



**HAL**  
open science

# I. Production artificielle d'éléments radioactifs - II. Preuve chimique de la transmutation des éléments

Irène Curie, F. Joliot

► **To cite this version:**

Irène Curie, F. Joliot. I. Production artificielle d'éléments radioactifs - II. Preuve chimique de la transmutation des éléments. *Journal de Physique et le Radium*, 1934, 5 (4), pp.153-156. 10.1051/jphys-rad:0193400504015300 . jpa-00233216

**HAL Id: jpa-00233216**

**<https://hal.science/jpa-00233216>**

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.

# I. PRODUCTION ARTIFICIELLE D'ÉLÉMENTS RADIOACTIFS

## II. PREUVE CHIMIQUE DE LA TRANSMUTATION DES ÉLÉMENTS

Par M<sup>me</sup> IRÈNE CURIE et F. JOLIOT.

Institut du Radium de Paris.

**Sommaire.** — Le bore, le magnésium et l'aluminium, après irradiation par les rayons  $\alpha$  du polonium montrent une radioactivité durable qui se manifeste, dans le cas de B et Al, par l'émission de positrons, tandis que dans le cas de Mg il y a émission d'électrons négatifs et de positrons. Des radioéléments ont été créés par transmutation.

Leur destruction suit une loi exponentielle; la décroissance de moitié a lieu en 14 min., 2 min. 30 sec., 3 min. 15 sec., pour B, Mg et Al respectivement. Elle est indépendante de l'énergie des rayons  $\alpha$  excitateurs.

Le rayonnement émis par Al et B irradiés est exclusivement composé de positrons sans électrons négatifs, et forme un spectre continu comme le spectre naturel de rayons  $\beta$  des corps radioactifs. L'énergie maximum du rayonnement de positrons est de l'ordre de  $1,5 \times 10^6$  eV pour B,  $3 \times 10^6$  eV pour Al.

Les électrons positifs et négatifs de Mg forment deux spectres continus et correspondant sans doute à la transmutation de deux isotopes de Mg.

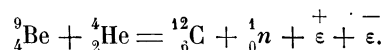
Ces éléments radioactifs nouveaux sont probablement des noyaux  $^{13}_7\text{N}$ ,  $^{27}_{14}\text{Si}$ ,  $^{28}_{13}\text{Al}$ ,  $^{30}_{15}\text{P}$ , formés à partir des noyaux  $^{10}_5\text{B}$ ,  $^{24}_{12}\text{Mg}$ ,  $^{25}_{12}\text{Mg}$  et  $^{27}_{13}\text{Al}$ .

On a séparé chimiquement, du bore et de l'aluminium, les éléments radioactifs qui s'y forment par irradiation, lesquels présentent, comme il était prévu, les propriétés chimiques de l'azote et du phosphore respectivement. Ces expériences constituent la première preuve chimique des transmutations artificielles.

On propose d'appeler radioazote, radiosilicium, radioaluminium, radiophosphore les nouveaux radioéléments.

Nous avons montré récemment que certains éléments légers (glucinium, bore, aluminium) émettent des électrons positifs lorsqu'on les bombarde avec les rayons  $\alpha$  du polonium (1).

Le glucinium émet des électrons positifs et négatifs, d'énergies comparables, atteignant plusieurs millions d'électron-volts. Nous avons attribué l'émission de ces électrons à la « matérialisation interne » du rayonnement  $\gamma$  de grande énergie quantique ( $5 \times 10^5$  eV) émis par le glucinium.



L'aluminium émet, au contraire, seulement des électrons positifs, dont l'énergie peut atteindre  $3 \times 10^6$  eV. Les électrons négatifs observés sont tous attribuables au polonium (électrons émis par conversion interne du rayonnement  $\gamma$ ) et leur énergie n'excède pas  $0,9 \times 10^6$  eV.

Nous avons considéré les électrons positifs comme de véritables « électrons de transmutation » dont l'émission intervient dans la transformation nucléaire.

Au cours d'expériences faites en vue de déterminer l'énergie minimum des rayons  $\alpha$  excitant les positrons de l'aluminium, nous nous sommes aperçus que l'émission n'est pas instantanée, mais elle ne se produit qu'après quelques minutes d'irradiation et se poursuit quelque temps après la cessation de l'irradiation (2).

