



HAL
open science

Recherche spectroscopique d'un isotope de l'hélium de masse 5 dans les gaz extraits du béryl

Maurice Dodé, Pierre Jacquinet

► **To cite this version:**

Maurice Dodé, Pierre Jacquinet. Recherche spectroscopique d'un isotope de l'hélium de masse 5 dans les gaz extraits du béryl. *Journal de Physique et le Radium*, 1941, 2 (4), pp.133-139. 10.1051/jphys-rad:0194100204013300 . jpa-00233791

HAL Id: jpa-00233791

<https://hal.science/jpa-00233791>

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.

RECHERCHE SPECTROSCOPIQUE D'UN ISOTOPE DE L'HÉLIUM DE MASSE 5 DANS LES GAZ EXTRAITS DU BÉRYL

Par MAURICE DODÉ et PIERRE JACQUINOT.

Sommaire. — Des expériences de M. Joliot ont conduit à penser que l'isotope de masse 5 de l'hélium était stable. Cependant, aucune preuve directe, en particulier spectroscopique, de l'existence de cet isotope n'a été donnée jusqu'à présent; on n'a, d'ailleurs, pas de raison de penser que cet isotope puisse exister en quantité suffisante dans l'hélium atmosphérique pour qu'il soit possible de le mettre en évidence. Par contre, certains minéraux, tel le béryl, contiennent des quantités très notables d'hélium : parmi les hypothèses invoquées pour expliquer la formation de ce gaz dans le béryl, figure celle d'une désintégration du béryllium sous l'action des rayons γ , réaction donnant naissance à une certaine proportion de ${}^5\text{He}$.

Nous avons donc examiné spectroscopiquement de l'hélium extrait du béryl. La position des raies de ${}^5\text{He}$ a été calculée et la recherche de ces raies a été effectuée avec une sensibilité telle qu'une teneur de 10^{-4} en ${}^5\text{He}$ aurait pu être décelée. Étant donné que les raies de ${}^5\text{He}$ sont extrêmement voisines de celles de ${}^4\text{He}$ (0,2 Å pour la raie bleue 4471 Å), une telle sensibilité n'a pu être obtenue que grâce aux qualités particulières du grand spectrographe à prisme liquide de Bellevue, et grâce à l'emploi simultané d'une méthode optique nouvelle pour augmenter la pureté des spectres obtenus et de tubes dans lesquels l'effet d'auto-absorption renforce les raies faibles relativement aux raies fortes.

La présence de ${}^5\text{He}$ n'a pas pu être décelée, ni dans l'hélium atmosphérique, ni dans le gaz extrait du béryl : on peut conclure que la proportion de ${}^5\text{He}$ présente dans ces gaz est certainement inférieure à $3 \cdot 10^{-4}$ et probablement inférieure à $5 \cdot 10^{-5}$.

PREMIÈRE PARTIE.

1. Le problème de l'origine de l'hélium du béryl. — La présence d'hélium dans le béryl paraît avoir été signalée pour la première fois par Lord Rayleigh en 1908 [1] et, en 1933, ce même auteur a montré que cet hélium ne pouvait provenir que de la désintégration radioactive d'un élément de longue période.

En effet, bien que la quantité d'He présente dans des minéraux de même âge puisse varier dans de très larges limites, cette proportion est, en général, beaucoup plus élevée dans les minéraux archéens que dans les minéraux tertiaires, et l'on ne peut guère douter que l'He des béryls s'y soit accumulé au cours des temps géologiques. Voici, en effet, les valeurs moyennes des teneurs en He des béryls examinés par Lord Rayleigh :

Age du minéral.	mm ³ d'He au gramme.
Archéen.....	6,98
Paléolithique.....	1,47
Mésolithique.....	0,157
Tertiaire.....	0,076

Or, les quantités d'He extraites des béryls sont toujours de beaucoup supérieures à celles qui sont susceptibles de provenir de la désintégration des éléments radioactifs connus présents dans le minéral. Pour certains des échantillons examinés par Lord Rayleigh, par exemple, l'He recueilli correspondrait à une durée d'accumulation supérieure à 10^{11} ans, alors que l'âge des terrains les plus anciens ne dépasse pas $2 \cdot 10^9$ années.

2. Hypothèse d'une radioactivité propre au béryllium. — Devant ces faits, l'hypothèse de l'existence d'une radioactivité propre au Be a tout

naturellement été émise, et certains auteurs ont cru la vérifier [2]. Mais les radioactivités mises en évidence dans le Be ou dans ses composés proviennent en réalité d'impuretés radioactives :

1° L'acétate de Be, purifié par cristallisation dans le chloroforme, ne présente aucune activité (E. Friedlander [3]); de même, il n'y a aucune émission spontanée de neutrons (F. Joliot);

2° Paneth [4], qui, on le sait, a mis au point un appareillage permettant de déceler 10^{-10} cm³ d'He, a montré récemment que le Be métal convenablement purifié ne dégage pas d'He (ou tout au moins que sa période est supérieure à 10^{13} ans);

3° Enfin, la masse du ${}^9\text{Be}$, maintenant assez bien connue, $9,0150 \pm 0,0002$, montre que la désintégration serait endoénergétique.

