

LA LOI FONDAMENTALE DE TRANSFORMATION DES RADIOÉLÉMENTS ET LES CONSTANTES RADIOACTIVES*

La découverte de la radioactivité et des transformations radioactives nous a fait connaître une série d'éléments chimiques auxquels fait défaut cette stabilité considérée, jusque là, par les chimistes comme le caractère fondamental des corps simples, mais qui, au contraire, sont soumis à une loi d'évolution, aussi simple dans sa forme que mystérieuse en ce qui concerne sa signification profonde. C'est la *loi exponentielle* de la transformation des radioéléments.

Conformément à cette loi, chaque radioélément se transforme de telle manière que le nombre d'atomes transformés par unité de temps est, à chaque instant, une fraction déterminée du nombre N d'atomes existants au temps t , de sorte que l'on peut écrire:

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N$$

où λ est un coefficient nommé *constante radioactive*, indépendant du temps, mais caractéristique de l'élément considéré. De la relation ci-dessus on déduit:

$$N = N_0 e^{-\lambda t}$$

où N_0 est le nombre d'atomes existant à l'origine des temps et e la base des logarithmes naturels.

Ce n'est cependant pas dans la forme de cette loi que réside la différence profonde qui existe entre les transformations des radioéléments et les réactions chimiques. On connaît, en effet, en chimie, des exemples de réactions dites *monomoléculaires et irréversibles* qui suivent une loi semblable; c'est ce qui a lieu, par exemple, pour l'inversion du sucre dans une solution qui contient des ions d'hydrogène.

Malgré cette analogie, les phénomènes considérés forment deux classes entièrement différentes 1°) parce que, dans le cas d'un radioélément, la trans-

* [Mme P. Curie, Livre Jubilaire de M. Kamerlingh Onnes, 11 novembre 1922—ed.]

formation porte sur l'atome et non sur la molécule; 2°) parce que les coefficients caractéristiques des réactions chimiques qui s'expriment par une loi exponentielle dépendent des conditions expérimentales, en particulier de la température, tandis que les constantes radioactives se sont montrées jusqu'à présent indépendantes de toute influence extérieure.

Cette qualité d'invariance des constantes radioactives dans des conditions d'expérience très variées a été observée dès les premières années après la découverte de la radioactivité et a conduit Pierre Curie à envisager ces constantes (plus exactement leurs inverses ou *vies moyennes*) comme *des étalons de temps absolus*. Il faut toutefois observer que, même si l'indépendance des constantes radioactives du monde extérieur restait entière en ce qui concerne un système de référence lié au corps radio-actif, ces constantes devraient, d'après la théorie de relativité, prendre des valeurs différentes, suivant que le corps radioactif est immobile par rapport à l'observateur ou bien se déplace, par rapport à celui-ci, avec une vitesse comparable à celle de la lumière.

La loi exponentielle qui régit une réaction chimique monomoléculaire irréversible ou une transformation radioactive est communément interprétée comme une *loi de hasard*. C'est le hasard qui détermine le choix fait à chaque instant entre les molécules ou atomes qui devront se transformer pendant un intervalle de temps déterminé et ceux qui resteront inaltérés. Dans cette manière de voir, le coefficient défini plus haut mesure la *probabilité de la transformation*, cette probabilité étant la même pour chaque molécule ou atome d'une certaine espèce à chaque instant de leur existence.

Dire qu'un phénomène est l'effet du hasard, c'est dire que nous en ignorons les origines profondes, mais que, malgré cette ignorance, nous avons pu constater par l'application de lois de statistique bien connues, que la production du phénomène obéit bien à la condition de probabilité constante ci-dessus énoncée. Cette condition appliquée aux transformations irréversibles monomoléculaires ou monoatomiques conduit à la loi exponentielle, laquelle cependant ne doit pas être considérée comme une loi rigoureusement applicable, mais seulement comme une loi approchée, réalisée d'autant plus exactement que le nombre d'éléments atteints par la transformation est plus grand.

Le hasard qui intervient pour déterminer la transformation peut dépendre d'événements extérieurs à l'élément qui se transforme ou liés à la structure interne de celui-ci. Le hasard peut donc être qualifié *d'externe* ou *d'interne*.

