

SUR LA CONSTANCE DE LA VITESSE DE TRANSFORMATION DU RADON A DES CONCENTRATIONS DIFFÉRENTES*

Sommaire. — L'objet du travail était de s'assurer si la constante radioactive du radon aussi concentré que possible est exactement la même que celle du radon plus dilué, une altération de la constante pouvant correspondre à un effet de chocs des rayons α sur les atomes de radon, ou encore à un effet produit par les rayons β ou γ . L'expérience a consisté à comparer par une méthode de compensation très sensible la décroissance du rayonnement γ de deux quantités de radon peu différentes (environ 200 millicuries chacune), dont l'une était enfermée dans une petite sphère ayant environ un quart de mm^3 de volume, tandis que l'autre était contenue dans un tube capillaire fermé ayant quelques mm^3 de volume. Les conditions théoriques de l'expérience sont discutées en détail, ainsi que les conditions expérimentales nécessaires pour assurer une grande précision. Il a été prouvé que pour des ampoules de radon absolument semblables la vitesse de décroissance est la même à la précision de 1 pour 10 000 et peut, par conséquent, être mesurée avec cette précision. La comparaison des effets de la source sphérique avec la source de volume plus grand et de forme allongée, n'a permis de déceler aucune différence supérieure à $1/2000^{\circ}$; les variations observées au-dessous de cette limite n'ont pu être attribuées avec certitude à une cause déterminée. La concentration du radon dans la petite sphère correspondait à une pression d'environ 0,5 atmosphère.

1. Introduction

Ce travail a pour objet la recherche d'une influence possible de concentration du radon sur sa transformation radioactive. On sait que les divers essais faits en vue de modifier les constantes radioactives par le changement des conditions de l'expérience ont jusqu'ici donné un résultat négatif. Parmi ces tentatives, certaines ont eu recours à des méthodes de précision élevée. Ainsi, dans les expériences que j'ai faites à Leyde en collaboration avec M. Kamerlingh Onnes sur le rayonnement du radium à la température de l'hydro-

* [Mme Pierre Curie, *Ann. Phys.*, 2, 405 (1924) — ed.].

gène liquide, la constance du rayonnement entre cette température et la température ambiante a été vérifiée à la précision de $2/10\,000$. Ce résultat a été obtenu grâce à l'emploi d'une méthode de compensation, où le rayonnement d'un sel de radium refroidi était comparé à celui d'un sel de radium maintenu à la température ordinaire; de plus on utilisait seulement le rayonnement γ de sels enfermés dans des tubes scellés, ce qui réduit les erreurs dues à l'absorption des rayons, au défaut de saturation du courant et aux oscillations radioactives.

J'ai utilisé une méthode analogue dans le cas actuel, et j'ai comparé le rayonnement γ de deux ampoules contenant du radon à des concentrations différentes. La précision atteinte dans ces expériences est d'environ $1/10\,000$. Il n'a pas été trouvé d'altération de la constante à la précision de $1/2000$; les variations observées au-dessous de cette limite ne peuvent être attribuées avec certitude à une cause déterminée.

2. Théorie de l'expérience

Le radon et les produits de sa transformation, le radium A et le radium C émettent des rayons α , et on peut penser qu'en raison du bombardement du gaz radioactif par ces rayons, la transformation du radon pourrait être accélérée quand les chocs deviennent suffisamment fréquents. Pour réaliser cette condition il faut accroître dans la mesure du possible la concentration du radon, mais ceci n'est pas suffisant; le nombre des chocs dépendra, non seulement du volume utilisé mais aussi de la forme du récipient. Dans un petit récipient dont toutes les dimensions sont comparables, les rayons émis rencontrent en moyenne plus de molécules gazeuses avant d'atteindre les parois que dans un tube de même volume dont le diamètre est petit par rapport à la longueur. La forme la plus favorable est évidemment celle d'une petite sphère.

Le volume d'un curie d'émanation sous la pression atmosphérique étant $0,6\text{ mm}^3$, et la quantité de radon disponible pour ces expériences n'atteignant pas un curie, le diamètre de la sphère ne devait pas atteindre un millimètre pour que la pression du radon pût approcher de la pression atmosphérique. Il en résulte qu'on peut négliger la perte de vitesse des rayons α sur le petit trajet accompli dans le gaz contenu dans la sphère, et cela même quand la pureté du radon n'est pas parfaite. Le nombre total des chocs des rayons α contre les molécules de radon peut être considéré comme indépendant de la présence d'une petite quantité de gaz étranger.

Pour qu'il y ait transformation radioactive d'un atome d'émanation atteint par une particule α , il est nécessaire que celle-ci passe très près du noyau. La particule étant en ce cas déviée de sa route par la répulsion de la charge du

noyau, on a coutume de prendre comme paramètre la distance à laquelle elle passerait si elle n'était pas déviée. Supposons que le phénomène se produise quand cette distance est inférieure à b . Si n est le nombre de molécules de radon par unité de volume, le nombre de rencontres de cette nature est égal à $\pi b^2 n$ par particule α et par unité de longueur.

Considérons dans la sphère de rayon R un élément de volume du , placé au point M à une distance r du centre O (fig. 1) et contenant ndu molécules de radon dont λndu se détruisent par unité de temps en donnant le même nombre de rayons α , si λ est la constante radioactive du radon. Soit $d\omega$ un angle solide infiniment petit ayant son sommet au point M et correspondant aux rayons vecteurs ρ et ρ' . Le nombre dN de chocs efficaces dans cet angle solide est donné par la formule:

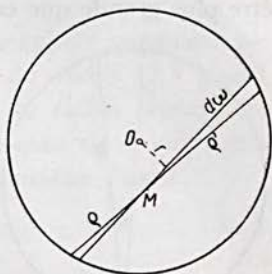


Fig. 1

$$dN = \lambda \pi b^2 n^2 du \times (\rho + \rho') \times \frac{d\omega}{4\pi}$$

Pour obtenir N , il faut intégrer cette expression d'abord par rapport à $d\omega$, ensuite par rapport à du . Prenant $\rho + \rho' = z$ comme variable, on trouve

$$\int (\rho + \rho') d\omega = \frac{\pi}{r} \int_{2\sqrt{R^2 - r^2}}^{2R} \frac{z^2 dz}{\sqrt{z^2 - 4(R^2 - r^2)}} = \pi \left[2R + \frac{R^2 - r^2}{r} \text{Log}_e \frac{R + r}{R - r} \right]$$

$$N = \lambda \pi^2 b^2 n^2 \int_0^R \left[2R + \frac{R^2 - r^2}{r} \text{Log}_e \frac{R + r}{R - r} \right] r^2 dr = \lambda \pi^2 b^2 n^2 R^4$$

Introduisant le nombre q de molécules de radon contenues dans la sphère, il vient

$$q = \frac{4}{3} \pi R^3 n \quad N = \frac{9}{16} \frac{\lambda b^2}{R^2} q^2$$

Ainsi quand la quantité q est donnée, il y a avantage à choisir R aussi petit que possible.

