

SPECTROSCOPIE ATOMIQUE. — *Relaxation nucléaire de  $^{199}\text{Hg}$  sur des parois de silice fondue. Effet d'une irradiation ultraviolette.* Note (\*) de MM. CLAUDE COHEN-TANNOUJJI et JEAN BROSSEL, présentée par M. Alfred Kastler.

L'irradiation ultraviolette intense des parois de silice fondue de la cellule de résonance raccourcit considérablement les temps de relaxation nucléaire de l'isotope  $^{199}\text{Hg}$  lors des collisions sur la paroi.

Les méthodes de pompage optique, appliquées aux isotopes impairs du mercure (<sup>1</sup>),  $^{199}\text{Hg}$  et  $^{201}\text{Hg}$ , permettent d'aborder des problèmes de relaxation *nucléaire* en phase gazeuse à des pressions extrêmement basses ( $10^{-5}$  à  $10^{-4}$  mm de mercure). Pour l'isotope  $^{201}\text{Hg}$ , dont le noyau possède un moment quadropolaire (spin  $I = 3/2$ ), le mécanisme de relaxation est bien compris : il réside dans le couplage entre le moment quadropolaire nucléaire et les gradients de champ électrique apparaissant au niveau du noyau lors de l'adsorption de l'atome sur la paroi [(<sup>1</sup>), (<sup>2</sup>)]. La relaxation de l'isotope  $^{199}\text{Hg}$ , qui ne possède pas de moment quadropolaire (spin  $I = 1/2$ ) est, par contre, beaucoup plus complexe (<sup>1</sup>), par suite vraisemblablement de l'intervention simultanée de plusieurs mécanismes d'importance comparable. Nous avons remarqué, au cours d'études expérimentales sur le cycle de pompage optique de  $^{199}\text{Hg}$ , que l'irradiation ultraviolette prolongée des parois de silice fondue de la cellule de résonance par le faisceau de pompage, raccourcissait les temps de relaxation nucléaire de cet isotope. Nous avons procédé à une étude de certains aspects de ce phénomène, dont nous présentons ci-dessous les résultats.

La première étude a porté sur la variation du temps de relaxation transversal *thermique*,  $\theta_2$ , en fonction de la durée  $t$  de l'irradiation ultraviolette. L'intensité lumineuse est choisie la plus forte possible de façon à avoir une variation importante de  $\theta_2$ . Les parois de la cellule sont en silice fondue (qualité « ultrasil »). Le mélange isotopique est enrichi à 70 % en  $^{199}\text{Hg}$ . La fréquence de résonance magnétique est de 6400 Hz. Pour déterminer  $\theta_2$ , nous utilisons une méthode décrite en détail par ailleurs (<sup>3</sup>) et basée sur la modulation, à la fréquence de Larmor, de la rotation Faraday paramagnétique de la vapeur orientée, observée dans une direction perpendiculaire à celle du champ magnétique  $H_0$ . Utilisant les propriétés de la dispersion anormale, cette méthode de mesure est valable même lorsqu'on utilise pour le faisceau de détection des fréquences optiques *non résonantes* : ceci permet de supprimer toute « relaxation optique ». La mesure de  $\theta_2$  se fait en quelques secondes au moyen d'une *seule* transitoire, sans qu'il soit nécessaire d'extrapoler à intensité lumineuse nulle. Le temps de mesure est réduit au minimum, ce qui est très important pour l'étude du phénomène décrit ici. (Avec une autre méthode, la variation de  $\theta_2$  au cours de la mesure elle-même ne serait pas néglig-

geable à cause de l'intensité de l'irradiation.) La partie AB de la figure 1 représente l'évolution de  $\theta_2$  en fonction de la durée d'irradiation  $t$ . Partant d'une valeur initiale,  $\theta_2^i \simeq 4s$ ,  $\theta_2$  décroît assez rapidement. (Si l'on prolonge la durée d'irradiation au-delà du point B, on trouve que  $\theta_2$  tend vers une limite  $\theta_2^f$ .)

Nous avons également étudié la façon dont la relaxation évolue, une fois l'irradiation arrêtée (partie BC de la figure 1). La cellule n'est éclairée que pendant les instants très brefs nécessaires pour effectuer les mesures de  $\theta_2$ . Nous voyons que la cellule présente une évolution réversible et récupère ses propriétés initiales :  $\theta_2$  croît et retourne à la valeur  $\theta_2^i$ . Pour

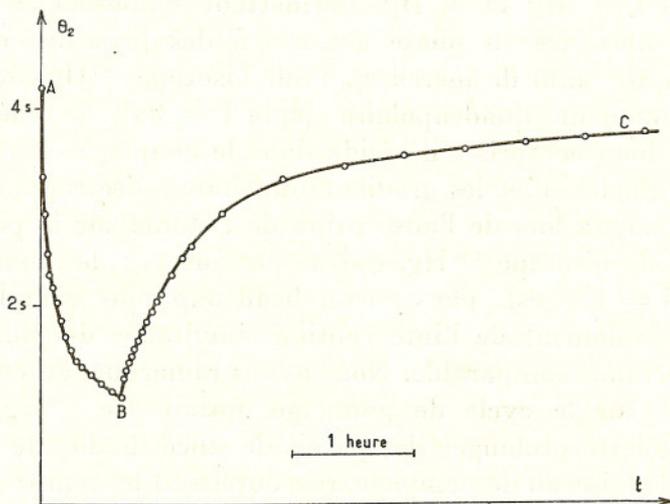


Fig. 1.

