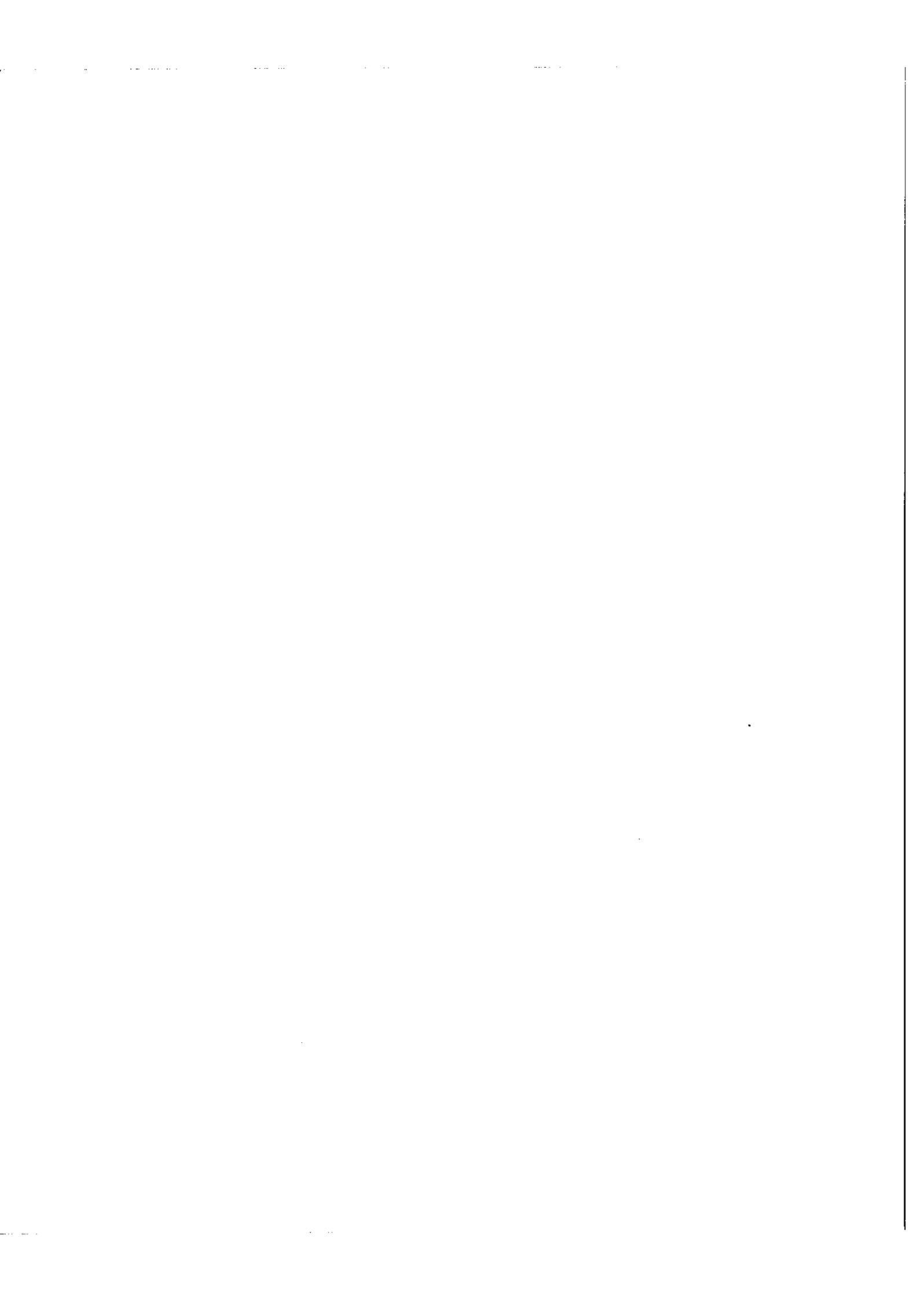
Le voltmètre digital et l'enregistreur potentiométrique .MECI sont connectés en parallèle aux bornes des deux adaptateurs d'impédance mesurant les franges (AM) et les valeurs Fabry-Pérot (A. FP). Un relais bistable R est placé entre le voltmètre et l'adaptateur Fabry-Pérot.