Parmi les concours de circonstances d'origine externe, l'influence de la température est particulièrement à considérer. On sait, en effet, que la température mesure l'énergie d'agitation moléculaire, et qu'avec la température augmente le nombre et la violence des chocs subis dans l'unité de temps par l'élément susceptible de se transformer. La transformation peut donc être déterminée par l'intervention de chocs particulièrement efficaces.

Conformément à ce point de vue, le coefficient de réactions chimiques monomoléculaires irréversibles telles que l'inversion du sucre, augmente rapidement avec la température.

On aurait pu prévoir une variation analogue pour les constantes radioactives. L'expérience, cependant, a jusqu'ici donné à ces prévisions une réponse négative.

Remarquons, tout d'abord, que l'intensité de rayonnement d'une substance radioactive simple est proportionnelle à la vitesse de transformation, de sorte que la variation de l'une de ces quantités entraîne la variation de l'autre. Ainsi, pour juger de l'influence de la température sur les constantes radioactives, on peut faire porter les mesures, soit sur la loi naturelle qui définit, en fonction du temps, le rayonnement d'un radioélément, ou d'un mélange de radioéléments, dont on fait varier la température, — soit sur la valeur de l'intensité du rayonnement dans des conditions déterminées auxquelles on superpose une variation de température.

Henri Becquerel a observé la décharge d'un électroscope sous l'influence du rayonnement de l'uranium que l'on sait être pratiquement constant au cours d'années et n'a observé aucune différence quand la température de l'uranium variait de 0° à 70°. Pierre Curie fit des observations sur du chlorure de baryum radifère placé dans un tube que l'on pouvait entourer d'un bain d'air liquide; le rayonnement émis par le sel actif et mesuré par l'ionisation de l'air produite à une certaine distance s'est montré le même pour le sel à la température ordinaire ou à la température de l'air liquide. Mr. Dewar a fait des constatations analogues en opérant avec de l'air liquide et de l'hydrogène liquide. On ne peut vraisemblablement attribuer à ces premières expériences une précision supérieure à 1%.

Une série d'expériences précises a été faite en 1903 par P. Curie pour étudier l'influence de la température sur la décroissance de l'émanation du Radium, entre la température de l'air liquide et 450°. Un tube de verre scellé contenant l'émanation était d'abord soumis à une série de mesures pendant plusieurs jours, il était ensuite maintenu à une température donnée pendant quelques jours, puis reporté à nouveau dans l'appareil de mesures à la température ordinaire. Les mesures ont prouvé que la décroissance, à l'intérieur d'un four chauffé ou d'un bain froid, avait suivi exactement la même loi que si le tube avait été maintenu constamment à la température ordinaire.

Des mesures faites par Mr. Rutherford ont montré que la loi de décroissance de l'émanation du thorium n'est pas altérée à la température de l'air liquide.

Le dépôt actif du radium dont la composition est compliquée a été soumis à de nombreuses investigations, spécialement aux températures élevées. D'anciennes expériences de P. Curie et J. Danne avaient laissé supposer une influence de la température sur la constante radioactive du radium C, mais ces expé-

riences ont reçu ensuite une interprétation qui élimine l'intervention de la température. D'autres expérimentateurs ont observé dans certains cas des variations du rayonnement du dépôt actif avec la température. Mais il semble démontré, par l'ensemble des recherches, qu'il n'existe aucun effet de la température jusqu'à 1500° sur les constantes radioactives du radium *B* et du radium *C*, et que les variations observées étaient toujours attribuables à des phénomènes d'importance secondaire.

Ajoutons que le même sort a été réservé à tous les autres essais destinés à mettre en évidence une influence des conditions d'expériences sur les constantes radioactives. Un éclaircissement intense, une très forte pression, un champ magnétique puissant, les réactions chimiques les plus énergiques sont sans effet. Le rayonnement n'est pas modifié selon que la substance active se trouve à la surface de la terre ou au fond d'une mine de grande profondeur, et selon que la mesure est faite à midi ou à minuit: par conséquent la position de la matière active relativement à la terre et au soleil ne semble pas intervenir. Enfin, la décroissance de l'émanation du radium ne dépend pas de la concentration de ce gaz, et ceci dans des limites très étendues.

L'échec de toutes ces expériences a pour effet que nous restons dans une ignorance complète relativement à la cause des transformations radioactives et à la nature interne ou externe des circonstances qui déterminent ces transformations. Il est donc certainement de la plus haute importance de réussir à atteindre

les constantes radioactives, ou tout au moins de reculer autant que possible les limites de précision qui caractérisent leur invariabilité.