Les rayons α émis dans la sphère ne proviennent pas uniquement du radon, mais aussi de ses dérivés RaA et RaC . Ces substances étant solides se trouvent en partie dans le gaz, en partie sur la paroi. On peut évaluer leur effet pour les deux cas extrêmes:

1. Distribution uniforme dans le volume,

2. Distribution uniforme sur la paroi.

Bien que l'efficacité des rayons α du RaA et du RaC doive en principe être plus grande que celle des rayons α du radon, en raison de leur plus grande vitesse d'émission, je ferai intervenir dans les trois cas une même valeur de b .

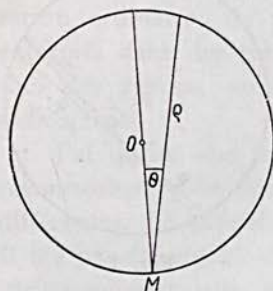


Fig. 2

Le nombre de rayons α émis par unité de temps étant à peu près le même pour le radon, pour le radium A et pour le radium C, dans l'état d'équilibre de régime, on tiendra compte de la présence du dépôt actif à distribution uniforme dans le volume en multipliant par 3 la valeur de N précédemment calculée. Si le dépôt actif est sur la paroi on ne change rien au résultat en le supposant concentré en un point M de celle-ci, d'où $2\lambda q$ rayons sont émis au total par unité de temps. Le nombre de chocs efficaces pour ces rayons est alors dans l'angle solide $d\omega$ (fig. 2).

$$dN' = 2q\lambda \times \frac{d\omega}{4\pi} \times \pi b^2 n \rho$$

on a

$$d\omega = 2\pi \sin \theta d\theta \quad \rho = 2R \cos \theta$$

d'où

$$N' = \pi R b^2 n \lambda q \int_0^{\frac{\pi}{2}} 2 \sin \theta \cos \theta d\theta =$$

$$= \pi R b^2 n \lambda q = \frac{3}{4} \frac{b^2 \lambda q^2}{R^2}$$

On en déduit $\frac{N' + N}{N} = \frac{7}{3}$. C'est donc par ce facteur que N doit être multiplié quand le dépôt actif est déposé sur la surface.

Entre les deux facteurs de multiplication, $\frac{9}{3}$ et $\frac{7}{3}$ on peut prendre la moyenne $\frac{8}{3}$ d'où pour le nombre de chocs

$$\frac{8}{3} N = \frac{3}{2} \frac{b^2 \lambda q^2}{R^2}$$

On peut se demander dans quelle mesure le radon lui-même peut être absorbé par les parois du récipient sous l'influence des chocs auxquels il est soumis. Cette considération a été laissée de côté ainsi que l'effet possible d'une pénétration du dépôt actif par le phénomène de recul.

Pendant la durée de l'expérience la pression dans la sphère augmente par accumulation d'hélium; après la durée d'une période du radon (3,8 jours), la pression d'hélium supposé libre est triple de celle du radon restant. Eu égard aux très petites dimensions de la sphère, la présence de ce gaz même dans cette proportion ne devrait pas modifier le phénomène étudié.

3. Principe de compensation

Mes anciennes expériences ainsi que celles de M. Debiegne avaient déjà montré que la constante du radon est indépendante de sa concentration dans de très larges limites (rapport des concentrations jusqu'à 2×10^{11}), et que la décroissance du radon pur sous la pression atmosphérique ne peut différer de plus de 1% de celle du même gaz très dilué¹. Pour déceler un écart très petit, il convient d'avoir recours à une méthode de comparaison, en mesurant en fonction du temps la différence i des courants d'ionisation I et I' produits par deux ampoules contenant le radon à des concentrations différentes. Pour obtenir une grande sensibilité on doit rendre cette différence petite par rapport à la valeur de chaque courant. Si la décroissance de I est normale et celle de I' altérée, $\text{Log}_e I$ est une fonction linéaire du temps de coefficient angulaire $-\lambda$ tandis que pour $\text{Log}_e I'$ ce coefficient est, à l'instant t , égal à $-\lambda(1 + \varepsilon)$ où ε est une petite quantité qui varie avec le temps. On peut écrire:

$$\frac{d}{dt} \text{Log}_e I = -\lambda \quad \frac{d}{dt} \text{Log}_e I' = \frac{1}{I'} \frac{dI'}{dt} = -\lambda(1 + \varepsilon)$$

$$\frac{d}{dt} \text{Log}_e i = \frac{\frac{dI'}{dt} - \frac{dI}{dt}}{I' - I} = \frac{\frac{dI'}{dt} + \lambda I}{I' - I} = -\lambda \frac{i + \varepsilon I'}{i}$$

Désignons par $-\lambda(1 + \alpha)$ le coefficient angulaire de la courbe qui représente $\text{Log}_e i$ en fonction du temps, il vient

$$\frac{i + \varepsilon I'}{i} = 1 + \alpha \quad \alpha = \varepsilon \frac{I'}{i}$$

¹ M. Curie, *Traité de Radioactivité*, Paris 1910; A. Debiegne, *Thèse de doctorat*, Paris 1914.

Il y a donc *amplification* de α par rapport à ε dans le rapport de I' à i , de sorte que l'altération qui porte sur I' sera décelée plus facilement par le mesure de i . Dans le calcul du rapport $\frac{I'}{i}$, on peut attribuer à I' la valeur $I'_0 e^{-\lambda t}$ qui correspondrait à la décroissance normale (I'_0 valeur initiale de I').

Il y a une relation très simple entre la quantité ε et la variation relative ε' qu'aurait subie, en vertu des chocs, la constante radioactive. Le nombre N de chocs efficaces étant posé égal à kq^2 où $k = \frac{3}{2} \frac{b^2 \lambda}{R^2}$, la vitesse de destruction du radon serait donnée par la formule

$$\frac{dq}{dt} = -\lambda q - kq^2 = -\lambda q (1 + \varepsilon'), \text{ où } \varepsilon' = \frac{kq}{\lambda}$$

Le courant I' est proportionnel à $\frac{dq}{dt}$, on a donc

$$\frac{d}{dt} \text{Log}_e I' = \frac{-\left(\lambda \frac{dq}{dt} + 2kq \frac{dq}{dt}\right)}{\frac{dq}{dt}} = -\lambda \left(1 + \frac{2kq}{\lambda}\right)$$

de sorte que: $\varepsilon = 2 \frac{kq}{\lambda} = 2\varepsilon'$. Ainsi, quand l'altération dérive des chocs, ε est le double de ε' , et les deux décroissent en fonction du temps comme q , c'est-à-dire, en première approximation, comme $e^{-\lambda t}$.

