



HAL
open science

Sur l'accroissement du débit de chaleur des sels de radium par formation de polonium

Mme Pierre Null Curie, D.-K. Yovanovitch

► **To cite this version:**

Mme Pierre Null Curie, D.-K. Yovanovitch. Sur l'accroissement du débit de chaleur des sels de radium par formation de polonium. *Journal de Physique et le Radium*, 1925, 6 (2), pp.33-35. 10.1051/jphys-rad:019250060203300 . jpa-00205175

HAL Id: jpa-00205175

<https://hal.science/jpa-00205175>

Submitted on 4 Feb 2008

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE

ET

LE RADIUM

SUR L'ACCROISSEMENT DU DÉBIT DE CHALEUR
DES SELS DE RADIUM PAR FORMATION DE POLONIUMpar M^{me} PIERRE CURIE et M. D.-K. YOVANOVITCH

Sommaire. — Le débit calorifique d'un sel de radium anciennement préparé a été comparé à celui d'un sel de préparation récente, et la comparaison de ces deux quantités de radium a été faite par la mesure du rayonnement γ . On constate, conformément aux prévisions théoriques, que le débit calorifique, à quantité de radium égale, a subi en 16,75 ans un accroissement de 11 pour 100 attribuable à la formation de polonium par l'intermédiaire de RaD et RaE. On en conclut que cette formation s'est poursuivie d'une manière normale dans le milieu formé par le chlorure de radium pur.

Un sel de radium qui, après sa préparation, a atteint, en un mois environ, un équilibre radioactif entre le radium et ses descendants à évolution rapide : radon, RaA, RaB, RaC, émet quatre groupes de rayons α ; le débit correspondant de chaleur Δ est égal à 123,6 calories par gramme de radium et heure ⁽¹⁾. Un cinquième groupe de rayons α apparaît ensuite progressivement en raison de la formation de polonium par l'intermédiaire de RaD et RaE. On peut calculer l'accroissement du débit de chaleur dû à cette cause. Si ce débit est proportionnel à l'énergie cinétique des rayons α et si le nombre de rayons dans chaque groupe est le même à l'état de régime, le débit de régime Δ' dû au polonium serait à Δ comme v_5^2 est à $S = v_1^2 + v_2^2 + v_3^2 + v_4^2$, où v_1, v_2, v_3, v_4 sont les vitesses d'émission des quatre premiers groupes, et v_5 , celle du groupe du polonium. Déduisant S des mesures de Rutherford et Robinson ⁽²⁾ et prenant $v_5 = 4,593 \times 10^9$ cm : s d'après Irène Curie ⁽³⁾, on trouve $\Delta' = 27,4$ calories par heure pour le polonium en équilibre avec un gramme de radium. Une autre méthode consiste à admettre que l'énergie cinétique est proportionnelle à $\rho^2/3$, où ρ est le parcours des rayons. On obtient ainsi pour Δ' une valeur égale à $0,2204 \times 123,6$ cal : h, soit 27,24 cal : h. Ce nombre est peu différent du précédent; que nous conserverons de préférence, pour ne pas faire intervenir l'incertitude sur la définition du parcours.

L'évolution de Po à partir de Ra en fonction du temps t peut se ramener à un problème de trois corps Ra, RaD et Po, en négligeant les termes intermédiaires, dont les périodes sont courtes par rapport à celles considérées. Désignons par $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3$ les constantes radioactives de Ra, RaD, et Po; par R et P , les nombres d'atomes de radium et de polonium au temps t ; la théorie des transformations radioactives nous apprend que

$$P = \lambda_1 \lambda_2 R \left[\frac{1}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)} + \frac{e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)} + \frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)} \right]$$

⁽¹⁾ RUTHERFORD et ROBINSON, *Phil. Mag.*, t. 25 (1913), p. 312.

⁽²⁾ RUTHERFORD et ROBINSON, *Phil. Mag.*, t. 28 (1914), p. 552.

⁽³⁾ IRÈNE CURIE, *C. R.*, t. 175 (1922), p. 229.

Négligeant λ_1 , par rapport à λ_3 , on trouve

$$\frac{\lambda_3 P}{\lambda_1 R} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \left[1 - \frac{\lambda_2}{\lambda_3 - \lambda_2} e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t} + \frac{\lambda_2 - \lambda_1}{\lambda_3 - \lambda_2} e^{-\lambda_3 t} \right];$$

$$\frac{\Delta'}{\Delta} = \frac{27,4}{123,6} \times \frac{\lambda_3 P}{\lambda_1 R}.$$

Pour le calcul numérique, on a admis que les périodes de Ra, RaD et Po sont 4 600 ans, 16 ans et 139,5 jours (1).

On obtient alors, exprimant le temps en années

$$\frac{\Delta'}{\Delta} = 0,224 [1 - 1,024 e^{-0,0429 t} + 0,024 e^{-1,814 t}],$$

formule qui se réduit à ses deux premiers termes, pour une valeur suffisante de t .

Nous avons pu comparer la théorie ci-dessus à l'expérience dans les conditions suivantes : l'un de nous a préparé en août 1907 une ampoule contenant du chlorure de radium soigneusement purifié, pris sur l'échantillon qui avait servi à la détermination du poids atomique du radium (2).

La séparation des corps D, E et F par l'hydrogène sulfuré avait eu lieu en juillet 1906 et, un an après, les petites quantités reformées de ces corps ont été éliminées lors des nombreuses cristallisations en solution chlorhydrique très acide. Une partie du sel ainsi purifié (19,4 mg Ra) a été enfermée dans une ampoule qui est conservée au Laboratoire Curie à titre d'étalon sous la désignation A 23, et dont l'âge, au point de vue de la formation des corps D, E et F est compté à partir d'août 1907.

