



HAL
open science

Sur la mesure de la constante de J'émanation du radium

Pierre Curie

► **To cite this version:**

Pierre Curie. Sur la mesure de la constante de J'émanation du radium. Radium (Paris), 1910, 7 (2), pp.33-38. 10.1051/radium:019100070203300 . jpa-00242390

HAL Id: jpa-00242390

<https://hal.science/jpa-00242390>

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.

MÉMOIRES ORIGINAUX

Sur la mesure de la constante de l'émanation du radium

Par M^{me} P. CURIE

[Faculté des Sciences de Paris].

La vitesse de destruction de l'émanation du radium a déjà été l'objet de plusieurs déterminations. Voici les valeurs qui ont été indiquées pour la période T de diminution de moitié¹.

P. Curie	T = 5.99 jours.
Rutherford et Soddy.	» 5.71 »
Bumstead et Wheeler.	» 5.88 »
Sackur.	» 5.86 »
Rümelin	» 5.75 »

P. Curie mesurait à des intervalles de temps convenables l'ionisation produite dans un appareil de mesures par une certaine quantité d'émanation contenue en vase clos, et agissant, soit par son rayonnement total, soit par le rayonnement pénétrant. MM. Rutherford et Soddy conservaient l'émanation dans une éprouvette graduée et en prenaient de temps en temps un volume déterminé qu'ils introduisaient dans l'appareil de mesure; cette même méthode a été utilisée par M. Sackur. M. Rümelin partageait une certaine quantité d'émanation en deux portions dans un rapport connu, et mesurait, après des intervalles de temps différents, l'activité de chaque portion; l'émanation était transportée dans l'appareil de mesures par un courant de vapeur d'eau qui l'entraînait dans un gazomètre à eau, d'où elle était aspirée dans la chambre d'ionisation. Les nombres obtenus pour la période T par les différents expérimentateurs laissent subsister une incertitude de quelques pour 100 sur la valeur de cette période, et il paraissait désirable de connaître plus exactement une constante aussi importante. J'ai entrepris dans ce but plusieurs séries de mesures, dont les résultats sont indiqués dans ce mémoire.

La méthode utilisée était celle de P. Curie qui consiste à observer l'activité de l'émanation enfermée dans un récipient absolument étanche. Cette méthode offre plus de sécurité que les méthodes qui nécessitent un transport de l'émanation d'un vase dans un autre;

les causes d'erreur qui résultent du transport sont augmentées avec le dispositif de M. Rümelin par l'usage du gazomètre à eau; l'émanation ayant une solubilité appréciable (coefficient de solubilité environ 0,5 à la température ordinaire), il doit se produire une perte d'émanation qui n'est pas négligeable pour des expériences précises.

Le rayonnement mesuré était, soit le rayonnement pénétrant, soit le rayonnement total. L'appareil utilisé pour la mesure du rayonnement pénétrant est représenté dans la figure 1; il est très analogue à

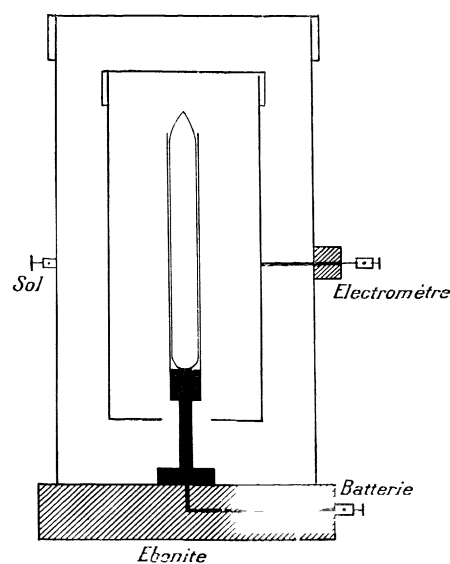


Fig. 1.

l'appareil primitif de P. Curie. L'émanation est contenue dans un tube de verre scellé, placé à l'intérieur d'un tube d'aluminium mince; ce dernier forme l'électrode centrale d'un condensateur et se trouve relié à une batterie de petits accumulateurs; l'armature extérieure du condensateur est reliée à l'électromètre. On mesure le courant de saturation obtenu dans la chambre d'ionisation extérieure du tube à émanation; la méthode est dite *method of external electrodes*.