Si, au début, $I' > I$, c'est-à-dire $i > 0$, et $\varepsilon > 0$, la décroissance initiale de i est plus rapide que d'après la loi normale. Le courant i peut s'annuler et même changer de sens, de sorte que la représentation logarithmique n'est pas applicable.

Quand $I'_0 < I_0$, $i < 0$ et $\varepsilon > 0$ on trouve pour la loi de variation de $i' = -i$

$$\frac{d}{dt} \text{Log}_e i' = -\lambda \left(1 - \varepsilon \frac{I'}{i}\right).$$

La décroissance initiale de $\text{Log}_e i'$ est donc moins rapide que la loi normale, et il peut même y avoir d'abord augmentation suivie d'un maximum pour $\varepsilon = \frac{i'}{I'}$, puis d'une décroissance qui, à la limite, prend une allure normale.

Quand la compensation est très complète et le courant i très voisin de 0, parfois de signe variable, on ne peut se servir de $\text{Log}_e i$, et il faut modifier le raisonnement, d'autant plus que le graphique qui donne i en fonction du

temps a l'apparence de points dispersés plutôt que celle d'une courbe. On peut alors évaluer une valeur moyenne de ε entre deux points déterminés par le procédé suivant: entre ces points que je suppose correspondre aux temps 0 et t , la décroissance des courants I et I' a lieu suivant les formules:

$$I = I_0 e^{-\lambda t} \quad I' = I_0 e^{-\lambda(1+\varepsilon)t}$$

où I_0 et I'_0 sont les intensités initiales. Pour les temps 0 et t on a respectivement:

$$i_0 = I'_0 - I_0 \quad i = I' - I$$

de sorte que:

$$i = (I_0 + i_0) e^{-\lambda(1+\varepsilon)t} - I_0 e^{-\lambda t}$$

Comme ε est une quantité très petite, on peut remplacer $e^{-\lambda \varepsilon t}$ par $1 - \lambda \varepsilon t$ ce qui conduit à la formule:

$$i = i_0 e^{-\lambda t} - I_0 \varepsilon \lambda t e^{-\lambda t}$$

Le produit $\lambda t e^{-\lambda t}$ est une fonction du temps qui, nulle pour $t = 0$, et pour $t = \infty$ passe par un maximum pour $\lambda t = 1$, soit pour une valeur du temps égale à la vie moyenne de la substance radioactive considérée. La formule ci-dessus permet de calculer la valeur moyenne de ε , soit entre deux points isolés, soit entre des groupes de points convenablement choisis de manière à fournir des points moyens. L'application de ce procédé aux différents points du graphique permet de suivre la variation de ε pendant la durée de l'expérience.

4. Préparation des ampoules

Pour obtenir le maximum de précision, il a été décidé de partager le radon disponible en deux parties à peu près égales destinées à agir sur deux chambres d'ionisation tout à fait semblables. Seule la forme des ampoules a été choisie différente: le radon concentré devait se trouver dans une très petite cavité sphérique, le radon moins concentré dans une cavité allongée, de volume 10 à 20 fois plus grand que la précédente, de sorte que non seulement la concentration du radon y serait plus de 10 fois plus petite, mais de plus, les rayons α émis seraient absorbés par les parois ayant traversé le moins de gaz possible. J'ai choisi à cet effet un tube capillaire, de 0,5 mm. de diamètre intérieur et 4 mm. de diamètre extérieur, dont la longueur utilisée était de 15 à 20 mm.

La préparation de la petite sphère a offert plus de difficultés. Cette sphère doit être munie d'un canal capillaire pour l'introduction du radon, et ce canal

doit être ensuite fermé. Les dispositifs à fermeture au moyen de mercure ont été écartés, afin de ne pas laisser ce dernier au contact du radon; on pouvait craindre, en effet, l'altération du mercure et aussi la pénétration du dépôt actif à l'intérieur du mercure. Après de nombreux essais sur des tubes capillaires divers je me suis arrêtée au mode opératoire suivant: dans une portion de tube de thermomètre AB d'environ 8 cm. de longueur et 4 mm. de diamètre extérieur, ayant un canal de 0,05 mm. de diamètre, on introduit une

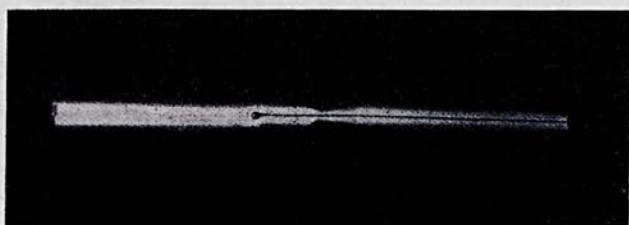


Planche I

colonne de mercure de 5 cm. attendant à l'extrémité B qu'on ferme à la cire; puis on ferme le canal à la lampe au milieu de la longueur comprise entre l'extrémité A et le mercure. En chauffant ensuite avec précaution le verre à ce même endroit, on y détermine la formation d'une cavité sphérique par la pression de la vapeur de mercure. On peut amener cette bulle à des dimensions convenables et jauger son volume, ainsi que celui du canal, par pesées de mercure. Le remplissage a lieu à l'aide d'un dispositif qui permet de faire le vide dans la bulle; l'évacuation se fait par distillation du mercure dans le vide. Sur le tube capillaire, à une distance de 8 à 10 mm. de la bulle on ménage un étranglement, sans altérer le canal; c'est à cet endroit que la séparation sera faite après introduction du radon; le volume du canal ainsi limité devait être au plus un dixième de celui de la bulle, lequel était environ $0,2 \text{ mm}^3$. Une photographie de bulle est donnée dans la planche 1.