L'hypothèse en question paraît donc définitivement rejetée.

3. Hypothèse de M. Lepape. — Par ailleurs, l'origine de l'He des béryls a été l'objet d'une très intéressante hypothèse de M. Lepape [5], hypothèse qui, malheureusement, n'a pas encore été vérifiée.

Au cours de ses nombreuses analyses de gaz spontanés de sources hydrominérales, M. Lepape a constaté que les sources minéralisées au contact de terrains primaires ou triasiques, sont d'autant plus riches en He que leur teneur en lithium est, elle-même, plus grande; les sources pauvres en Li sont toujours pauvres en He, même si elles contiennent beaucoup de NaCl; de plus, dans les sources exceptionnellement riches en He, Li est toujours accompagné de Rb et de Cs en proportion importante; enfin, il n'existe aucune relation entre la teneur en He et la radioactivité de ces eaux, radioactivité le plus souvent banale d'ailleurs.

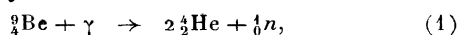
Au contraire, les sources issues de terrains tertiaires sont toujours pauvres en He, même lorsqu'elles sont riches en Li, et il existe alors une relation très nette entre leur radioactivité et leur teneur en He.

Ces faits conduisent M. Lepape à supposer que l'He des dépôts lagunaires où ces sources trouvent leur minéralisation, provient de la désintégration de l'élément 87 et de ses descendants, la période du 87 étant relativement courte et telle que cet élément aurait pratiquement achevé de disparaître au début du tertiaire.

En effet, de par ses analogies chimiques, l'élément 87 a dû suivre Li, Rb et Cs au cours des séparations chimiques naturelles et, en particulier, il a dû se concentrer dans les tissus des plantes houillères et dans les produits de l'évaporation lagunaire des eaux fluviales et marines; cette hypothèse explique donc, en même temps, comment il se fait que certains gisements de gisements houillers d'origine marine, de même que les gaz de pétrole d'origine primaire, sont très riches en He alors que les gaz de pétrole tertiaires en sont toujours dépourvus. De même, si l'on se souvient que les béryls contiennent toujours des métaux alcalins, certains d'entre eux ayant jusqu'à 5 pour 100 de Cs, on voit, comme l'indique M. Lepape, que la variation de la teneur en He des béryls s'explique fort bien par l'hypothèse de l'existence d'un élément 87 de période relativement courte. Bien entendu, la présence d'He dans les gaz des mines de Stassfurt et dans les tourmalines pourrait aussi s'expliquer de la même manière.

Comme on le voit, l'hypothèse de M. Lepape rend compte d'un très grand nombre de faits et mérite de retenir l'attention. Malheureusement, en ce qui concerne les béryls, si l'He que l'on y rencontre provient de la désintégration de l'élément 87, on devrait trouver, dans ces minéraux, les autres descendants stables de cet élément, et rien n'a encore été signalé à ce sujet. Peut-être aucune recherche n'a-t-elle été entreprise; peut-être aussi le problème est-il plus compliqué qu'on ne pourrait le supposer au premier abord : la recherche d'éléments lourds, voisins du 87, serait sans doute assez facilement abordable; par contre, si l'un des descendants du 87 explose spontanément en donnant des éléments beaucoup plus légers, comme le fait parfois l'uranium sous l'action des neutrons, le problème devient extrêmement ardu. Quoi qu'il en soit, la question n'est pas encore résolue.

4. Hypothèse d'une désintégration de Be sous l'influence des rayons γ . — Il existe enfin une troisième manière d'expliquer la présence d'He dans les béryls. On sait, en effet, que les rayons γ des corps radioactifs provoquent la désintégration des noyaux de bérylium suivant la réaction

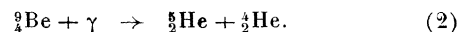


réaction couramment utilisée au laboratoire pour

produire des neutrons de faible énergie. Il est évident qu'une telle réaction peut fort bien avoir lieu dans la nature grâce aux rayonnements γ des corps radioactifs présents dans les roches contiguës aux béryls. Dans ce cas, la formation de l'He ne s'accompagnerait de celle d'aucun autre élément, et il apparaît difficile de pouvoir vérifier cette hypothèse qui, par ailleurs, rendrait compte de l'accumulation de l'He avec le temps, de même que des variations considérables que peut présenter la teneur en He de minerais de même âge (de 0,055 à 77,6 mm³/g pour les béryls archéens).

La mise en évidence de la stabilité d'un isotope de l'He de masse 5, par MM. Joliot et Zlotowsky [6] apporte, à ce problème, une donnée nouvelle (*).