étudier de façon plus précise la cinétique de cette « récupération », nous analysons en coordonnées semi-logarithmiques (fig. 2) la variation avec  $t$  de la quantité  $(1/\theta_2) - (1/\theta_2^i)$  qui représente la partie de la relaxation provenant de l'irradiation ultraviolette. Nous voyons que  $1/\theta_2$  tend vers  $1/\theta_2^i$  avec plusieurs constantes de temps :

$$\frac{1}{\theta_2} - \frac{1}{\theta_2^i} = \sum_j C_j e^{-\frac{t}{\tau_j}}$$

La courbe de la figure 2 fait intervenir au moins trois constantes de temps  $\tau_1 \simeq 2$  mn,  $\tau_2 = 19$  mn,  $\tau_3 = 2$  h 30 mn. La même étude peut être faite en ce qui concerne le processus de « détérioration » (partie AB de la figure 1 avec irradiation prolongée au-delà du point B). On trouve que  $1/\theta_2$  tend vers sa valeur limite  $1/\theta_2^f$  avec les trois mêmes constantes de temps  $\tau_1, \tau_2, \tau_3$  :

$$\frac{1}{\theta_2} - \frac{1}{\theta_2^f} = \sum_j d_j e^{-\frac{t}{\tau_j}}$$

Nous avons observé les mêmes phénomènes sur trois cellules différentes. D'une cellule à l'autre, l'importance des effets de l'irradiation, le nombre

de constantes de temps différentes  $\tau_j$  et leurs valeurs respectives varient, mais l'allure générale du phénomène reste la même.

L'étude précédente prouve que l'irradiation ultraviolette fait apparaître sur la surface des parois de silice fondue des centres désorientateurs, vraisemblablement des centres paramagnétiques, qui jouent un rôle important dans la relaxation des noyaux de  $^{199}\text{Hg}$ . Les constantes de temps  $\tau_j$  qui apparaissent aussi bien lors du processus de détérioration que lors du processus de récupération s'interprètent comme les « durées de vie » de ces centres. Le fait qu'on trouve plusieurs constantes de temps différentes laisse penser qu'il apparaît plusieurs types de centres différents. Le phénomène que nous décrivons ici peut être rapproché d'un autre,

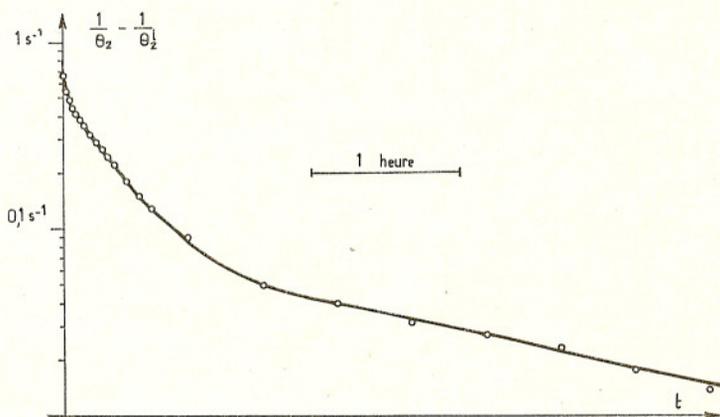


Fig. 2.

décrit par ailleurs <sup>(\*)</sup>. Le rendement photoélectrique d'une surface de silice fondue est considérablement *augmenté* si l'on a, au préalable, soumis cette photocathode à une irradiation ultraviolette intense. Cet effet d'augmentation s'atténue ensuite au cours du temps avec des constantes de temps de l'ordre de l'heure, c'est-à-dire tout à fait comparables à celles apparaissant sur la figure 1 : il nous paraît plausible de supposer que ce sont les mêmes centres, produits par l'irradiation ultraviolette, qui sont responsables et de l'augmentation du pouvoir photoélectrique et de celle du pouvoir désorientateur de la paroi.

Signalons enfin qu'on observe une évolution lente de la cellule sur des périodes de temps beaucoup plus longues (de l'ordre de plusieurs jours). Le temps de relaxation d'une cellule non irradiée s'allonge au cours du temps, assez rapidement au début (immédiatement après le remplissage), puis de plus en plus lentement.

(\*) Séance du 15 juin 1964.

(<sup>1</sup>) B. CAGNAC, *Thèse*, Paris, 1960; *Ann. Phys.*, 6, 1961, p. 467.

(<sup>2</sup>) C. COHEN-TANNOUDJI, *J. Phys. Rad.*, 24, 1963, p. 653.

(<sup>3</sup>) J. MANUEL et C. COHEN-TANNOUDJI, *Comptes rendus*, 257, 1963, p. 413.

(<sup>4</sup>) P. HARTMANN, *Comptes rendus*, 257, 1963, p. 2447.

---

166.905. — Imp. GAUTHIER-VILLARS & C<sup>ie</sup>, 55, Quai des Grands-Augustins, Paris (6<sup>e</sup>)

Imprimé en France.