5. Préparation du radon et introduction dans les ampoules

Le radon était extrait des solutions de radium du Laboratoire Curie. Pour une accumulation d'une semaine la quantité disponible était environ 700 millicuries. Ce gaz était d'abord purifié dans l'appareil d'extraction d'usage courant, où l'oxygène et l'hydrogène sont absorbés par le cuivre et l'oxyde de cuivre chauffés au rouge, la vapeur d'eau par l'anhydride phosphorique et le gaz carbonique par la potasse. Le radon est ensuite condensé dans un tube de verre qui plonge dans un bain d'air liquide. Comme il s'agit de l'intro-

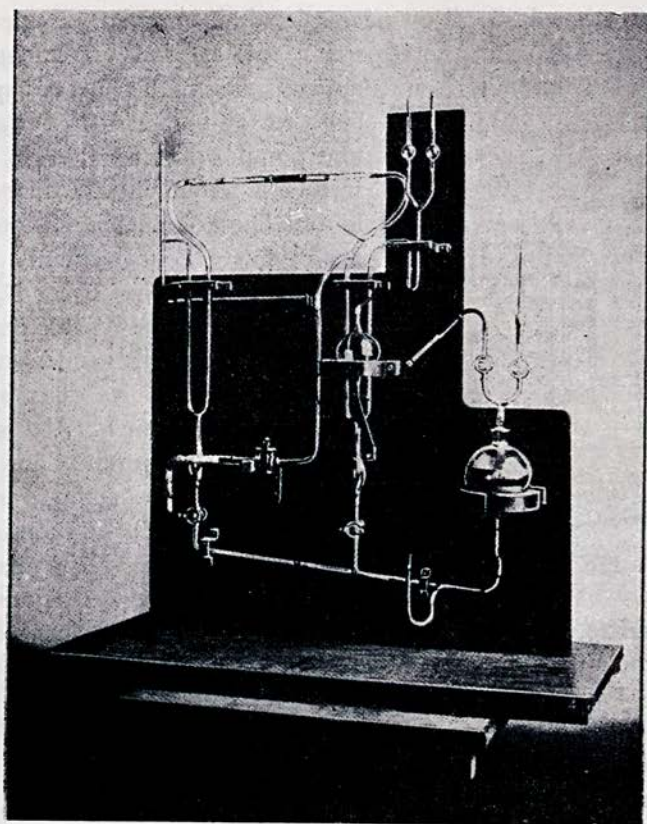


Planche II

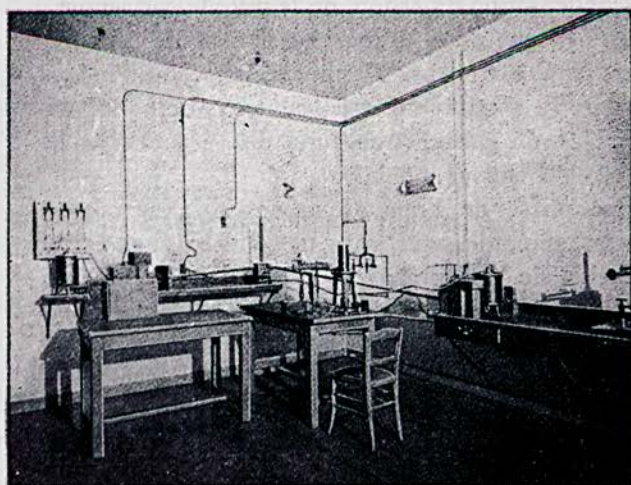


Planche III

duire dans un petit volume, il est nécessaire de le soumettre à une purification au 2^e degré; ceci a lieu dans un appareil représenté dans la planche 2 et dans la figure 3, soudé à l'extrémité A sur l'appareil principal. Dans cet appareil auxiliaire on fait un très bon vide d'abord avec

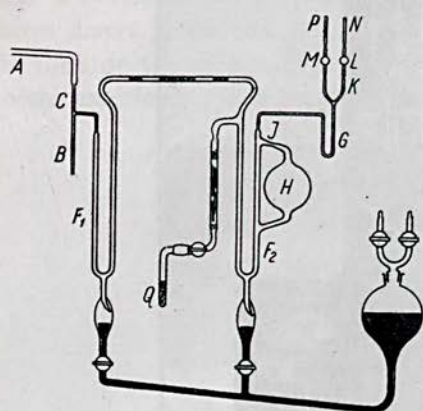


Fig. 3

une pompe, puis à l'aide de charbon refroidi à la température de l'air liquide dans le tube Q qu'on détache ensuite à la lampe. La première condensation a lieu dans le tube B, les fourches F_1 et F_2 étant occupées par le mercure jusqu'à un niveau convenable. Quand la condensation est terminée on sépare les deux appareils par fusion du verre en C. Abaisant alors le mercure dans la fourche F_1 on fait pénétrer le gaz dans l'espace compris entre celle-ci et la 2^e fourche F_2 qui contient du mercure. Le gaz se purifie pendant plusieurs heures au contact de cuivre et d'oxyde

de cuivre chauffés, de P_2O_5 et de KOH. On fait ensuite descendre le mercure dans la fourche F_2 , et on condense le radon dans le tube G qui plonge dans l'air liquide; l'opération est rendue plus rapide par l'emploi du volume auxiliaire re H qui en se remplissant de mercure et se vidant fait office de pompe. Quand la 2^e condensation est terminée, on ferme à la lampe en J, avant de remonter le mercure de sorte que celui-ci emprisonne dans la boule H la plus grande partie des gaz non condensables qui pourraient subsister comme impurété. Après décondensation du radon, on le refoule par remontage de mercure jusque dans la fourche K à petite distance de la base des boules L et M. Comme celles-ci ont même volume, le radon se distribue entre les deux branches en quantités égales, et on détache chacune des branches à la lampe au-dessous de chaque boule.

La dernière phase de l'opération consiste à introduire le radon dans les ampoules qui ont été soudées aux extrémités des branches de la fourche en P et N (voir fig. 3'). Pour cela la queue de chaque ampoule est refroidie dans l'air liquide, de manière à condenser le radon au fond de la cavité. Il faut ensuite séparer chaque ampoule à la lampe au point où se trouve l'étranglement, et pour cela chauffer le verre avec une petite flamme presque au ras de la surface d'air liquide. Toute la série d'opérations est très délicate; l'ensemble demande environ 20 heures. Pendant la condensation du radon dans la petite bulle on voit des étincelles éclater

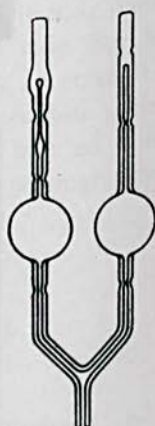


Fig. 3'

à l'intérieur de celle-ci, par accumulation de charges électriques. Pour faciliter le passage au travers du canal très étroit qui mène à la bulle on rend celui-ci aussi court que possible et on le raccorde à un tube plus large soudé sur la boule. Les ampoules fermées sont placées dans les chambres d'ionisation, et les mesures de courant sont commencées trois ou quatre heures après.