Ainsi le problème se trouve reporté dans le domaine de la technique de haute précision.

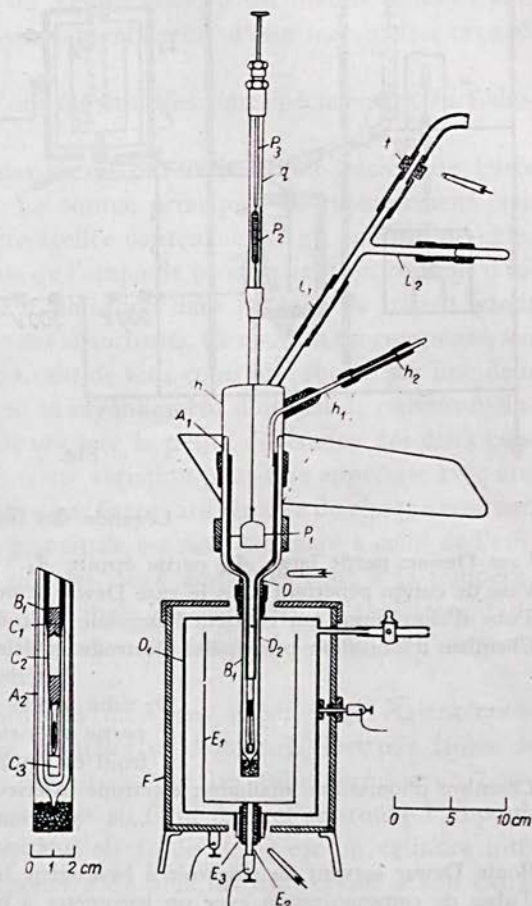


Fig. 1

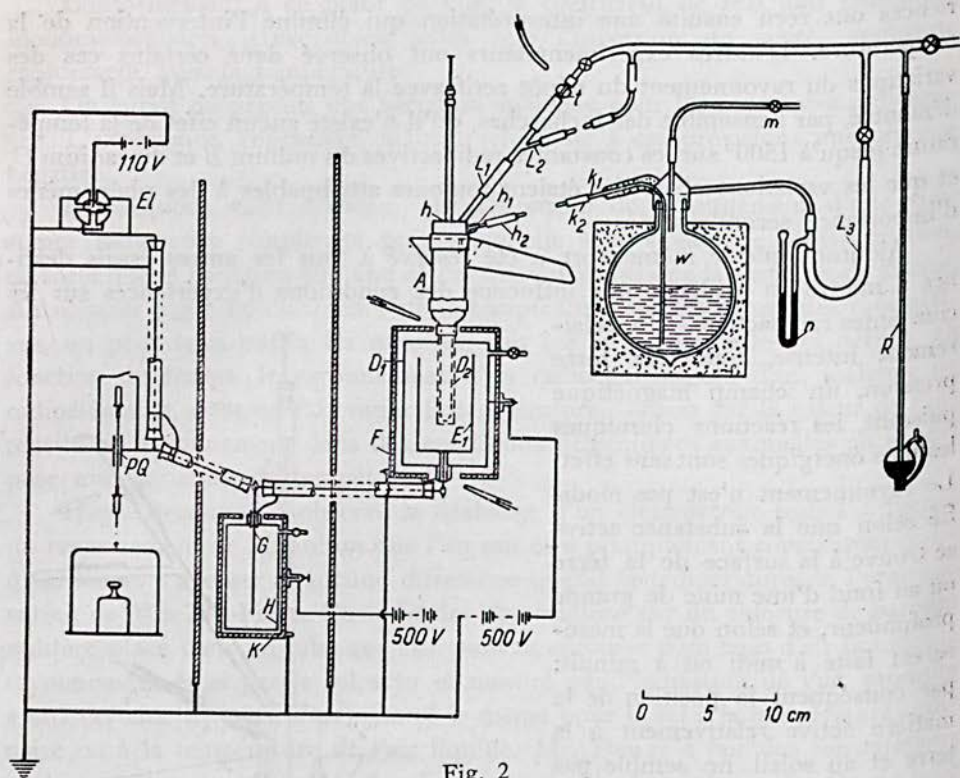


Fig. 2

Légende des figures

Vase Dewar: partie large A_1 , partie étroite A_2 .