¹ P. Curie, *Comptes Rendus*, 1905, t. 141, p. 116 et Soddy, *Proc. Roy. Soc. Lond.*, 1905; Bumstead et Wheeler, *Ann. of Sci.*, 1905; Sackur, *Ber. d. d. Chem. G.*, 1905, t. 38, p. 1118; Phil. Mag., 1907.

Dans d'autres expériences, on mesurait l'ionisation produite à l'intérieur d'un récipient par l'émanation qui y était contenue. Cette méthode est celle des *électrodes intérieures*. L'appareil utilisé est un condensateur à gaz de modèle courant (fig. 2). La boîte de

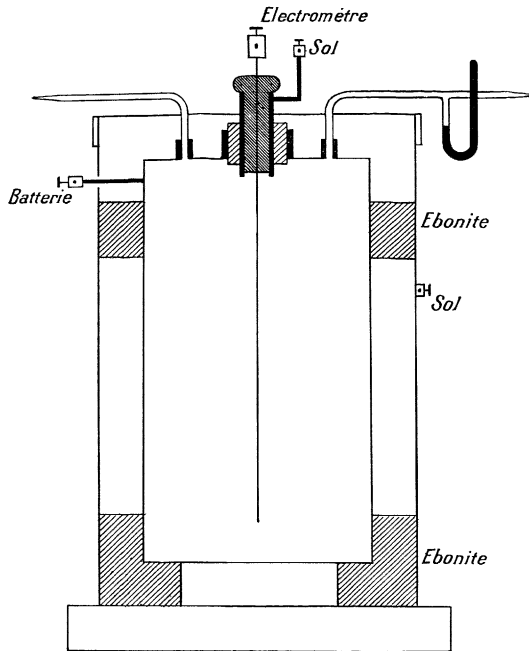


Fig. 2.

ce condensateur est munie de deux tubes de dégagement étroits, dont l'un se termine par un manomètre tronqué de très petit volume, tandis que l'autre sert de tube de communication. L'opération préliminaire consiste à faire le vide dans le condensateur et à fermer le tube de communication à la lampe. On laisse ensuite l'appareil en observation pendant quelques jours pour vérifier qu'il est étanche. On aspire alors dans le condensateur une quantité convenable d'émanation contenue dans de l'air sec, on finit de remplir avec de l'air sec jusqu'à ce que la pression devienne sensiblement égale à la pression atmosphérique et l'on ferme à la lampe le tube qui a servi pour l'aspiration. L'appareil est alors prêt pour une série de mesures.

Les mesures étaient effectuées au moyen d'un quartz piézo-électrique. Ce dispositif permet d'effectuer des expériences de longue durée sur un rayonnement d'intensité décroissante, toutes les mesures étant absolument comparables entre elles sans que l'on ait à s'inquiéter de la sensibilité de l'électromètre et de la capacité électrique de l'appareil de mesures.

Ces mesures par la méthode des électrodes extérieures ou intérieures se prolongeait de 20 à 50 jours, les mesures étant faites généralement une ou deux fois par jour. Le maximum de l'intensité