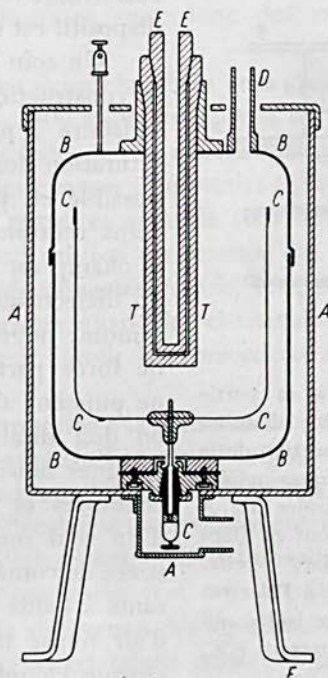


Fig. 4

- AA Boîte protectrice de plomb, reliée au sol.
- BBBB Boîte de laiton nickelé servant de chambre d'ionisation.
- CCCC Electrode de laiton nickelé reliée à l'électromètre.
- A Chapeau protecteur en laiton nickelé, relié au sol, pour entourer la connection de l'électrode à l'électromètre.
- D Tube fermé à l'aide d'un robinet pour faire le vide dans la chambre B et vérifier son étanchéité.
- TT Tube de laiton nickelé soudé dans la chambre.
- EE Manchon de plomb se plaçant dans le tube T.
- F Un des trois pieds qui supportent la chambre.

6. Appareil de mesures

Cet appareil se compose d'un électromètre bien protégé communiquant d'une part, avec un quartz piézo-électrique, d'autre part avec deux chambres

d'ionisation placées chacune à 2 m. de l'électromètre et aussi loin que possible l'une de l'autre. Les connections sont assurées par des fils isolés à la paraffine et protégés par des enveloppes réunies au sol. Les chambres d'ionisation

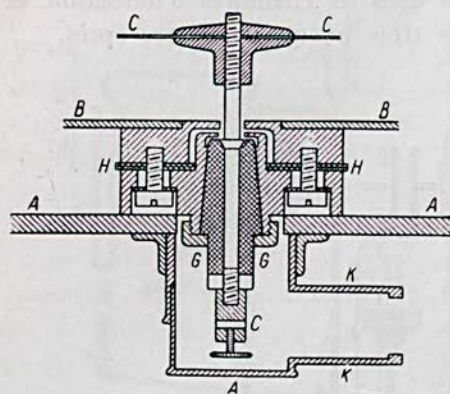


Fig. 5

Montage de l'électrode C à sa partie inférieure, à l'aide de la pièce d'ambre GG qui isole la tige de connection de la boîte A et des pièces métalliques reliées à celle-ci. La boîte B est isolée de A par les pièces isolantes H tout en étant supportée par la boîte A et fixée à celle-ci par des vis. La connection à l'électromètre est établie par une tige isolée qui s'emmanche dans le tube protecteur KK.

donc être parfaitement étanches. Après quelques tâtonnements, on a réussi à construire des chambres très satisfaisantes (fig. 4 et 5).

7. Installation des ampoules et mode de mesures

Les ampoules doivent être fixées d'une manière invariable dans les tubes, T et T' des chambres. Pour cela on les fixe d'abord à la paraffine à l'intérieur et vers les extrémités d'épais tubes de verre, engagés eux-mêmes dans des enveloppes de plomb de 2 à 3 mm. d'épaisseur, pouvant glisser le long du verre, et par là absorber plus ou moins le rayonnement des ampoules. On règle le degré de compensation, soit en avançant les gaines de plomb sur les tubes de verre, soit en écartant légèrement les tubes de verre du fond des tubes T. Bien que

sont entourées de briques de plomb qui protègent du rayonnement le quartz, l'électromètre et l'opérateur. La vue du dispositif est donnée dans la planche 3¹.

Un soin particulier a été apporté à la construction des chambres qui doit satisfaire à plusieurs conditions. 1° La saturation doit être aussi complète que possible et, pour cela, il faut éviter les coins rentrants ou « poches à ions » où le champ est faible; 2° La polarisation du diélectrique doit être réduite au minimum; pour cela il faut que les lignes de force partant des surfaces chargées ne puissent aboutir au diélectrique; 3° on doit diminuer le plus possible les volumes nuisibles ionisés en dehors des chambres et supprimer, par l'emploi d'un seul métal, les forces électromotrices de contact qui produisent des courants à l'aide de ces ions. 4° La masse d'air ionisé doit rester constante dans chaque chambre, les chambres doivent

¹ Tous mes remerciements sont dus à M. G o n d e t pour les soins et la patience qu'il a apportés à la construction des chambres et aux retouches qu'elles ont subies.

les chambres soient étanches on n'y a pas fait varier la pression; on a préféré les remplir d'air sec à la pression atmosphérique et les conserver closes. Quand on avait obtenu le degré de compensation convenable, on fixait à la paraffine les tubes de verre dans les gaines, et celles-ci dans les manchons E qui, par construction, se placent dans les chambres toujours de la même manière à une grande précision. Les rayons utilisés traversent au moins 6 mm. de plomb et 5 mm. de laiton; ce sont donc des rayons γ de grand pouvoir pénétrant.

Les boîtes B et B' des deux chambres sont chargées, l'une à environ + 800 volts, l'autre à environ — 800 volts, au moyen de batteries de petits accumulateurs. Les mesures sont faites tantôt avec tension positive sur B, négative sur B' (série a), tantôt avec les charges interverties (série b). Pour se rendre compte de l'importance d'effets parasites compris sous le nom général de *mouvement propre*, on mesure d'abord celui-ci en absence des ampoules à chambres connectées ou à chambres déconnectées; puis, les ampoules étant installées, on mesure le mouvement propre quand les chambres sont déconnectées. A l'aide de ces expériences on peut établir les corrections à apporter aux mesures des séries a et b.

En raison des soins apportés à la construction, au montage et à la protection de l'appareil contre des perturbations d'origine mécanique, électrostatique ou radioactive, ces corrections, toujours très faibles, ne dépassaient pas $6 \cdot 10^{-4}$ E. S. On pouvait donc déceler un accroissement de courant de même ordre, ce qui correspondait à l'introduction dans l'une des chambres d'une quantité de radon égale à 0,007 millicurie.

Quand on mesure la différence des courants d'ionisation I et I' obtenus dans les deux chambres, l'écart relatif dans une série de mesures successives est d'autant plus grand que la compensation est meilleure et croît pour une même valeur de i avec I et I' . Cet écart attribuable probablement aux fluctuations radioactives a été très petit; la différence entre les valeurs extrêmes et la valeur moyenne atteignait à peine un vingt millième de I ou de I' . On ne peut cependant compter sur ce degré de précision, car les écarts entre les moyennes de séries distantes de quelques heures sont notablement plus importants, ce qui doit tenir à des perturbations extérieures. Néanmoins, la précision résultante sur les courbes obtenues permet de déceler une altération de l'ordre de un dixmillième de la constante radioactive.