L'exploration des voies se fait par l'intermédiaire du scanner qui déclenche les mesures à intervalles de temps égaux fixés par sa base de temps. Simultanément nous utilisons cette base de temps comme référence pour une base secondaire qui commande :

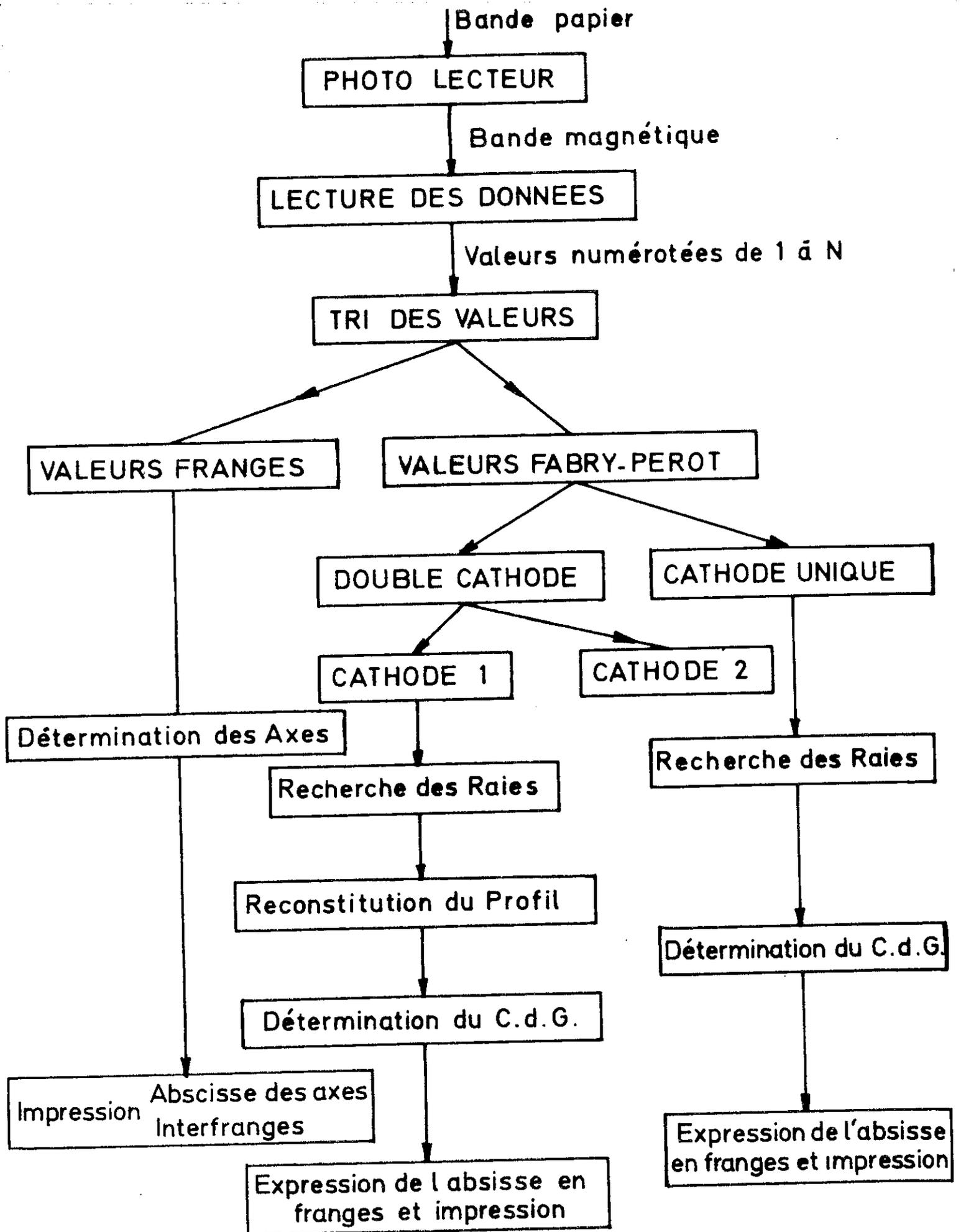




CHAINE DE MESURES .