En admettant pour la masse de ce ${}^5_2\text{He}$ la valeur $5,0106 \pm 0,0005$ ($5,011$ assure la stabilité de ${}^9_4\text{Be}$), on trouve, en effet, que l'action sur le Be de rayons γ d'énergie de quelques dizaines de milliers d'électron-volts pourrait donner lieu à la formation de ${}^5_2\text{He}$:



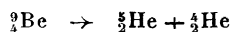
En conséquence, si l'He des béryls provient de la désintégration des noyaux de bérylium par les rayons γ de faible énergie, on peut s'attendre à ce que cet He soit constitué par un mélange des isotopes ${}^4_2\text{He}$ et ${}^5_2\text{He}$.

Si la réaction (2) avait, seule, lieu, l'He du béryl contiendrait 50 pour 100 de ${}^5_2\text{He}$; mais c'est là un maximum qui ne saurait être atteint et, comme l'on ignore comment varie la section efficace du Be avec l'énergie des rayons γ de très faible énergie, et qu'en particulier on ne connaît même pas l'ordre de grandeur de cette section efficace pour les γ de faible énergie [réaction (2)], il n'est pas possible d'avoir, à priori, la moindre idée sur la teneur en ${}^5_2\text{He}$ de l'hélium extrait des béryls. En outre, les phénomènes de diffusion viennent encore compliquer la question; en effet, c'est l'He voisin de la surface extérieure des cristaux qui s'échappe le plus facilement, et c'est précisément celui qui doit être le plus riche en ${}^5_2\text{He}$. Quoi qu'il en soit, on pouvait avoir un certain espoir d'éclaircir cette question de l'origine de l'He du béryl en recherchant, dans cet He, la présence éventuelle d'un isotope de masse 5.

5. Vérifications antérieures. — Cette hypothèse de l'existence possible d' ${}^5_2\text{He}$ du béryl avait déjà été émise par Langle et Raitt en 1933 [2], mais elle reposait alors sur des données inexactes. On se souvient, en effet, que ces auteurs avaient cru mettre en évidence une radioactivité α propre

(*) M. Joliot nous a signalé un travail récent effectué par P. Jensen au Laboratoire du professeur Bothe, et dont les résultats semblent en désaccord avec ceux obtenus par Zlotowsky et lui-même. De nouvelles expériences doivent être entreprises dans des conditions différentes pour élucider cette question.

au Be et ils avaient envisagé la possibilité de la réaction spontanée



qui, en réalité, est endoénergétique.

Bien que ce mémoire de Langle et Raitt ait conduit Tate et Smith [7] à examiner au spectrographe de masse de l'He extrait d'un béryl précambrien et que ces auteurs aient conclu à l'absence de ${}^5\text{He}$ (moins de $1/40.000$), cette question de l'existence possible de ${}^5\text{He}$ dans He du béryl ne pouvait cependant pas être considérée comme définitivement résolue. En effet, les expériences de Langle et Raitt ayant été reconnues inexactes, le travail de Tate et Smith n'a jamais été repris; en outre, on a tout lieu de supposer que ces auteurs s'attendaient à trouver, dans l'He du béryl, une forte proportion de l'isotope de masse 5, et que, vu leurs premiers résultats, ils n'aient pas cherché à approfondir la question. On sait, en effet, que l'emploi du spectrographe de masse pour la recherche d'un isotope n'existant qu'en petite proportion est une opération très délicate, du fait qu'il faut toujours distinguer entre l'isotope vrai et les autres ions gazeux de même $\frac{e}{m}$.

Aussi, M. Joliot nous a-t-il demandé de reprendre cette étude en nous adressant, pour la mise en évidence de ${}^3\text{He}$, aux effets isotopiques dans son spectre optique d'émission.

6. Extraction de l'He du béryl. — Pour nous procurer l'He nécessaire à cette recherche, nous sommes partis d'un béryl de Madagascar gracieusement mis à notre disposition par la Compagnie Alais, Froge et Camargue; le minéral avait été broyé par les soins de cette compagnie, qui avait pris les précautions nécessaires pour qu'aucune partie n'en soit rejetée, et il passait entièrement au tamis 200. Nous prions la Compagnie Alais, Froge et Camargue, ainsi que son agent de Saint-Jean-de-Maurienne, M. Gadeau, de trouver ici l'expression de nos sincères remerciements.

Le minéral en question contenait, comme la plupart des béryls, une forte proportion d'hydrogène (12 à 13 cm³/g), et il était d'une teneur moyenne en He (0,55 mm³/g); il nous a, par suite, fallu en traiter 20 kg pour obtenir l'He nécessaire à nos essais. L'extraction des gaz a été effectuée suivant une méthode calquée sur celle de Lord Rayleigh.