La saturation du courant était réalisée très parfaitement. Pour des courants I et I' de 5 E. S. en appliquant une tension constante à l'une des chambres et en faisant varier la tension sur l'autre de 800 volts à 1.150 volts, on constate une variation sensiblement linéaire de i qui correspond à une variation de I de 1 à 2 dixmillièmes pour 100 volts, quel que soit le signe de la tension. On a retrouvé le même taux après décroissance de I et de I' de moitié.

En comparant les mesures consécutives de la série *a* et de la série *b* on trouve que la somme algébrique des courants *i* et *j* n'est pas nulle. On en déduit que dans chaque chambre le courant d'ionisation qui correspond à la tension positive est un peu plus intense que celui qui correspond à la tension négative de même valeur absolue. La différence relative est égale au quotient de la somme algébrique *i* + *j* par la somme *I* + *I'*. Elle a été dans ces expériences de l'ordre de 2×10^{-4} . On peut l'attribuer à l'action du champ sur les rayons β secondaires émis par les parois de la chambre, cette émission pouvant être dissymétrique.

8. Description des expériences

Il a été fait six expériences avec des ampoules de même forme dans les deux chambres, afin d'étudier les conditions de mesures qui viennent d'être exposées et afin de se rendre compte de la précision à espérer. Les expériences directes sont au nombre de quatre. Au cours des expériences l'appareil a été progressivement amélioré.

Expérience I (contrôle), faite avec des chambres d'essais. Chaque ampoule contenait environ 10 millicuries. Durée des expériences: environ une période. Compensation presque complète, l'électromètre n'accusant constamment qu'un courant très faible. L'égalité des périodes pour les deux ampoules est vérifiée à une précision qui dépasse un millième, limite extrême des différences observées: $\varepsilon < 1 \times 10^{-3}$.

Expérience II (contrôle): chambres spécialement construites. Quantité de radon dans chaque ampoule environ 20 mc. Durée de l'expérience 8 jours.

Rapport de compensation $\frac{I}{i} = 175$. La courbe $\log i$ en fonction du temps indique pour les trois premiers jours $\varepsilon = 0,002$; l'écart s'atténue ensuite et n'est plus que 6×10^{-5} sur les trois derniers jours.

Expérience III (contrôle). Les mesures sont faites avec tensions alternées (séries *a* et *b*). Quantité de radon, environ 21 mc. Durée des mesures 4 jours. Rapport de compensation 110. D'après série *a*, $\varepsilon = 1 \times 10^{-3}$; d'après série *b*, $\varepsilon = 1 \times 10^{-4}$.

Expérience IV (directe). Le radon concentré, 150 mc., était contenu dans une bulle de 3 à 4 mm³ de volume. Durée des mesures 9 jours. Les courbes qui donnent en fonction du temps $\log i$ et $\log j$ (séries *a* et *b*) s'éloignent peu de la pente normale. On élimine une partie des termes correctifs en construisant le logarithme de la valeur absolue de $\frac{i-j}{2}$ (*i* et *j* comptés en valeur algébrique). Le rapport de compensation relatif à cette moyenne est 700. Pour le

début de la courbe, l'écart de la pente normale est, $\varepsilon = -2 \times 10^{-4}$, ensuite la pente augmente et l'on a $\varepsilon = +2 \times 10^{-4}$.

Dans cette expérience les effets de polarisation du diélectrique et de courants parasites se sont manifestés accrus en raison de la grande quantité de radon employé. Il a été décidé d'améliorer les chambres ainsi que les connections.

Expérience V (contrôle). Quantité de radon, environ 25 mc. Durée des mesures, 6 jours. Rapport de compensation moyen, 600.

On n'a plus observé ici d'effets de polarisation, mais il subsistait des irrégularités dues au défaut d'isolement de l'anneau de garde. Les courbes qui donnent $\log |i|$ et $\log |j|$ en fonction du temps sont régulières. Pour chacune d'elles l'écart maximum de la pente normale correspond au plus à un écart $\varepsilon = 2,5 \times 10^{-4}$ entre les constantes radioactives. A la suite de cette expérience on a amélioré de nouveau la construction des chambres qui ont reçu alors leur forme définitive.

Expérience VI (contrôle). Manquée par suite d'un défaut d'étanchéité de l'une des chambres.

Expérience VII (directe). Le radon concentré, 236 mc., était contenu dans une bulle de 0,26 mm³ de volume, soufflée dans un tube capillaire de 0,058 mm. de diamètre; le volume nuisible (volume de tube capillaire conservé à la fermeture) était de 20% du volume total. Le radon peu concentré était contenu dans une ampoule de 30 mm. de longueur et 0,5 mm. de diamètre, volume environ 6,5 mm³. Courant initial dans chaque chambre, 18,3 E. S. Rapport de compensation, 500. Durée des mesures, 20 jours. Les courbes qui donnent $\log |i|$ et $\log |j|$ en fonction du temps sont parallèles, mais leur allure au début est anormale. On observe un accroissement suivi d'une décroissance, puis une nouvelle montée aboutissant à un palier, atteint après quatre jours, à partir

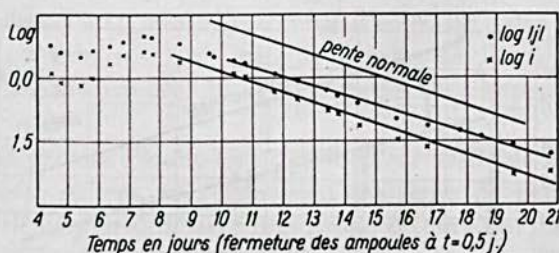


Fig. 6

duquel s'établit la pente normale. Huit jours après le début de l'expérience, cette pente est telle que $\varepsilon < 2 \times 10^{-4}$ pendant les onze jours suivants. Ces résultats sont représentés dans la fig. (6) sauf pour les 3 premiers jours.

Expérience VIII (contrôle). Cette expérience devait être en principe une expérience directe, mais la condensation dans la bulle ayant été insuffisante,

les conditions théoriques relatives à la différence de forme et de volume des deux ampoules n'étaient pas réalisées. Les mesures ont néanmoins été poursuivies. Quantité de radon environ 200 mc. dans chaque ampoule. Courant dans chaque chambre 17 E. S. Durée des mesures 6 jours. Compensation presque complète, à tel point que le courant observé change de sens par suite de la fluctuation sur les mesures. Cette égalité des courants s'est maintenue pendant six jours, de telle manière que le rapport de leur différence à chacun d'entre eux est resté constamment inférieur à 2×10^{-4} (fig. 8). La valeur moyenne de ε entre la première et la dernière mesure est $0,8 \times 10^{-4}$.