Vase de cuivre pénétrant dans le vase Dewar et contenant l'hydrogène liquide B_1 .

Tube d'aluminium qui contient l'ampoule de radium C_2 .

Chambre d'ionisation principale: électrode extérieure D_1 .

„ intérieure E_1 .

D_2 tube sondé dans l'électrode D_1 , pour recevoir la partie inférieure du vase Dewar qui contient le baia froid et l'ampoule.

Chambre d'ionisation auxiliaire: électrode extérieure H .

„ intérieure G , tubulaire et contenant à son intérieur l'ampoule de compensation.

Boule Dewar servant de réservoir à hydrogène liquide, W .

Tubes de communication avec un gazomètre à hydrogène L_1 et L_3 .

Couvercle étanche fermant la partie A_1 du vase Dewar — h .

Tubes de raccordement pour l'appareil cryogénique $h_1 h_2$.

Flotteur p_1 pour apprécier le niveau de l'hydrogène liquide; gaines servant à dévier les courants d'air froids m .

Tiges de connection pour l'appareil électrométrique t .

Electromètre El et plateau du quartz piezoélectrique PQ .

Batteries de charge pour les chambres d'ionisation, 500 volts chacune, Ac .

Ce sont ces considérations qui nous ont déterminés, Mr. Kamerlingh Onnes et moi, à reprendre, dans des conditions aussi parfaites que possible, les expériences faites par divers physiciens aux très basses températures et à étendre ces expériences à la température de l'hydrogène liquide¹.

Les mesures ont porté sur le rayonnement γ du radium. Elles ont prouvé qu'un abaissement de température, depuis la température ambiante jusqu'à celle de l'hydrogène liquide, est incapable de faire varier le rayonnement γ du radium dans des limites de précision qu'on peut évaluer à deux pour dix mille.

Cette précision dans les mesures ne peut être obtenue que grâce à une étude minutieuse des conditions de l'expérience, à un double point de vue: celui des mesures correctes du rayonnement, celui d'une installation cryogénique satisfaisante.

Les mesures du rayonnement ont été étudiées tout spécialement au Laboratoire Curie.

Pour obtenir la sensibilité maximum, on utilisait une technique basée sur un principe de compensation. La source principale de rayonnement était constituée par une ampoule de verre scellée contenant 0.1 gr. environ de chlorure de radium pur. Les rayons issus de l'ampoule produisaient un courant d'ionisation intense dans une chambre d'ionisation dans laquelle ils étaient admis après avoir été filtrés au travers d'écrans absorbants. Ce courant est compensé, sur un électromètre sensible, par un courant de sens contraire, fourni par une deuxième chambre d'ionisation soumise au rayonnement d'un sel de radium maintenu à la température ambiante. On mesure la petite différence des deux courants, et si l'un d'eux vient à varier, toute variation peut-être appréciée avec une sensibilité que l'on ne saurait atteindre par la mesure séparée de chaque courant.

Le rayonnement de l'ampoule principale est ainsi comparé à celui de l'ampoule auxiliaire, d'abord pendant que les deux ampoules sont à la température ordinaire. Ensuite, l'ampoule principale est soumise à l'abaissement de température, et son rayonnement est à nouveau comparé à celui de l'ampoule auxiliaire.

Les chambres d'ionisation utilisées dans ces expériences étaient constituées par des boîtes cylindriques étanches en laiton. L'électrode isolée de la chambre de compensation est constituée par un tube fermé à un bout, qui pénètre à l'intérieur de la chambre et au fond duquel se trouve l'ampoule auxiliaire. Dans la chambre principale, l'électrode isolée est un cylindre intérieur à la chambre, dans laquelle pénètre de plus un tube fermé à son extrémité et destiné à recevoir l'ampoule principale. Ce tube doit aussi pouvoir contenir le bain froid. A cet effet, on y fait pénétrer un vase Dewar de forme spéciale que l'on peut remplir d'hydrogène liquide, tout en y ménageant une

¹ Comm. No. 135, *Versl. Ak. Amsterdam*, April 1913; *Le Radium*, 10 (1913), p. 181 [voir p. 452 et 462 — ed.].

cavité qui reçoit l'ampoule de radium et qui fait effet de chambre froide, quand l'appareil est rempli d'hydrogène liquide. Les détails de ce dispositif sont expliqués par la figure.