On irradie une feuille d'aluminium avec les rayons  $\alpha$  d'une forte source de polonium pendant quelques minutes; quand on retire la feuille, elle possède une

activité qui décroît de moitié en 3 min. 15 sec.; le rayonnement émis, que l'on peut observer au moyen d'un compteur ou à l'appareil Wilson, est constitué pas des électrons positifs.

Le bore et le magnésium irradié présentent aussi une radioactivité durable, de périodes 14 min. et 2 min. 1/2, respectivement.

La décroissance suit une loi exponentielle.

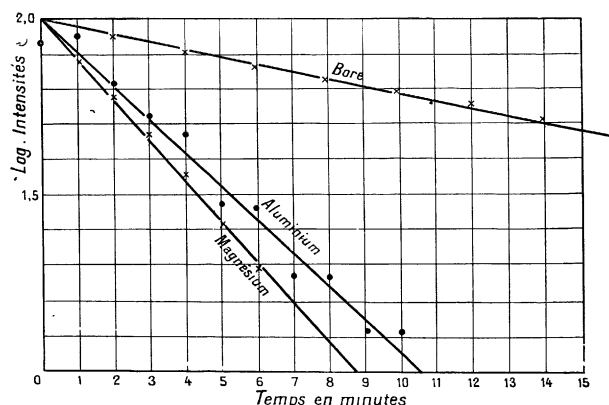


Fig. 1.

Les courbes de la figure 1 représentent la variation du logarithme des intensités en fonction du temps.

Nous sommes donc en présence de radioéléments nouveaux et d'un nouveau type de radioactivité avec émission d'électrons positifs.

L'intensité initiale du rayonnement observé croît

(1) IRÈNE CURIE et F. JOLIOT, *J. phys. et Rad.* (1933), 4, 494.

(2) IRÈNE CURIE et F. JOLIOT, *C. R.* (1934), 198, 254.

avec le temps d'irradiation  $t$ , jusqu'à une valeur limite  $I_\infty$ , suivant une loi  $I = I_\infty (1 - e^{-\lambda t})$  comme, par exemple, l'accumulation du radon dans le radium. On atteint l'activation limite après quelques périodes du corps radioactif formé (environ un quart d'heure pour l'aluminium, une heure pour le bore).

Si on active à saturation sur une source de polonium de 60 millicuries et si l'on place immédiatement la source près d'un compteur à fenêtre mince permettant de compter les électrons, le nombre d'impulsions est du même ordre, environ 150 par minute, avec le bore, l'aluminium et le magnésium. On peut calculer, en tenant compte de l'angle solide utilisé, que ceci correspond à un rendement de création de noyaux actifs de l'ordre de  $10^{-6}$  par rapport au nombre de rayons  $\alpha$  incidents, comme on peut s'y attendre pour un phénomène de transmutation.

Malgré les rendements d'activation peu différents pour le bore, le magnésium et l'aluminium, les expériences sont plus difficiles avec le magnésium en raison de la décroissance plus rapide de l'activité.

Avec les éléments H, Li, C, Be, N, O, F, Na, Ca, Ni, Ag, aucun effet n'a été observé. Pour certains de ces éléments le phénomène ne se produit probablement pas, pour d'autres la période de décroissance est peut-être trop courte ou trop longue, car il faudrait alors une longue irradiation.

Le rayonnement émis par Al est absorbé en majeure partie dans 1 gr/cm<sup>2</sup> de cuivre, celui de B et Mg dans 0,26 gr/cm<sup>2</sup>.

Le rayonnement de l'aluminium et de bore irradiés, photographié par la méthode de Wilson dans un champ magnétique, s'est montré composé uniquement de positrons, sans électrons négatifs. S'il y avait émission d'électrons négatifs, ils devraient être très rares, ou bien leur énergie devrait être inférieure à 200 000 eV.

Voici les courbes de répartition de l'énergie des électrons positifs observés.