du courant est atteint 5 heures après le moment où l'émanation a été aspirée dans le condensateur; toutefois la loi exponentielle pour la diminution de l'intensité ne semble parfaitement établie que 24 heures après l'aspiration. J'ai cru constater en particulier que dans mes expériences à électrodes intérieures, le courant, après avoir atteint le maximum, décroît de plus en plus vite entre $t=5$ heures et $t=20$ heures, le temps étant compté depuis l'instant où l'émanation a été introduite dans l'appareil; mais à partir de $t=20$ heures, la vitesse de baisse devient un peu moins grande, et prend un régime constant qui se maintient ensuite pendant plus de 20 jours. Si donc on construit la courbe qui représente le logarithme de l'intensité en fonction du temps, cette courbe présente un point d'inflexion entre $t=4$ heures et $t=20$ heures. Ce point d'inflexion, dont l'existence n'est pas prévue par la théorie, est peu marqué, et il est difficile d'être tout à fait affirmatif à son sujet, cependant je l'ai observé plusieurs fois; la pente moyenne de la courbe entre 4 heures et 20 heures correspondait à une diminution du logarithme décimal par heure $a=0.00345$, tandis que la pente régulière qui représente la décroissance de l'émanation entre 1 jour et 50 jours correspond à la valeur $a=0.00326$. La netteté du point d'inflexion pourrait dépendre des dimensions de la chambre d'ionisation. Ces dimensions étaient les suivantes :

Diamètre intérieur du cylindre : 6,7 cm.

Hauteur intérieure du cylindre ; 12,5 cm.

Volume du condensateur : 440 cm³ environ.

L'électrode intérieure de 5 mm de diamètre a une longueur de 11,5 cm.

Dans toutes les expériences le courant de saturation était toujours atteint; la différence de potentiel établie entre les deux armatures du condensateur de mesures était de 800 volts.

Dans les expériences faites par la méthode des électrodes intérieures, la masse de gaz soumise à l'effet ionisant restait constante; aucune correction n'était donc nécessaire pour tenir compte de la variation de la pression et de la température de l'air ambiant. Mais dans les expériences faites avec l'appareil à électrodes extérieures, la chambre d'ionisation n'était pas close de manière à être étanche. L'ionisation produite dans l'air contenu dans cette chambre par les rayons pénétrants qui sortent du tube à émanation croît avec la densité de l'air soumis à l'action des rayons; elle pourrait être considérée comme proportionnelle à cette densité, s'il était certain que le pouvoir pénétrant de tous les rayons utilisés est suffisamment grand. On aurait en ce cas :

$$\frac{i_0}{i} = \frac{d_0}{d} = \frac{p_0}{p} \frac{1 + \alpha t}{1 + \alpha' t},$$

en désignant par i le courant mesuré à la pression p

et la température t , et par i le courant rapporté à une pression p , et une température t_0 . La correction ε qui est à ajouter à i pour obtenir i_0 est alors donnée approximativement par la formule

$$\varepsilon = i [0.0015 (760 - p) + 0.0057 (t - t_0)]$$

où p est mesuré en mm de mercure; la valeur de ε , généralement faible, peut cependant atteindre jusqu'à 2 pour 100.

Cette correction est probablement un peu trop forte, car il est vraisemblable que parmi les rayons primaires et secondaires il y en a de relativement absorbables; cependant l'expérience montre que la correction change très peu l'aspect des courbes obtenues, et qu'elle n'est pas susceptible de modifier les résultats.

Une autre correction est à considérer; c'est celle qui résulte de la radioactivité propre de l'appareil de mesures. Celle-ci était toujours très faible au début de l'expérience, par exemple 0,1 pour 100 du courant à mesurer; elle augmentait d'importance à mesure que le courant dû à l'émanation allait en diminuant, et elle pouvait atteindre alors 5 pour 100 de la valeur à mesurer. Une série de mesures portait sur 50 jours environ. Quand on emploie le procédé des électrodes extérieures, on peut prolonger la durée de l'expérience en employant une grande quantité d'émanation, et en réduisant au début l'intensité du rayonnement au moyen d'un écran en plomb épais qui enveloppe le tube actif et que l'on enlève après 20 jours. On constate toutefois qu'il n'y a pas intérêt à prolonger les mesures au delà de 50 jours, car la loi exponentielle simple se trouve altérée à partir de cette époque, et la décroissance du courant devient de plus en plus lente. Ce fait est dû au développement progressif d'une radioactivité à évolution très lente différente de celle qui ne demande que 5 heures pour atteindre un équilibre de régime avec l'émanation du radium: il y a formation de radium D suivie

de production de radium E qui donne lieu à une émission de rayons pénétrants. Il est important de s'assurer qu'à la fin de l'intervalle de temps utilisé, le rayonnement du radium E ne peut contribuer d'une manière appréciable à produire le courant dans l'appareil de mesures. En effet si ce rayonnement commençait à se faire sentir, la loi de décroissance