Le minéral pulvérisé est attaqué dans une cornue de pyrex par cinq fois son poids de potasse en pastilles; on introduit le béryl et la potasse par couches successives, puis on soude la cornue à un condenseur destiné à retenir la majorité de l'eau qui distille lors de la fusion et aussi à recueillir éventuellement la mousse extrêmement abondante qui prend toujours naissance lors du départ des gaz. L'appareil est réuni à une rampe de trompes à mercure à gros débit, ce qui permet d'extraire les

gaz de la cornue au fur et à mesure de leur formation et de les réunir dans un récipient unique d'où on les envoie immédiatement sur de l'oxyde de cuivre chauffé vers 250°, où ils se débarrassent de la majeure partie de l'hydrogène qu'ils contiennent. Un robinet, placé entre la cornue et les trompes, permet d'arrêter l'extraction des gaz à volonté et, facilite beaucoup la conduite de l'opération: lorsque le contenu du ballon tend à déborder, la fermeture de ce robinet provoque une augmentation rapide de la pression dans la cornue, et la mousse retombe aussitôt. Enfin, une autre trompe à mercure, branchée sur le tube à oxyde de cuivre, permet d'extraire finalement de l'appareil un mélange d'azote et de gaz rares ne contenant plus qu'une petite proportion d'hydrogène.

Chaque opération est effectuée dans une cornue de 2500 à 3000 cm³; celle-ci une fois soudée à l'appareil, on fait le vide à l'aide d'une pompe, de façon à abaisser la pression jusqu'à 1 mm de Hg; il est nécessaire d'effectuer cette opération rapidement, afin d'éviter le départ de gaz du minéral. Le ballon est alors chauffé progressivement sur un fourneau à gaz, le ballon reposant simplement sur une toile métallique; c'est là la façon la plus commode d'opérer: on peut ainsi arrêter brusquement le chauffage lorsque la mousse devient trop abondante.

Bien que l'emploi d'une cornue de 3000 cm³ ne permette pas d'attaquer plus de 250 à 300 g de béryl à la fois, ce qui oblige à effectuer de nombreuses extractions, il est préférable de ne pas opérer sur de plus gros volumes: la fusion totale de la masse serait difficile à obtenir, et la paroi de la cornue risquerait de ne pas résister suffisamment longtemps à l'attaque par la potasse. Insistons, en passant, sur la nécessité de prendre une nouvelle cornue à chaque opération, faute de quoi l'on risque de voir le fond de la cornue céder brusquement sous la pression extérieure; il se produit alors un tel soubresaut que des quantités importantes de potasse fondue sont projetées à plusieurs mètres de distance.

Finalement, on réunit ensemble les mélanges d'azote et de gaz rares recueillis au cours de différentes opérations; lorsque le volume obtenu est de 1 à 2 l, on fait passer les gaz sur du calcium chauffé vers 400°, puis sur de l'oxyde de cuivre, de façon à éliminer l'azote et le reste de l'hydrogène. Les différents mélanges gazeux ainsi obtenus sont enfin réunis à leur tour et traités d'un bloc pour l'extraction de l'hélium.

Cette purification finale est effectuée dans un appareil à circulation comportant différents circuits, de façon à pouvoir faire passer les gaz soit sur de l'oxyde de cuivre, soit sur du calcium, soit sur du charbon refroidi. On arrive ainsi fort bien à se débarrasser de la totalité de l'azote et de l'argon. Les dernières traces d'hydrogène sont enfin éliminées en introduisant une petite proportion d'oxygène pur et en faisant circuler les gaz sur de la toile de

platine chauffée; on condense enfin l'oxygène sur le charbon, dans l'air liquide. L'hélium que nous avons ainsi obtenu n'était souillé que par des traces de néon; en raison des pertes importantes en hélium que cela eût provoqué, nous n'avons pas jugé nécessaire de l'en débarrasser.

DEUXIÈME PARTIE.

1. Calcul de l'effet isotopique. Choix des raies. — On peut s'adresser, pour la mise en évidence d'un isotope, soit au spectre atomique, soit au spectre moléculaire. Bien que, dans le cas de l'hélium, les déplacements isotopiques soient beaucoup plus petits sur les raies atomiques que sur les bandes, nous avons choisi le spectre atomique. Le spectre de bandes de l'hélium est, en effet, très difficile à obtenir avec assez d'intensité : il faut des tubes très larges et des pressions élevées, donc d'assez grandes quantités de gaz, et malgré cela l'intensité ne serait pas suffisante pour obtenir des clichés 10 000 fois surexposés avec une dispersion suffisante, même avec un spectrographe très lumineux.

Les raies atomiques, au contraire, peuvent être obtenues avec une très grande intensité; mais les déplacements isotopiques sont très faibles et il est nécessaire d'employer un spectrographe de très grand pouvoir séparateur. Si l'on veut pouvoir déceler une proportion en isotope de l'ordre de 10^{-4} , il est nécessaire que le spectrographe soit également très lumineux et surtout qu'il ne donne aucune raie ni fond continu parasite. Seul l'appareil à prisme liquide de Bellevue pouvait remplir ces conditions. C'est grâce à ce remarquable instrument, dont la construction est due à M. A. Couder [8], que nous avons pu faire la recherche de l'isotope dans le spectre atomique.