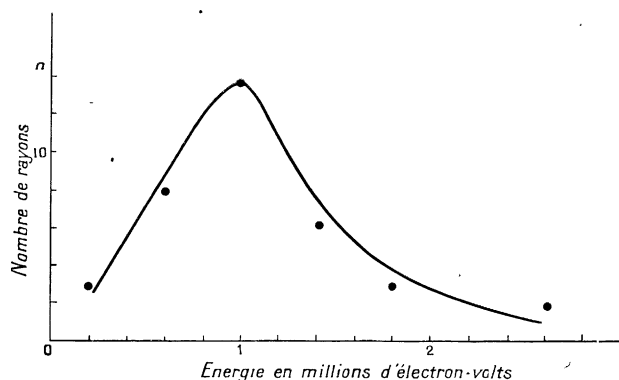


Fig. 2. — Radiophosphore.

Pour Al les électrons sont répartis suivant un spectre continu présentant un maximum d'intensité vers  $10^6$  eV et une limite supérieure d'énergie voisine de  $3 \times 10^6$  eV. Pour le bore le maximum d'intensité

est vers  $0,5 \times 10^6$  eV et la limite supérieure d'énergie voisine de  $1,5 \times 10^6$  eV.

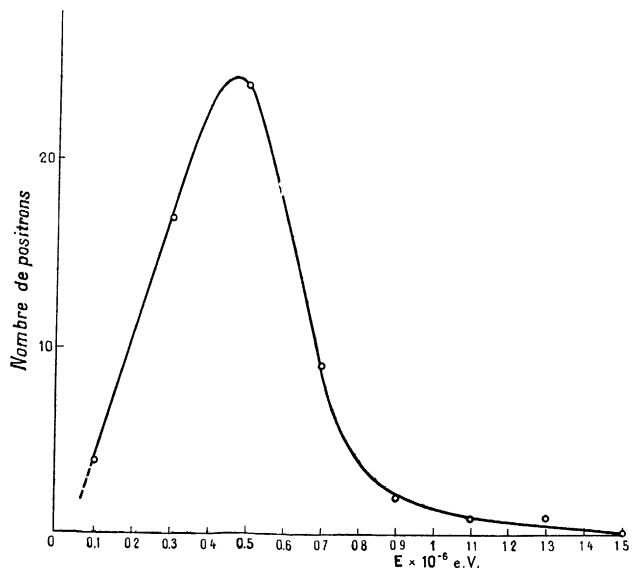


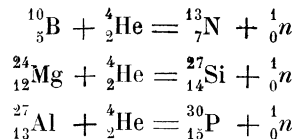
Fig. 3. — Radioazote.

Le magnésium irradié émet des électrons négatifs et des électrons positifs, formant deux spectres continus d'énergie maximum environ  $2,2 \times 10^6$  eV et  $1,5 \times 10^6$  eV respectivement.

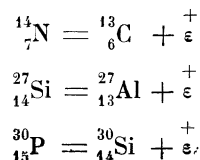
**Nature des éléments formés.** — Sur la nature des éléments formés, on peut faire deux hypothèses : les noyaux actifs sont des isotopes instables de certains éléments légers, ou des noyaux stables connus, créés dans un état d'excitation particulier. La première hypothèse nous paraît la plus vraisemblable.

Voici les réactions nucléaires que nous admettons en accord avec notre première interprétation des électrons positifs de transmutation.

Les noyaux  $^{10}_5\text{B}$ ,  $^{24}_{12}\text{Mg}$ ,  $^{27}_{13}\text{Al}$  subissent une transmutation, avec capture de la particule  $\alpha$  et émission d'un neutron



Les isotopes  $^{13}_7\text{N}$ ,  $^{27}_{14}\text{Si}$ ,  $^{30}_{15}\text{P}$  ne sont pas connus. Ce sont probablement des noyaux instables qui se détruisent avec émission de positrons en donnant les noyaux stables  $^{12}_6\text{C}$ ,  $^{27}_{13}\text{Al}$ ,  $^{30}_{14}\text{Si}$ .

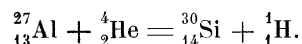


Il est très probable que le fluor et le sodium  $^{19}_9\text{F}$  et  $^{23}_{11}\text{Na}$  qui émettent des protons et des neutrons, sous l'action des rayons  $\alpha$ , donnent des isotopes instables  $^{22}_{11}\text{Na}$  et  $^{26}_{13}\text{Al}$  qui se détruisent avec émission de positrons en donnant les noyaux stables  $^{22}_{10}\text{Ne}$  et  $^{26}_{12}\text{Mg}$ . La période des éléments instables n'est probablement pas favorable pour l'observation.