Expérience IX (directe). Le radon concentré, 260 mc., était contenu dans une bulle de volume 0,24 mm. avec canal d'accès de 0,048 mm. de diamètre. La longueur du canal conservée ayant été de 8 mm., l'espace nuisible était réduit à 6% du volume total. Le volume de l'ampoule de comparaison était environ 16 fois plus grand: longueur d'ampoule 20 mm. diamètre intérieur 0,5 mm. Courant initial dans chaque chambre, 18 E. S. Rapport de compensation 370. Durée des mesures 10 jours.

La préparation des ampoules étant terminée vers midi, et les mesures commencées le même jour à 17 heures, on observe une montée rapide de l'excès du courant produit par la bulle sur celui produit par l'ampoule normale. Cet effet qui s'est poursuivi pendant 8 heures a été attribué à la différence dans l'évolution du dépôt actif résultant de ce que l'ampoule normale avait été fermée une heure avant la bulle. Pour s'en assurer on a construit, à l'aide des données numériques de l'expérience, un tableau de nombres donnant en fonction du temps l'allure de la courbe d'après les prévisions théoriques: ce tableau rend compte de la montée observée.

Cette montée étant terminée, la décroissance des courants i et j s'affirme et se poursuit très régulièrement (fig. 7), à l'exception d'un accident qui s'est

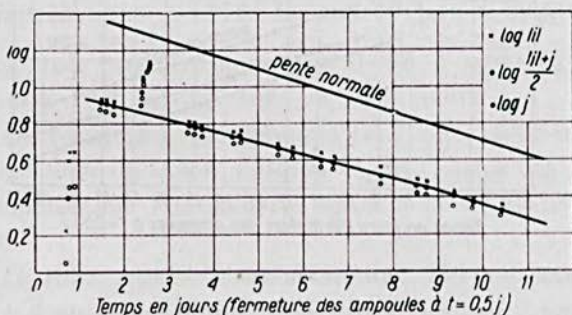


Fig. 7

produit entre $t = 40$ h. et $t = 45$ h. depuis le début des mesures. Cet accident consiste en une augmentation brusque de i et de j , suivie du retour aux courbes régulières. Si on en fait abstraction, on trouve que pour $\log i$ et $\log j$

en fonction du temps, la pente dans les quatre jours qui suivent la montée initiale offre une différence de 16% avec la pente normale, ce qui correspond à $\varepsilon = -5,8 \times 10^{-4}$. Pendant les trois derniers jours la pente est normale à une précision telle que $\varepsilon < 10^{-4}$. Les résultats sont représentés dans la fig. 7.

Pour expliquer la perturbation mentionnée ci-dessus, il y a lieu d'envisager diverses possibilités. Tout d'abord on a été amené à conclure que l'effet ne portait que sur l'un des deux courants,

car s'il y avait eu altération proportionnelle de I et I' , il eût fallu la supposer considérable. De plus la distance approximativement constante qui existe entre les courbes logarithmiques des séries a et b est diminuée dans la région perturbée, ainsi que cela doit avoir lieu si le courant de bulle a seul subi la perturbation en augmentant brusquement

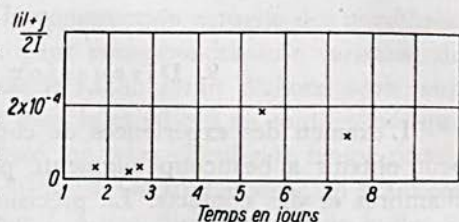


Fig. 8

pour redescendre ensuite. Je pense finalement que l'effet a pu être produit par une ou plusieurs décharges électriques dans la bulle, avec volatilisation du dépôt actif et condensation de celui-ci dans la petite queue de la bulle, ce qui aurait eu pour effet une augmentation brusque du courant suivie d'un retour au régime normal en quelques heures. On a vu que de telles décharges électriques se sont produites effectivement à plusieurs reprises dans la bulle pendant la condensation sous pression réduite à basse température. Quand, à la température normale, la pression dans la bulle est augmentée, ces décharges n'ont plus lieu; on peut cependant penser qu'il s'en est encore produit une par accumulation de charges particulièrement efficace.

Expérience X (directe). Le radon concentré, 270 mc., était contenu dans une bulle de volume $0,21 \text{ mm}^3$, avec canal d'accès de $0,048 \text{ mm.}$ de diamètre. L'ampoule de comparaison était pareille à celle de l'expérience précédente. Courant dans chaque chambre, 20 E. S. Rapport de compensation, 750. Durée des mesures 7 jours.

Pendant les premiers jours les points représentatifs de $\log i$ et $\log j$, quoique peu réguliers, restent au voisinage d'une ligne de pente normale tracée au jugé. Le huitième jour il devient impossible de faire des mesures, et on constate un dégagement de radon à l'extérieur. On examine alors la bulle et on aperçoit une fissure oblique au travers de la paroi de la queue capillaire. Il y a lieu de penser que cette fissure provient d'une étincelle qui avait été vue lors de la fermeture de la bulle, et qu'elle s'est aggravée subitement après avoir produit jusque-là des irrégularités peu importantes. Pour les 6 jours de mesures on peut estimer que $\varepsilon = -3 \times 10^{-4}$.

Devant la difficulté qu'il y a à organiser chacune de ces expériences directes, il n'a pas paru opportun de les continuer sous une forme où les acci-

dents dus aux étincelles ne peuvent être exclus avec certitude. Il semble, d'autre part, difficile de dissiper la charge électrique à l'extérieur au moyen d'un fil de métal fin communiquant avec l'intérieur de la bulle. Quant à la fermeture au mercure, elle avait été écartée, en raison de l'incertitude qui en résulterait sur le comportement du dépôt actif. Pour ces raisons j'ai provisoirement renoncé à pousser l'expérience plus loin, espérant la reprendre plus tard dans des conditions modifiées.

9. Discussion des résultats

L'examen des expériences de contrôle prouve que la précision que l'on peut obtenir a beaucoup augmenté par les perfectionnements successifs des chambres et des contacts. La précision finalement obtenue avec des quantités de radon comparables à celles utilisées dans les expériences directes correspond à une valeur de ε qui ne dépasse pas 10^{-4} . Ceci prouve que dans des conditions convenables la constante de l'émanation doit pouvoir être déterminée en valeur absolue à une précision de cet ordre. La précision récemment atteinte pour la détermination absolue est 1 pour 2000¹.