Les déplacements isotopiques des raies atomiques qui sont facilement calculables pour l'hydrogène, peuvent encore être calculés pour les atomes à deux

et à trois électrons [9]. Comme dans le cas de l'hydrogène, tous les niveaux d'un atome de masse nucléaire M se trouvent déplacés d'une quantité $\Delta\nu_1 = \frac{m\nu}{M}$ à partir de la position qu'ils occuperaient si la masse du noyau était infiniment grande. En outre, et pour les niveaux P seulement, à ce déplacement vient s'en ajouter un autre :

$$\Delta\nu_2 = \pm \frac{128}{3} \frac{m}{M} R Z_1^2 Z_2^2 n^3 (n^2 - 1) \frac{(Z_1 n - Z_2)^{2n-4}}{(Z_1 n + Z_2)^{2n-4}};$$

dans le cas de deux électrons, le signe — doit être choisi pour les niveaux de triplets et le signe + pour les niveaux de singulets. Dans cette formule, les notations ont leurs significations habituelles; Z_1 et Z_2 sont les charges effectives pour les orbites considérées. Cette expression s'est trouvée en accord avec les mesures dans les deux cas où elle a été appliquée, celui des raies 5845 Å de Li II [10] et celui de quelques raies de Li I [11]. Nous avons appliqué cette formule aux niveaux $2s2p^3P$ et $2s3p^1P$ de l'hélium. Les charges effectives pour les orbites $2s$ et $2p$ ont été calculées par Eckart [4] et sont respectivement

$$Z_1 = 2,003, \quad Z_2 = 0,963 \quad \text{pour } 2^1P,$$

et

$$Z_1 = 1,99, \quad Z_2 = 1,09 \quad \text{pour } 2^3P;$$

pour le niveau 3^1P nous avons admis $Z_1 = 2$ et $Z_2 = 1$.

Nous avons ainsi calculé les déplacements isotopiques pour les raies les plus intenses de l'hélium. Ces déplacements sont donnés en Å dans la troisième ligne du tableau suivant; dans la quatrième ligne, les déplacements Δx sont exprimés en unités de pouvoir de résolution théorique du spectrographe, en tenant compte de la loi de dispersion de l'appareil. (On a pris quatre traversées du prisme pour toutes les raies, sauf pour la raie 4026 pour laquelle seulement deux traversées sont possibles à cause de l'absorption du liquide dans cette région.)

Raies	6678.	5875.	5015.	4921.	4713.	4471.	4026.
Type	2^1P-3^1D	2^3P-3^3D	2^1S-3^1P	2^1P-4^1D	2^3P-4^3S	2^3P-4^3D	2^3P-5^3D
$\Delta\lambda$ (Å)	-0,080	-0,275	+0,224	-0,080	-0,207	-0,190	-0,164
Δx	1	7,1	11,5	4,7	17,2	20	17

On voit, d'après ce tableau, que c'est pour la raie 4471 que les déplacements mesurés doivent être les plus grands. La raie 4471 est, en réalité, un doublet composé des deux raies 4471,69 ($2^3P_0-4^3D$) et 4471,48 ($2^3P_{1,2}-4^3D$) d'intensités respectives 1/8 et 1 : à chacune de ces deux raies doit correspondre une raie de ^3He déplacée de 0,19 Å vers les faibles longueurs d'onde. Seule, une de ces deux raies — la

plus intense heureusement — pourra être vue, l'autre coïncidant exactement avec la raie 4471,48.

2. Conditions expérimentales. — *a. Dispositif optique.* — Il est facile de s'apercevoir, dès les premiers essais, que s'il y a des raies isotopiques, elles ont une intensité relative extrêmement faible et qu'il sera impossible de les déceler au moyen des

méthodes habituelles. Il y a donc à résoudre un problème particulier qui est de mettre en évidence une raie très voisine d'une autre, et dont l'intensité relative puisse être aussi faible que possible. Ce problème présente de très nombreuses difficultés, et, pour cette raison, a été très rarement abordé jusqu'à présent. Une des principales difficultés est le manque de pureté des spectres donnés par les appareils à grand pouvoir de résolution. Si, avec un grand réseau de Rowland par exemple, on surexpose 1000 fois une raie parfaitement isolée dans le spectre, on trouve, autour de l'image obtenue, toute une série de raies (en plus des ghosts de Rowland, et beaucoup moins intenses que ces derniers), et un fond continu dégradé occupant un domaine d'une dizaine d'angströms (pour un pouvoir séparateur correspondant à 0,02 Å) autour de la raie : dans tout ce domaine il est impossible de déceler des raies normalement exposées. Avec les appareils interférentiels également, les différents ordres d'interférence sont réunis entre eux par un fond continu pour des surexpositions de cet ordre. Avec le prisme de Bellevue, au contraire, et avec un égal pouvoir séparateur, on peut surexposer 1000 fois une telle raie sans voir apparaître d'autre lumière que celle qui est due à la diffraction. Cette lumière, due à la diffraction, occupe d'ailleurs autour de la raie un domaine assez étendu de longueur d'ondes pouvant aller jusqu'à 20 unités de pouvoir séparateur. Là encore, on se trouve limité par cette lumière. Mais on peut gagner considérablement en utilisant une fente de hauteur très courte (point) et en disposant sur l'objectif un diaphragme carré ayant une diagonale parallèle à l'arête du prisme : la plus grande partie de la lumière due à la diffraction se trouve alors rejetée en dehors de la ligne où viennent se former les raies (qui sont alors des points). Le gain de pureté obtenu par ce procédé est considérable [12].