- Le moteur du changeur de cathode,
 - les bobines B_1 ou B_2 ,
 - la mise à 0 du voltmètre sur les voies du Fabry-Pérot par l'intermédiaire de R.
- Lorsque le moteur amène en contact les butées un des relais R_1 ou R_2 est fermé et l'impulsion déclenchée est transmise avec un retard égal à la constante de temps de l'adaptateur au : relais R, permettant ainsi la mesure. Par ce système nous commandons donc le changement de cathodes et nous empêchons le voltmètre de prélever des mesures durant la rotation.



A N N E X E - III -

LECTURE ET EXPLOITATION DES DONNEES.

L'enregistrement des données se fait simultanément sur papier (enregistrement MECI) et sur bande perforée. Ce sont les données stockées sur cette bande perforée que nous utilisons pour mesurer les déplacements isotopiques mais l'enregistrement classique nous permet de contrôler les erreurs et dérèglages possibles en cours d'enregistrement (impulsions parasites, instabilité des sources). Le diagramme ci-joint donne le principe des opérations successives, l'écriture des programmes étant dûes à C. Bauche Arnoult et P. Luc.

La détermination des axes des franges se fait par calcul du centre de gravité de la portion de frange enregistrée au dessus d'un certain seuil fixé suivant l'enregistrement. Cette méthode est précise et nous avons vu au chapitre II qu'elle permettait de définir les axes des franges à 10^{-3} près.

La détermination des axes des raies se fait directement dans le cas de l'enregistrement d'une seule cathode mais exige la reconstitution du profil lorsqu'on utilise le changeur de cathodes. Cette opération est effectuée en utilisant un polynôme du 18e degré, les coefficients étant optimisés par la méthode des moindres carrés.

TABLE DES MATIERES.

	<u>Pages.</u>
INTRODUCTION	1
 <u>CHAPITRE - I</u> 	
CALCUL THEORIQUE DU DEPLACEMENT ISOTOPIQUE.	
I - INTRODUCTION	2
II - HYPOTHESE DU CHAMP CENTRAL	2
III - STRUCTURE HPERFINE ET DEPLACEMENT ISOTOPIQUE DEPLACEMENT ISOTOPIQUE ABSOLU, DEPLACEMENT ISOTOPIQUE RELATIF.	4
IV - EFFET ISOTOPIQUE DE MASSE	5
IV - 1 Effet de masse normal ou effet de Bohr	6
IV - 2 Effet de masse spécifique	6
IV - 3 Déplacement isotopique relatif de masse	7
V - EFFET ISOTOPIQUE DE VOLUME	7
V - 1 Le déplacement isotopique de volume est le même pour tous les niveaux d'une configuration.	7
V - 2 Expression de l'énergie d'interaction coulombienne protons électrons	8
V - 3 Déplacement isotopique absolu d'un électron n l j	9
V - 4 Déplacement isotopique pour un niveau	16
V - 5 Détermination de $(C_{+}^{\circ})^2$	16
VI - DEPLACEMENT ISOTOPIQUE D'UN NIVEAU	17
VI - 1 Déplacement isotopique absolu	17
VI - 2 Déplacement isotopique relatif.	18
VI - 3 Changement de notation	18

VII - LE DEPLACEMENT ISOTOPIQUE MESURE - DEPLACEMENT ISOTOPIQUE D'UNE TRANSITION.	18
VIII- CALCUL DU DEPLACEMENT ISOTOPIQUE DES NIVEAUX A PARTIR DES MESURES EXPERIMENTALES	20
IX - CONSTANTE QUADRIISOTOPIQUE.	22
X - LE DEPLACEMENT ISOTOPIQUE ET LES MESURES NUCLEAIRES	23