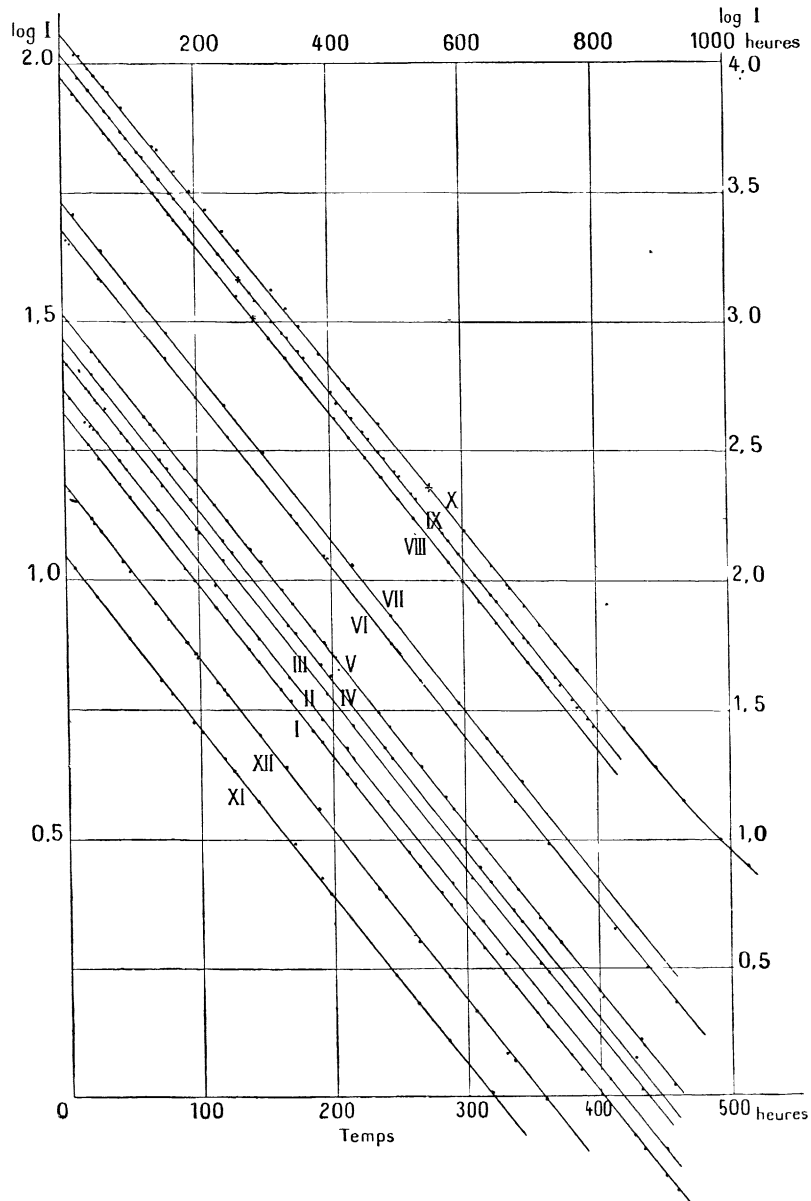


Fig. 5.

observée serait un peu plus lente que celle qui caractérise l'émanation, la déformation pouvant cependant être trop faible pour que l'on voie clairement que la loi n'est pas purement exponentielle. Cette considération constitue une objection importante contre l'emploi de méthodes qui consistent à mesurer l'activité de l'émanation en la laissant dans le même vase. J'ai éliminé cette objection de la

manière suivante. Quand la série des mesures est terminée, on chasse l'émanation du vase qui la contient, on attend 24 heures pour laisser s'éteindre la radioactivité induite à évolution rapide, et l'on mesure alors le rayonnement propre de l'appareil. Si l'on opère avec des électrodes intérieures, le vase est simplement le condensateur de mesures; si l'on opère avec des électrodes extérieures, ce vase est le tube qui contenait l'émanation et qui, après avoir été vidé, doit être remis en place pour la vérification à faire après 24 heures. Dans les deux cas on constate que l'activité observée ainsi après une expérience de 25 jours est très faible et qu'elle ne saurait modifier les résultats obtenus.