Il y a lieu de noter que c'est précisément en vue de la recherche de l'isotope de masse 5 de l'hélium qu'a été abordé ce problème de la recherche des raies très faibles au voisinage des raies intenses, et que cette solution a été donnée. C'est également au cours d'une étude préalable du spectre de l'hélium, faite avec ce procédé, qu'ont été découvertes un certain nombre de raies nouvelles d'intensités relatives extrêmement faibles formant tout un spectre d'intercombinaison inconnu jusqu'alors et réputé comme rigoureusement interdit dans le cas de l'hélium [13].

b. Mesure des intensités relatives. — Dans le but de faire une estimation des intensités relatives, le dispositif précédemment décrit est complété par une étroite bande opaque placée diagonalement sur le diaphragme, parallèlement à la direction de la dispersion. Dans ces conditions, chaque raie surexposée se trouve représentée par une figure de

diffraction en croix à laquelle viennent s'ajouter des franges disposées sur un axe perpendiculaire à l'axe de dispersion. Les positions et les intensités de ces franges sont facilement calculables : le calcul complet montre que tout se passe à peu près comme si, à la figure de diffraction donnée par le diaphragme carré venaient s'ajouter indépendamment les franges données par une ouverture ayant précisément la forme de la bande opaque ajoutée sur le diaphragme. L'intensité relative d'une frange de numéro n (rapport de son intensité à l'intensité au centre de la figure de diffraction) est donnée par $I = p \frac{4}{(2n+1)^2 \pi^2}$, p étant le rapport de la surface de la bande opaque à la surface totale du diaphragme. Les valeurs d'intensités ainsi obtenues se sont montrées en bon accord avec les valeurs mesurées avec un coin photométrique. Dès lors, pour apprécier l'intensité relative d'une raie normalement posée, rapportée à une raie surexposée, il suffit de chercher quelle est celle des franges accompagnant la raie surexposée qui a la même densité que la raie en question. (Cette comparaison se fait visuellement, la microphotométrie étant sans aucune précision sur des images d'étendue aussi petite que les points qui représentent les raies.)

c. Rôle de l'effet d'autoabsorption des raies. — Cette estimation ne fournit évidemment que les intensités relatives des différentes radiations, telles qu'elles sont à la sortie de la source lumineuse.

Ces intensités relatives peuvent être tout à fait différentes des proportions des différents atomes dans le gaz qui émet la lumière. Dans le cas d'isotopes d'un même élément, les fonctions d'excitations sont les mêmes et le rapport des intensités des raies des isotopes données par une source lumineuse diffère du rapport d'abondance des isotopes uniquement à cause du phénomène d'autoabsorption des raies spectrales, les raies les plus intenses étant les plus fortement absorbées par le gaz excité. L'importance de ce phénomène augmente avec l'excitation du gaz et l'épaisseur observée de la couche de gaz lumineux, et dépend également de la nature des raies, étant notable seulement pour les premières raies des séries. La question a été étudiée en détail par l'un de nous [14] depuis que ce travail a été effectué. Il est, en général, impossible de calculer les intensités relatives vraies (celles que l'on observerait en l'absence d'autoabsorption) à partir des intensités relatives apparentes.

Cependant, il n'y a pas intérêt à se placer, pour obtenir directement les intensités relatives vraies, dans des conditions telles que l'autoabsorption soit négligeable, car alors on perdrait le bénéfice du renforcement relatif apparent de raies faibles dû à l'autoabsorption. On verra, par la suite, que, dans le cas présent, le renforcement relatif est égal à 2 avec la source employée et pour la raie étudiée, c'est-à-dire que, s'il y avait un isotope présent dans

la proportion de 10^{-4} , ses raies auraient une intensité non pas 10^4 , mais seulement $5 \cdot 10^3$ fois plus faible que celles de ^4He . Le gain de sensibilité de 2, obtenu dans la recherche de l'isotope, est assez appréciable.

D'autre part, les conditions dans lesquelles se manifeste l'effet d'autoabsorption sont précisément celles où il faut se placer pour obtenir des sources très lumineuses : tubes assez longs vus en bout et assez fortement excités. Il est évident que, dans une recherche telle que celle d'un élément très rare, l'emploi d'une source très lumineuse est nécessaire.