Le radioélément émetteur de rayons  $\beta$  créé dans le magnésium irradié est probablement un noyau  $^{28}_{13}\text{Al}$ , formé à partir de  $^{25}_{12}\text{Mg}$  par capture de la particule  $\alpha$  et émission d'un proton. Les électrons négatifs étant plus nombreux que les positifs, il est probable que la période de 2 mn 15 s observée correspond à ce radioélément.

En raison de la loi de conservation de l'énergie et du spin, il faudra sans doute admettre que l'émission des électrons positifs est accompagnée de celle d'un neutrino, comme dans le cas du spectre de rayons  $\beta$  des radioéléments ordinaires, ou peut-être ici un « antineutrino » de Louis de Broglie.

En effet, l'émission d'un proton de transmutation de Al par exemple, aurait lieu suivant la réaction



Celle d'un neutron suivie de celle de l'électron positif conduirait au même noyau  $^{30}_{14}\text{Si}$ . Dans le second mode de transmutation, l'émission du proton serait donc remplacée par celle d'un neutron et d'un électron positif. Le proton, le neutron et l'électron positif étant supposés avoir un spin 1/2, ceci n'est possible qu'à condition d'admettre l'émission d'une autre particule de spin 1/2.

Si nos hypothèses concernant les transformations nucléaires sont exactes, l'énergie minimum des rayons  $\alpha$  nécessaire pour créer les radioéléments nouveaux doit être la même que l'énergie minimum d'excitation des neutrons.

Des expériences ont été faites en excitant le rayonnement de B, Mg et Al par des rayons  $\alpha$  ralentis par des écrans minces. La période des radioéléments formés ne dépend pas de l'énergie des rayons  $\alpha$  incidents. On n'a pas non plus établi de différence dans la pénétration du rayonnement.

L'énergie minimum des particules  $\alpha$  nécessaire pour l'excitation des neutrons est de  $2 \times 10^6$  eV pour B (1 cm de parcours), 4 à  $4,5 \times 10^6$  eV pour Mg et Al (3 cm de parcours). Pour Mg et Al, la limite d'émission des électrons positifs a été trouvée la même que celle des neutrons dans la limite de précision des expériences. Pour B, on a observé l'excitation des électrons positifs pour des rayons  $\alpha$  d'environ  $3 \times 10^6$  eV (2 cm de parcours), et il est très probable que seul le manque d'intensité empêche de les observer jusqu'à  $2 \times 10^6$  eV.

**Preuve chimique des transmutations.** — Les phénomènes de transmutation artificielle des éléments

se présentent à nous avec un caractère de certitude. Les expériences de physique ont démontré l'existence de ces phénomènes et ont même permis de conclure que les particules qui produisent la transmutation sont capturées dans le noyau, ainsi que les expériences de Blackett l'ont montré tout d'abord pour la transmutation de l'azote pour les rayons  $\alpha$  avec émission d'un proton.

Cependant, la réalité des transmutations n'a jamais pu être vérifiée par la voie chimique comme dans le cas de la désintégration naturelle des éléments radioactifs. Cela tient à ce que le petit nombre d'atomes produit lors de ces transmutations artificielles, ne peut être décelé par aucun procédé d'analyse et, par conséquent, on ne peut reconnaître leurs propriétés chimiques.

Ici, au contraire, nous obtenons en irradiant du bore, du magnésium et de l'aluminium, des noyaux différents, en très petit nombre, mais que leurs propriétés radioactives permettent de déceler.

Nous nous sommes proposés de contrôler les hypothèses que nous avons faites sur la nature de ces éléments en déterminant leur espèce chimique (1).

*Transmutation du bore :* Le bore, constitué de grains très durs et peu attaquables, se prête mal aux expériences. Nous avons irradié de l'azoture de bore (l'azote ne produit pas d'effet). L'azoture de bore BN est décomposé par la soude à chaud et l'azote est libéré sous forme d'ammoniaque. Cette opération peut être effectuée en quelques minutes. On constate que le bore perd son activité. L'ammoniaque dégagée est recueillie dans un tube à parois minces que l'on mesure avec l'électromètre Hoffmann, sur une chambre d'ionisation fermée par une feuille mince d'aluminium. Tenant compte de la décroissance de l'activité pendant l'opération, on constate qu'une grande partie de l'activité se retrouve dans le tube. Le radioélément présente donc les propriétés chimiques de l'azote; il s'est dégagé sous forme d'azote ou sous forme d'ammoniaque, entraîné par l'ammoniaque inactif.