L'expérience comporte de nombreux détails d'exécution qui doivent être examinés afin d'obtenir la précision maximum. La masse d'air dans les chambres doit être invariable, l'isolement doit être très parfait, et l'on doit assurer à l'appareil une grande stabilité afin d'éviter des petites secousses qui affectent la distribution de grains de sel de radium dans leurs tubes.

Ainsi se trouvait augmentée la difficulté de l'installation cryogénique, réalisée à Leyde avec une grande perfection par Mr. Kamerlingh Onnes qui a eu à lutter contre les défauts d'isolement provoqués par les dépôts d'humidité sur les parois froides et contre le manque de stabilité des appareils de mesures, provoqué par la manipulation de l'appareil cryogénique. Ce dernier a été rendu étanche et ne contenait pendant l'expérience que de l'hydrogène liquide et gazeux, pur et sec. L'ampoule n'était en contact qu'avec le gaz du bain. Celui-ci était versé dans le vase Dewar au moyen d'une série de raccords soigneusement établis, en utilisant la pression d'un gazomètre à hydrogène et en contrôlant le niveau du liquide au moyen d'un flotteur. Cette opération délicate pouvait être effectuée en un quart d'heure. Les courants de gaz froids ont été déviés des appareils au moyen de gaines protectrices convenablement disposées, et les pièces isolantes ont été maintenues en bon état de fonctionnement par des courants d'air sec légèrement chauffé. On reconnaissait, dans chaque détail, une technique parfaite appliquée avec sûreté à un but défini.

La précision est limitée par les conditions de stabilité des appareils et par les oscillations radioactives.

Celles ci se manifestent quand on augmente suffisamment la sensibilité des mesures. Elles donnent lieu à des irrégularités qui ne peuvent être éliminées que par un grand nombre de mesures. Elles sont le moins à craindre quand on opère avec les rayons γ , ce qui était le cas dans nos expériences. Elles ne pouvaient apporter de troubles dans les mesures.

Il est très important que les chambres d'ionisation contiennent une masse d'air invariable. Quand on utilise des rayons pénétrants, le courant est, au moins approximativement, proportionnel à la masse d'air ionisé. Pour que le courant reste constant, à une grande précision, il faut donc assurer la fermeture parfaite des chambres. Chacune d'elles était munie d'un robinet. En faisant varier la masse d'air dans la chambre de compensation, on pouvait régler le courant dans cette chambre, de manière à obtenir la compensation au degré voulu.

Les expériences définitives ont été exécutées à Leyde, du 20 au 25 juillet 1911.

Le courant d'ionisation dans la chambre principale était mesuré par 1100 unités arbitraires (environ 10 unités E. S.). L'intensité du courant de compen-

sation était réglée de manière à être un peu plus grande, la différence atteignant au plus 20 unités, soit environ 2 pour 100. Les rayons utilisés étaient les rayons γ .

Deux expériences avec l'hydrogène liquide ont pu être effectuées.

Dans ces expériences, ainsi qu'il a été exposé plus haut, la chambre froide était remplie de gaz hydrogène sec, et les condensations autour de l'ampoule étaient évitées.

Dans la première expérience, le courant mesuré, égal d'abord à 10.9 unités, a pris la valeur de 14.7 unités après l'introduction de l'hydrogène liquide, laquelle a demandé 15 minutes. Cette variation correspond à une diminution du courant principal, égale à 3.4 pour 1000.

Dans la deuxième expérience, le courant mesuré était de 18.3 unités, et une bonne stabilité était obtenue, les variations des mesures pendant une demi-heure n'atteignant pas 0.1 pour 1000 du courant principal. L'hydrogène liquide ayant alors été introduit, des mesures très concordantes faites pendant une demi-heure ont donné pour la valeur du courant 18.5 unités, et après une heure, 18.2 unités. On peut donc affirmer que dans cette expérience, qui semble faite dans de très bonnes conditions, le refroidissement n'a pas donné lieu à une variation du courant principal qui puisse être évaluée à 0.2 pour 1000.

Une expérience a aussi été faite à la température de l'oxygène liquide. Le courant mesuré était de 1.8 unité. Les mesures faites pendant une heure à la température de l'oxygène liquide ont donné pour la valeur du courant mesuré 2.6 unités, ce qui correspond à une diminution de 0.7 pour 1000 sur le courant principal.