Il faut donc, effectivement, se placer dans des conditions où l'effet d'autoabsorption existe mais il faut posséder un moyen de convertir les intensités relatives apparentes en intensités relatives vraies. Heureusement, dans le cas qui nous intéresse, la raie choisie $4471,48$ ($2^3P_{1,2} - 4^1D$) possède un satellite $4471,08$ ($2^3P_{1,2} - 4^1D$) qui est l'une des raies nouvellement découvertes dont il a été question plus haut. Ce satellite se trouve suffisamment éloigné de la raie $4471,48$ pour pouvoir être photographié dans des conditions où l'effet d'autoabsorption est négligeable (tube vu *en travers* : une pose très longue — 40 h — est nécessaire, même en n'employant que deux traversées du prisme, donnant ainsi moins de dispersion, mais beaucoup plus de luminosité). On peut ainsi mesurer l'intensité relative vraie (rapportée à la raie $4471,48$) de ce satellite; on trouve 10^{-4} . Si l'on mesure ensuite l'intensité relative du satellite sur les clichés mêmes qui servent à la recherche de l'isotope, on trouve $2 \cdot 10^{-4}$: le renforcement apparent est donc égal à 2. Pour ce satellite et pour les raies d'intensité comparable ou plus faible, l'effet d'autoabsorption est tout à fait négligeable, et le renforcement apparent est dû uniquement à l'affaiblissement de la raie intense, ici $4471,48$, par rapport à laquelle est mesurée l'intensité relative. Le renforcement des intensités relatives rapportées à cette raie est donc le même pour toutes les raies aussi faibles ou plus faibles que le satellite qui a servi à la mesure : la raie de l'isotope cherchée étant plus faible que le satellite, elle doit donc subir un renforcement apparent égal à 2.

Les expériences relatives à la recherche de ^5He ont été faites de janvier à août 1939. Le rôle de l'effet d'autoabsorption et le gain de sensibilité qu'on pouvait en attendre n'a été précisé que beaucoup plus tard, en 1941, et c'est alors qu'a été faite la mesure du renforcement apparent obtenu. Il est alors apparu que des renforcements beaucoup plus grands et, par suite, une bien plus grande sensibilité, auraient pu être obtenus par l'utilisation de conditions expérimentales appropriées [14]. Malheureusement, au cours des événements qui se déroulèrent entre ces deux dates, le gaz extrait du béryl s'est trouvé perdu et les expériences n'ont pu être recommencées.

d. Source lumineuse. — La source lumineuse est un tube de silice de 2 mm de diamètre intérieur et de 10 cm de long, excité en haute fréquence avec électrodes extérieures. La pression, maintenue aussi basse que le permet le fonctionnement stable du tube, est de 0,35 mm. Cette précaution est indispensable; en effet, pour des pressions plus élevées les raies sont entourées de « pieds », dont l'intensité augmente avec la pression et par lesquels les raies cherchées seraient masquées. Le spectrographe utilisé est le grand spectrographe à prisme liquide de Bellevue; le prisme est traversé quatre fois par la lumière et la dispersion ainsi obtenue est de 0,5 Å par millimètre pour la raie 4471 . Bien que la luminosité soit fortement diminuée par ces quatre traversées, grâce à la brillance de la source employée, la raie 4471 est encore normalement posée en une seconde. La photographie reproduite ici a été posée 4 h, donnant ainsi une surexposition de 14000 en temps, ce qui, avec le γ de la plaque utilisée ici, égal à 0,90, correspond à une surexposition en intensité de 6000.

3. Résultats. — Plusieurs clichés ont été faits sur la raie 4471 avec l'hélium atmosphérique et avec l'hélium extrait du béryl. Il n'a pas été possible de

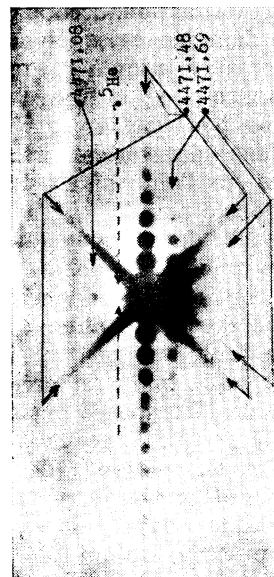


Fig. 1.

trouver une différence entre les clichés obtenus avec les deux sortes de gaz. Un des clichés est reproduit ici (agrandi 7 fois). Les deux grosses croix noires inclinées sont les figures de diffraction dues respectivement aux deux raies $4471,69$ et $4471,48$, fortement surexposées. On voit également les systèmes de franges (chapelets de points noirs) produits par le diaphragme additionnel et dus à ces mêmes raies : ce sont ces franges qui servent à la mesure des

intensités relatives. On voit aussi sur la gauche un point noir qui est la raie « interdite » 4471,08 nouvellement trouvée, et qui est normalement exposée. C'est cette raie qui a servi à mesurer le renforcement apparent. L'emplacement où devrait se trouver la raie due à ^5He est indiqué par deux flèches verticales en pointillé. Il se trouve précisément que l'on y voit un petit renflement à la figure centrale à peu près à l'endroit indiqué par les flèches. (On voit cependant que la place calculée pour la raie de ^5He est légèrement plus à gauche que ce renflement.) Mais ce « renflement » se trouve trop à la limite de résolution pour que l'on puisse affirmer que c'est bien là une véritable raie. Si l'on examine des clichés moins posés que celui qui est reproduit ici, on ne peut voir nettement sur aucun ce renflement se détacher de la tache centrale : à mesure que l'on diminue le temps de pose, le renflement disparaît mais ne se détache pas. Il se pourrait donc que ce soit un résidu de pieds de la raie la plus intense, et non une raie distincte : s'il en est ainsi ce pied doit disparaître par abaissement de la pression dans le tube : malheureusement, il n'est pas possible de baisser la pression davantage sans que le fonctionnement du tube cesse d'être stable.