*Transmutation de l'aluminium :* Une feuille mince d'aluminium irradié est dissoute dans HCl. Le sel d'aluminium immédiatement séché est presque complètement inactif. L'hydrogène dégagé peut être recueilli dans un tube à parois minces et l'on constate qu'il a entraîné l'activité. Il faut opérer très vite en raison de la décroissance rapide de l'activité; on peut effectuer l'opération en 3 minutes.

Le radioélément qui doit avoir les propriétés du phosphore a dû partir à l'état gazeux sous forme d'hydrogène phosphoré produit par l'hydrogène naissant. Si l'on dissout Al en milieu oxydant HCl +  $\text{NO}^3\text{H}$ , l'activité reste avec l'aluminium.

Cependant les réactions ci-dessus se produiraient de la même manière si le radioélément avait les propriétés du silicium, car, en ce cas, l'hydrogène silicé serait formé.

(1) Irène CURIE et F. JOLIOU, C. R. 1934, 498, 559.

On peut aussi dissoudre l'aluminium irradié, ajouter du phosphate de soude et précipiter par un sel de zirconium. Le phosphate de zirconium, qui précipité en solution faiblement acide, entraîne l'acidité. Il est donc probable qu'il s'agit bien d'un isotope du phosphore.

Pour le magnésium, nous n'avons pas vérifié la nature chimique des éléments formés qui doivent être, nous l'avons vu, des isotopes du silicium et de l'aluminium.

Nous proposons d'appeler *radioazote*, *radioaluminium*, *radiosilicium*, *radiophosphore* les radioéléments nouveaux, émetteurs de positrons ou de rayons  $\beta$ .

Les expériences ci-dessus donnent la preuve chimique 1° que l'élément formé par transmutation est différent de l'élément initial, 2° que la particule  $\alpha$  a été capturée dans le noyau.

**Conclusions.** — Il est probable qu'un certain nombre de noyaux isotopes d'éléments connus, sont des radioéléments qui n'existent pas dans la nature en raison de leur instabilité, mais que l'on pourra créer par transmutation d'éléments ordinaires au moyen de particules irradiantes diverses : protons, deutons, rayons  $\alpha$ , neutrons et peut être d'autres encore. On peut penser que ces radioéléments ne sont pas tous émetteurs de positrons ou de rayons  $\beta$ , mais que certains d'entre eux émettent des particules plus lourdes. Peut-être existe-t-il aussi des éléments dérivant les uns des autres qui constituent de véritables familles radioactives inconnues.

Un même élément radioactif peut sans doute, être

créé par plusieurs réactions nucléaires différentes.

Cockroft, Gilbert et Walton ayant essayé, à la suite de nos expériences, de créer des radioéléments nouveaux par bombardement au moyen de protons, ont obtenus, en irradiant du carbone, un radioélément émetteur de positrons, de période 10,5 minutes; ces auteurs supposent qu'il s'agit du radio-azote que nous avons créé à partir du bore et ils expliquent la différence de période par un état différent d'excitation. Cette interprétation nous semble improbable et nous pensons qu'il s'agit plutôt d'un autre radioélément.

L'étude de ces phénomènes ne peut manquer d'apporter une contribution importante au problème de la stabilité des noyaux.

De plus, les énergies et les intensités obtenues actuellement dans les tubes producteurs de particules accélérées, permettent de considérer comme proche le moment où l'on pourra créer, au moyen de ces particules, des radioéléments d'intensité de rayonnement supérieure à celle des préparations de radioéléments, naturels, utilisables pour des applications médicales ou pour d'autres usages. Ces radioéléments seront, non seulement émetteurs de positrons, mais aussi du rayonnement  $\gamma$  d'annihilation des positrons, soit 2 quanta de 500 000 eV par positron émis. Il constitueront donc de puissantes sources de rayonnement pénétrant.

Nous remercions M<sup>me</sup> Pierre Curie pour l'intérêt qu'elle a pris à ce travail et M. Preiswerk pour l'aide efficace qu'il nous a apportée.

Manuscrit reçu le 20 mars 1934.