En avril 1924, le rayonnement γ de cette ampoule et son débit de chaleur ont été comparés à ceux de l'étalon secondaire E.S. 19, préparé pour la Belgique par la Commission des Etalons. D'après les conditions de purification du sel utilisé pour cet étalon, on pouvait lui assigner un âge de quelques mois à un an, de sorte que le rapport Δ'/Δ ne devait guère dépasser 0,005, alors que sa valeur pour A 23 (âge 16,75 ans) était 0,112. La comparaison des rayonnements γ (\mathcal{J}' pour A 23, \mathcal{J} pour E.S. 19) a donné le résultat :

$$\frac{\mathcal{J}}{\mathcal{J}'} = 1,120.$$

Les rayons γ utilisés sont ceux de RaC. La comparaison n'est pas influencée par la présence des corps D, E et F qui ne donnent pas de rayons γ assez pénétrants pour intervenir dans les mesures faites au travers de 1 cm de plomb. Ce point a fait l'objet d'une vérification récente (3). Par conséquent, le rapport ci-dessus mesure sans ambiguïté le rapport des quantités de radium dans les deux ampoules.

La comparaison des débits calorifiques a été faite par l'un de nous dans un calorimètre construit et étudié par lui (4). Ce calorimètre est très peu absorbant, de sorte que la part des rayons β et γ , toujours beaucoup plus faible que celle des rayons α au point de vue de la chaleur dégagée, s'y trouve particulièrement réduite. On peut donc négliger l'effet calorifique des rayons β et γ des corps D, E et F dans A 23, tandis que l'effet des rayons β et γ de RaB et RaC est proportionnel à la quantité de radium. L'altération relative du débit de chaleur peut donc être attribuée à la formation de polonium uniquement. L'expérience a donné, pour l'ampoule ancienne et l'ampoule récente, des débits Q' et Q tels que

$$\frac{Q}{Q'} = 1,009,$$

(1) Ces périodes sont celles actuellement admises, sauf la période que nous indiquons d'après le travail récent très étendu de M^{lle} Maracineanu, *Thèse de Doctorat*, Paris, 1924.

(2) M^{me} P. CURIE, *Le Radium*, t. 4 (1907), p. 313.

(3) IRÈNE CURIE et C. CHAMÉ, *Journ. de Phys.*, t. 5 (1924), p. 238.

(4) D.-K. YOVANOVITCH, *C. R.*, t. 179 (1924), p. 163.

d'où, pour l'augmentation relative du débit de l'ampoule ancienne,

$$s = \frac{1,120}{1,009} = 1,110.$$

Or, on a vu plus haut que le rapport d'augmentation absolue $\frac{\Delta + \Delta'}{\Delta}$ prévu par le calcul est 1,112 pour A23 et que pour E.S. 19 il est compris entre 1 et 1,005. Par suite, la valeur prévue pour s est comprise entre 1,112 et 1,107, en bon accord avec l'expérience.

Une deuxième comparaison a pu être faite en août 1924, entre A23 et une ampoule de radium notée 921, contenant du chlorure de radium spécialement purifié; l'origine d'accumulation des corps D, E et F, parfaitement définie, est fixée au 28 mai 1924 (1). On a obtenu en ce cas

$$\begin{aligned} \frac{\mathcal{J}}{\mathcal{J}'} &= 1,425 & \frac{Q}{Q'} &= 1,293 \\ s \text{ observé} & & \frac{1,425}{1,293} &= 1,102 \\ s \text{ calculé} & & &= 1,113. \end{aligned}$$

L'écart de ces valeurs est 1 pour 100.

Les expériences ici décrites sont en accord avec la théorie en ce qui concerne la loi de formation du polonium, les valeurs admises pour les constantes radioactives et la proportionnalité du débit calorifique à l'énergie cinétique des rayons α . Elles prouvent aussi que la formation de RaD et de polonium ne subit aucune altération importante dans le milieu formé par le chlorure de radium pur (2). Le maximum du débit calorifique doit avoir lieu en 110 ans environ.

On pourrait tenter de contrôler par cette voie la valeur de la période T de RaD. Si celle-ci était égale à vingt ans, la valeur prévue pour s dans la seconde expérience serait 1,097 et concorderait mieux avec la valeur observée. D'autre part, l'observation directe de la décroissance de RaD conduirait à une période supérieure à 16 ans (3) à moins que la matière utilisée ne contienne comme impureté un radioélément à vie longue. Pour que la mesure de s permette de fixer la valeur de T à un an près, il faudrait atteindre sur cette mesure la précision de 0,2 pour 100, tandis que la précision présumée est 0,5 pour 100 à 1 pour 100.

(1) Nous devons la préparation de cette ampoule à l'obligeance de M. Leemans, directeur de l'Usine du Radium d'Oolen.

(2) S. RUSSELL et J. CHADWICK ont signalé un déficit important (plus de 60 pour 100) par rapport aux prévisions sur la quantité de polonium extrait de sels de radium d'un âge connu. D'après nos résultats, un déficit réel de cet ordre est improbable et il doit s'agir d'un défaut d'extraction ou d'évaluation. [*Phil. Mag.* t. 27 (1914), p. 112].

(3) Il s'agit de mesures sur lesquelles il a été fait une publication en 1910 [M^{me} CURIE. *Le Radium*, t. 8 (1911), p. 333] et qui ont été poursuivies jusqu'à présent.