Étant donné que le renflement n'est pas exactement à la place calculée pour la raie de ^5He , on peut, ou bien écarter l'hypothèse qu'il représente la raie attendue, non résolue et déplacée par rapport à la position calculée, ce qui permettra de fixer une limite supérieure probable à la proportion d'isotope dans le gaz, ou bien accorder à ce renflement le bénéfice du doute, ce qui fixera une limite supérieure certaine à la proportion d'isotope.

Dans les deux cas nous avons à évaluer des intensités relatives. Dans le premier cas, on peut dire qu'il n'y a aucune raie résolue d'intensité supérieure à la moitié de celle de la raie interdite 4471,08. L'intensité relative apparente de cette raie, mesurée par la méthode des franges, est $2 \cdot 10^{-4}$; son intensité relative apparente est donc deux fois plus faible, soit 10^{-4} . La limite supérieure probable de la teneur en isotope est donc $5 \cdot 10^{-5}$. Dans le deuxième cas, il faut évaluer l'intensité relative du renflement : on trouve, par la même méthode, $5 \cdot 10^{-4}$ pour l'intensité relative apparente, donc $2,5 \cdot 10^{-4}$ pour l'intensité relative vraie. La limite supérieure certaine pour la teneur en isotope, est donc $3 \cdot 10^{-4}$.

Il ne faut cependant pas oublier que la position de la raie cherchée a été calculée entièrement a priori et que le calcul repose sur le travail théorique de Hughes et Eckart [9] dont des vérifications ont été données dans d'autres cas, mais évidemment pas dans le cas présent. Il faut donc aussi, en toute rigueur, envisager le cas, fort peu probable, où la raie attendue ne serait pas du tout à l'endroit calculé. Dans ce cas, elle serait, ou bien plus éloignée de la raie de ^4He et les estimations faites restent entièrement valables, ou bien moins éloignée donc non résoluble, et il n'est plus possible de rien conclure. Bien que cela soit fort improbable, il est indispensable d'indiquer que les conclusions que nous tirons ne sont données que sous cette réserve.

Conclusions. — La quantité d' ^3He présente dans l'He extrait du béryl étant certainement inférieure à $3 \cdot 10^{-4}$ et vraisemblablement même à $5 \cdot 10^{-5}$ on peut conclure que si la réaction (2)



a lieu dans la nature, son importance relative est tout à fait négligeable. Tenant compte de l'identité de l'He atmosphérique et du l'He de béryl, on pourrait même admettre qu'elle n'a pas lieu du tout.

Il faut toutefois se garder d'en déduire que l'He extrait des béryls ne saurait provenir de la désintégration des noyaux de Be sous l'action des rayons γ énergiques. Il ne faut pas oublier en effet que si la réaction (2) n'a jamais été observée au laboratoire, la réaction (1)



est, au contraire, une réaction courante. Tant que l'on ne connaîtra pas la valeur de la section efficace du Be pour les rayons γ de faible énergie, il sera très difficile de tirer une conclusion de cette absence de ^5He dans les béryls. En particulier, on ignore toujours si ^4He provient de la désintégration, soit d'un élément pratiquement disparu, soit d'un élément de période très longue, ou, au contraire, d'une réaction nucléaire provoquée par le rayonnement d'un corps radioactif présent dans le minéral lui-même, ou dans les couches géologiques voisines.

Manuscrit reçu en octobre 1941.

BIBLIOGRAPHIE.

- [1] Lord RAYLEIGH, *Proc. Roy. Soc.*, 1908, **80**, p. 587, et 1910, **84**, p. 195.
- [2] Par exemple LANGER et RAITT, *Phys. Rev.*, 1933, **43**, p. 585.
- [3] FRIEDLANDER, *C. R. Acad. Sc.*, 1935, **201**, p. 337.
- [4] PANETH et PETERS, *Z. Phys. Chem.*, 1928, **134**, p. 353.
- [5] LEPAPE, *C. R. Acad. Sc.*, 1935, **200**, p. 336.
- [6] JOLIOU et ZLOTOWSKY, *J. Phys.*, 1938, **9**, p. 403.
- [7] TATE et SMITH, *Phys. Rev.*, 1933, **43**, p. 672.
- [8] COUDER, *J. Phys.*, 1937, **8**, p. 995 S.
- [9] HUGHES et ECKART, *Phys. Rev.*, 1930, **36**, p. 264.
- [10] HUGHES, *Phys. Rev.*, 1931, **38**, p. 857.
- [11] ECKART, *Phys. Rev.*, 1930, **36**, p. 878.
- [12] COUDER et JACQUINOT, *C. R. Acad. Sc.*, 1939, **208**, p. 1639.
- [13] JACQUINOT, *C. R. Acad. Sc.*, 1939, **208**, p. 1896.
- [14] JACQUINOT, *C. R. Acad. Sc.*, 1941, **212**, p. 537.