CHAPITRE - II -

TECHNIQUES EXPERIMENTALES ET LIMITES D'ERREUR	
I - INTRODUCTION	25
II - DESCRIPTION DES ENREGISTREMENTS - LA METHODE DE MESURE.	27
II - 1 Utilisation d'une seule cathode et d'une raie de mesure	27
II - 2 Utilisation de deux cathodes avec substitution de l'une à l'autre un intervalle entre ordre sur deux.	27
II - 3 Utilisation de deux cathodes avec substitution de l'une à l'autre de manière continue.	27
III - LINEARITE DU BALAYAGE - ETALONNAGE DES SPECTRES	28
III.1 Définitions	28
III.2 Fuite utilisée au laboratoire	29
III.3 Utilisation d'un interféromètre de Michelson	29
III.4 Recherche de la meilleure zone de linéarité de la fuite et des meilleures conditions d'enregistrement	29
III.5 Intérêt de la fuite va-et-vient	31
IV - DETERMINATION DE L'AXE DES RAIES	31
IV - 1 Isotopes pairs-pairs	31
1.1. Vitesse de balayage	31
1.2. Influence de la non linéarité	32
1.3. Erreurs de mesure	33

IV - 2 Isotopes possédant un spin	33
IV - 3 Utilisation des techniques digitales pour l'enregistrement et l'exploitation des données	34
3.1. Principe	34
3.2. Exploitation des données	34
VI - ERREURS DUES AUX SOURCES ET A LA FONCTION D'AP- PAREIL.	36
VI - 1 Les erreurs aléatoires	36
1.1. Variation de l'intensité des sources au cours du temps	36
1.2. Déréglage de la fonction d'appareil.	37
VI - 2 Les erreurs systématiques.	37
2.1. Erreurs dues aux conditions d'excitation des sources	37
2.2. Erreurs systématiques dues à l'utilisation de deux sources séparées.	37
2.3. Erreurs dues à l'enrichissement isotopique insuf- fisant.	38
VII - LIMITE D'ERREUR.	38

CHAPITRE - III -

I - INTRODUCTION	39
II - L'URANIUM	39
II - 1 Les isotopes	39
II - 2 Choix des raies à étudier	40
II - 3 Technique expérimentale	40
II - 4 Les résultats	41
III - LE NEODYME	42
III - 1 Caractéristiques et intérêt du Néodyme	42
III - 2 Les isotopes et les techniques expérimentales	43
III - 3 Les résultats	43
III - 4 Calcul des constantes quadriisotopiques	45

III - 5 Calcul des relations entre les effets spécifiques de masse de chaque transition	46
III - 6 Relations entre les effets de volume de chaque transition étudiée	46
IV - L'YTTERBIUM.	49
IV - 1 L'intérêt	49
IV - 2 Les mesures	49
IV - 3 Les résultats	50
V - LE GADOLINIUM	50
V - 1 Caractéristiques et intérêt du Gadolinium	50
V - 2 Les isotopes et les techniques expérimentales	51
V - 3 Les résultats	53
V - 4 Calcul des constantes quadriisotopiques	53
VI - INTERPRETATION DES RESULTATS.	53
VI - 1. Evaluation de l'effet de volume dû à la déformation	54
1.1. Comparaison des valeurs des coefficients de déformation mesurées par excitation coulombienne et des résultats obtenus par déplacement isotopique	55
1.2. Calcul de l'effet de volume dû à la déformation pour le Néodyme et le Samarium.	57
VI - 2. Détermination de l'effet spécifique et de l'effet de volume normal.	60
VI - 3 Discussion des résultats obtenus.	63
3.1. Importance de l'effet spécifique de masse.	63
3.2. Validité du calcul théorique de la déformation.	64
VII - COMPARAISON DES RESULTATS AVEC LES AUTRES TYPES DE MESURE.	64
VII - 1 Etude des transitions X entre les niveaux $1s\ 1/2\ 2p\ 3/2$ et $1s\ 1/2\ 2p\ 1/2$.	65
VII - 2 Etudes des atomes muoniques.	65
VII - 3 Comparaison des 3 méthodes.	65