Il aurait été désirable de faire un plus grand nombre d'expériences et aussi de les poursuivre pendant un temps plus long. Néanmoins, en considérant surtout celle des expériences qui paraît la meilleure, il semble légitime d'affirmer que *le refroidissement du radium à la température de l'hydrogène liquide (20°.3 absolus) pendant un temps qui ne dépasse pas une heure et demie, ne donne pas lieu à une variation de rayonnement qui puisse atteindre 1 pour 1000, et probablement même 0.2 pour 1000.*

Il est donc probable d'après cela qu'il n'existe pas, à la précision indiquée, d'effet instantané ou très rapide de cet abaissement de température sur l'émanation ou le dépôt actif à évolution rapide (Radium A, B et C). Mais un effet sur le radium lui-même, ou un effet se produisant assez lentement sur ses dérivés, n'aurait pu être mis en évidence dans ces expériences.

Quelques essais ont été faits à Paris pour étudier l'action des basses températures sur le rayonnement du polonium. L'expérience a seulement été faite avec l'air liquide. Elle présente certaines difficultés. Une plaque portant un dépôt de polonium était placée au fond d'un long tube de verre qui pouvait être plongé dans l'air liquide. Cette plaque agissait, au travers d'un écran d'aluminium mince fermant le tube, sur une chambre d'ionisation étanche, dans laquelle les rayons du polonium étaient absorbés par l'air. Un vide aussi

bon que possible était fait dans le tube à polonium; ensuite, on améliorait encore le vide en plongeant dans l'air liquide un tube latéral, adapté au premier, et contenant une petite quantité de charbon. La mesure du rayonnement était faite à la température ordinaire, et ensuite elle était répétée pendant que le fond du tube plongeait dans l'air liquide. Dans ces expériences, on a observé, lors du refroidissement, des diminutions de courant de grandeur variable.

Ces variations se sont montrées d'autant moins importantes que les précautions pour obtenir et maintenir un vide parfait étaient plus grandes. Il est donc très probable qu'elles étaient dues uniquement à la condensation sur le polonium de traces de matières gazeuses présentes dans l'appareil.

Des expériences faites à Leyde avec un appareil provisoire plongé dans l'hydrogène liquide nous ont conduits à la conclusion qu'on pourrait arriver à éliminer tout à fait des condensations, même dans l'hydrogène liquide, en faisant usage d'une chambre d'ionisation remplie d'hydrogène, et d'un tube latéral à charbon plongé dans l'hydrogène liquide.

Il résulte de l'ensemble de ces expériences qui ne sont malheureusement pas aussi complètes que nous l'aurions désiré, que l'indépendance du rayonnement de la température se trouve confirmée dans des limites plus étendues que précédemment. En même temps, les expériences ont mis en évidence les causes d'erreur avec lesquelles il faut compter quand on veut pousser loin la précision des mesures à très basse température.

Il m'est agréable de terminer cet exposé par l'expression de mon admiration pour l'oeuvre accomplie par le Laboratoire cryogénique de Leyde, sous la direction de l'éminent savant à qui ce livre jubilaire apporte un hommage aussi mérité, pour 40 ans de travail infatigable et de dévouement absolu à la Science.

Je pense que tous ceux qui, en collaboration avec Mr. Onnes ont travaillé à Leyde, y ont connu des jours heureux. Ils ont vu et apprécié une organisation de Laboratoire, orientée avec un maximum d'ordre, de méthode et de coordination d'efforts, vers un but déterminé. Ils ont vu un personnel instruit et adapté, dont chaque membre connaît son rôle et remplit ses obligations. Ils ont compris comment, grâce à cette coopération consciencieuse, un travail difficile peut se trouver si complètement préparé dans tous ses détails, que les expériences définitives peuvent être exécutées en quelques jours, sans insuccès, sans surprises et sans accidents. Enfin, ils ont joui, dans l'exquise tranquillité de Leyde, d'excellentes journées de collaboration amicale, au milieu de l'hospitalité la plus cordiale et la plus prévenante.

L'exemple du laboratoire dirigé par Mr. Kamerlingh Onnes nous apprend ce que peut, en matière de progrès scientifique, la coopération organisée, ennemie de l'anarchie et de l'exagération de sentiment personnel, uniquement préoccupée de l'accomplissement d'une grande Oeuvre et du Service de la Science.