Parmi les quatre expériences directes, la première a été faite dans des conditions moins bonnes que les trois suivantes (appareil moins parfait, volume de bulle plus grand).

Dans les trois autres expériences, faites dans des conditions semblables, on observe au début des altérations; après quelques jours la loi normale s'établit pour les expériences VII et IX à la précision de 10^{-4} , tandis que l'expérience X a dû être interrompue. Les valeurs de ε pour le courant de bulle dans les expériences IX et X sont au début négatives, avec les valeurs approchées — 6×10^{-4} et — 3×10^{-4} ; dans l'expérience VII il y a une oscillation initiale inexplicée; la partie de la courbe qui comprend le dernier maximum correspond à une valeur positive de ε ; à l'instant même du maximum on a $\varepsilon = + 2 \times 10^{-3}$, la quantité de radon n'étant plus que 70 mc. La conclusion qui semble donc s'imposer c'est qu'il y a eu au début de l'expérience VII des causes d'erreurs plus importantes que dans les expériences IX et X.

Dans l'ensemble, on peut dire que les expériences considérées n'ont mis en évidence aucune altération de la constante radioactive du radon concentré, à la précision de 5×10^{-4} .

Il est cependant certain que quand l'une des ampoules est une bulle avec radon concentré, les débuts de courbe présentent des altérations qui n'existent pas dans l'expérience de contrôle VIII faite avec une quantité de radon analogue. Toutefois, si l'effet est réel, on ne peut l'attribuer à des chocs disruptifs puisqu'il correspond à une valeur négative de ε .

¹ Mlle Irène Curie et Mlle Chamié, C. R., 26 mai 1924, t. 178, p. 1808.

En examinant les causes d'erreurs possibles, on doit tout d'abord tenir compte de la différence difficile à éviter dans l'état initial des deux ampoules. On a tenu compte de cette différence pour l'évolution du dépôt actif (expérience IX); l'erreur qui peut en résulter ne pouvait porter sur un temps supérieur à 12 heures.

En second lieu, on peut se demander dans quelle mesure l'expérience pourrait être influencée par la diffusion du radon dans le petit récipient formé par la bulle et sa queue. En effet, avec la construction actuelle des chambres, à un déplacement d'ampoule de 1 cm. peut correspondre une variation de courant de 2%. Prenant le cas limite où le radon serait d'abord seulement dans la bulle, et où il n'y en aurait point dans le canal qui ne contiendrait que des gaz étrangers présents comme impureté, on peut calculer le temps nécessaire pour que l'équilibre s'établisse par diffusion. On trouve ainsi, en première approximation, pour un canal de longueur l , à une distance x de la bulle, la concentration n telle que

$$\frac{n}{n_0} = 1 - \frac{4}{\pi} \sin \frac{\pi x}{2l} e^{-\frac{\pi^2 D t}{4l^2}}$$

où n est la concentration dans la bulle, supposée constante et D le coefficient de diffusion du radon dans le mélange gazeux. Ce coefficient est égal à 0,1 C. G. S. dans l'air à pression et température normale. La bulle contient le radon sous une pression initiale de l'ordre de 0,5 atmosphère et peut contenir en plus des traces de gaz étrangers condensables; il est cependant très probable que la pression de ces derniers ne peut être importante, d'une part parce que la purification est soignée, d'autre part, parce que la fermeture de la bulle serait en ce cas probablement impossible. Or, même en admettant $D = 0,001$ on trouve que la diffusion serait achevée à une approximation suffisante en moins d'une heure.

De toute manière, il serait utile d'éliminer toute cause d'erreur provenant du déplacement du radon où de son dépôt actif entre la bulle et la queue, ce qui pourrait être réalisé dans une chambre où la bulle occuperait une position suffisamment symétrique. C'est donc là une des conditions nécessaires pour continuer les expériences, et il faudrait, de plus, éviter le danger des décharges intérieures à la bulle. Des essais vont être continués dans cette voie.

Il reste à voir s'il y a quelque chance pour que les perturbations observées ne correspondent pas à des causes d'erreur et puissent avoir un rapport avec la transformation radioactive. Pour cela calculons la valeur de b qui correspond à ces perturbations comme s'il s'agissait de chocs, car on peut penser que tout effet sur la transformation d'un atome de radon serait déterminé par le passage à proximité d'un rayon α , d'un rayon β ou d'un rayon γ ; le nombre de chocs avec une même valeur de b serait du même ordre dans tous les

cas. Or nous avons admis pour ce nombre la valeur $N = \frac{3}{2} b^2 \frac{\lambda q^2}{R^2} = kq^2$

d'où $\varepsilon = \frac{2kq}{\lambda} = \frac{3b^2q}{R^2}$. Si dans l'expérience IX on considère la bulle comme sphérique, on en déduit que pour les quatre jours où $\varepsilon = 6 \times 10^{-4}$, b est compris entre 9×10^{-12} cm. et 13×10^{-12} cm. Les expériences sur la dispersion des rayons α^1 indiquent que les dimensions de gros noyaux (platine) sont de l'ordre de 7×10^{-12} cm. Il n'y a donc rien d'impossible à ce que les chocs correspondant à la valeur de b ci-dessus indiquée aient un effet sur la transformation radioactive.

10. Conclusions

1. La vitesse de transformation radioactive du radon conserve sa valeur normale à la précision de 1 pour 2.000, quand le radon est enfermé dans une petite cavité sphérique, sous une pression partielle d'environ 0,5 atmosphère, dans un volume d'environ 0,2 mm³, en quantité de 200 millicuries.

2. Il se produit, néanmoins, en ce cas des perturbations correspondant à un écart de l'ordre de 5×10^{-4} sur la constante radioactive. Ces perturbations peuvent correspondre soit à des causes d'erreur qui ont été discutées dans ce mémoire, soit à un petit effet réel. Pour éclaircir ce point, de nouvelles expériences sont nécessaires avec un dispositif modifié.

3. La comparaison d'ampoules semblables prouve que la précision sur la détermination de la constante du radon doit pouvoir atteindre le dix-millième dans des conditions convenables.

Dans ces expériences qui ont présenté de nombreuses difficultés et ont exigé un travail matériel considérable, j'ai été aidée par Mlle Irène Curie et par M. Cailliet que je remercie pour leur concours.

Je remercie aussi M. Holweck pour son aimable assistance dans quelques prises d'émanation.

¹ Chadwick, *Phil. Mag.*, t. XL, 1920.