- B I B L I O G R A P H I E -

- (1) H. KOPFERMANN : Nuclear Moments, Academic Rev New-York (1958)
- (2) J. P. VINTI : Phys Rev 16,1 120 (1939)
- (3) D. S. HUGHES et C. ECKART Phys Rev 44,538, (1930)
- (5) J. BAUCHE communication personnelle
- (6) J. BAUCHE : à paraître.
- (7) K. E. BROCH, Arch-Math. Naturvidenskab 48,25 (1945)
- (8) IONESCO-PALLAS : Ann Phys. 7,8,9 (1961)
Ann Phys. 7, 10, 121 (1962)
- (9) AR. BODMER : Nucl. Phys. 9, 371 (1959)
- (10) AR. STRIGANOV, V. A. KATULIN et V. V. ELESEEV, Optics and Spectroscopy, 12, n° 2, (1962) p. 91.
- (11) W. KNING, J. Opt. Soc. Amer, 53, (1963), P. 638.
- (12) 1. P. BRIX et H. KOPFERMANN : Rev Mod. Phys. 30, 517, (1958)
- (12) 2. E. L. B. ELTON, Rev. Mod. Physics 30, 557, (1958)
- (13) P. JAQUINOT et C. DUFOUR - J. Recherches C. N. R. S. (1948) - 2 - 91.
R. CHABBAL et P. JAQUINOT Rev. opt. 1961 - 40 - 157.
- (14) T. BEN MENA thèse ORSAY (1967)
- (15) R. CHABBAL thèse PARIS (1957)
- (16) H. T. DUONG, S. GERSTENKORN J, M HELBERT. Rev. Phys. Appliquée tome 2, p. 249 (1967)
- (17) J. M. GAGNE - S. GERSTENKORN et J. M. HELBERT.
- (18) D. A. JACKSON et D. H. TUAN, Proc. Roy. Soc A. 291,9 (1966)
- (19) R. J. CHAMPEAU : Physics Letters. Vol 26 A, 7 , p. 355 (1968)
- (20) J. E. HANSEN, A. STEUDEL et H. WALTHER. ZEITSCHRIFT für Physik 203, 296 (1967)
- (21) DECKER (communication colloque Caen (oct. 1968)
- (22) DIRINGER, M. (1965) Ann Phys 10. 89.
- (23) S. GERSTENKORN, J. M. HELBERT et R. CHABBAL
C. R. Acad. Sc. Paris, t. 261 p. 261 (1965)
- (24) P. R. RAO et G. GLUCK, Proc. Roy. Soc. A. 277 p. 540 (1964)

- (25) G. NOLDEKE - ZEITSCHRIFT für Physik. Bd 143, S. 274 (1955)
- (26) J. BLAISE. Annales Physiques Paris (1958) 1 019.
- (27) S. GERSTENKORN. thèse. Paris (1962) .
- (28) G. GLUCK thèse . Paris.
- (29) W. E. ALBERTSON, G. R. HARRISON et J. R. NALLY Phys. Rev. 61 167 (1942)
- (30) J. F. WYART. thèse 3e. cycle ORSAY (1968)
- (31) J. CHAIKO . Optika i Spektroskopiya 18 , 2, 351 (1965)
- (32) J. SCROSS. J. O. S. A. 53,2, 298, (1963)
- (33) H. KOPFERMANN, L. KRUGER et A. STEUDEL. An. der Physik 6 Bd 20 (1957)
- (34) K. MURAKAWA, Phys. Rev. 96, 1543 (1954)
- (35) P. N. STACEY. Phys. Lett 20 644 (1966)
- (36) P. H. STELSON Nuclear Data section A. Vol 1 Dec. 65
- (37) K.F SMITH et P. J. UNSWORTH Proc. Phys. Soc 86. 1249 (1965)
- (38) A. S. MELIGY, STADROS et M. A. EL. WAHAB Nuclear Physics 16 - 99 (1960)
- (39) P. BRIX et H. KOPFERMANN - ZEITSCHRIFT für Physik, Bd 126. S. 344 (1949)
- (40) E. E. FRADKIN Soviet Physics . JETP. Vol 15 - 3.550 (1962)
- (41) S. K. BHATTACHERJEE, F. BOEHM, et P. LEE (to be published)
- (42) T. T. BARDIN et Al. Phys. Rev. Letters Vol 16 P. 718 (1966).