Chaque série de mesures a été représentée par une courbe, en portant en abscisses le temps mesuré en heures, et en ordonnées le logarithme décimal du nombre qui mesure le courant en unités arbitraires.

Les courbes ainsi obtenues sont reproduites dans la figure 5. Ce sont très exactement des droites dont le coefficient angulaire a (diminution du logarithme décimal de l'intensité par heure) est indiqué dans le tableau qui suit :

Tableau I : Électrodes intérieures.

	Temps d'observation.	a .	
I	470 heures	0.005279	} valeur moyenne 0.005270
II	450 —	0.005270	
III	450 —	0.005265	
IV	450 —	0.005280	
V	580 —	0.005258	

L'échelle relative à ces droites est indiquée sur la figure en bas et à gauche.

Tableau II : Électrodes extérieures.

	Temps d'observation.	a .	
VI	460 heures	0.005255	} valeur moyenne 0.005246
VII	560 —	0.005270	
VIII	700 —	0.005244	
IX	800 —	0.005255	
X	1040 —	0.005200	

Les droites VI et VII sont construites à la même échelle que celles du tableau précédent. Les droites VIII, IX, X représentent des expériences de durée beaucoup plus grande et sont construites à une échelle moitié de la précédente, indiquée sur la figure en haut et à droite. La concentration initiale de l'émanation dans le tube était en ce cas plus grande, mais l'intensité du rayonnement au dehors était réduite par l'emploi d'un écran de plomb qui entourait le tube: lorsque l'intensité était devenue faible, on enlevait l'écran et l'on continuait les mesures dans le même appareil. Le

raccord des deux parties de la droite obtenues avec et sans écran est indiqué sur la figure par une croix, et l'on voit qu'il n'y a en ce point aucun changement de direction. L'altération de la droite X à partir de 800 heures est due à l'apparition de la radioactivité induite à évolution lente.

Dans les expériences du tableau 2 la concentration initiale de l'émanation était considérablement plus grande que dans les expériences du tableau 1, le rapport étant de l'ordre de 10^3 . On remarque aussi qu'au cours d'une expérience isolée la concentration peut diminuer dans un rapport de 1000 environ sans que la loi exponentielle se trouve en défaut. De plus le coefficient a est sensiblement le même dans toutes les expériences, quelle que soit la concentration initiale dans les limites indiquées. Il en résulte que la loi de destruction de l'émanation est indépendante de la concentration de celle-ci dans de très larges limites.

Ce fait est encore confirmé par les expériences faites avec de l'émanation très concentrée (quantité maximum d'émanation pouvant être fournie par un décigramme de radium et contenue dans un petit tube de volume $0,4 \text{ mm}^3$ environ). La concentration initiale en ce cas était 2×10^{11} fois plus grande que dans les expériences avec électrodes intérieures, et cependant la loi de destruction ne paraît pas altérée. La droite XI représente une de ces expériences avec $a = 0.00525$.

La droite XII représente le résultat d'une série de mesures obtenues dans un appareil à électrodes intérieures avec l'émanation restante d'une expérience faite précédemment dans l'appareil à électrodes extérieures. La loi de destruction est toujours sensiblement la même ($a = 0.00550$). A la fin de cette série l'émanation était séparée du radium depuis 5 mois.

On voit d'après cela que la constante de l'émanation est susceptible d'être déterminée avec une grande précision par les deux méthodes employées. La méthode des électrodes intérieures donne pour a des valeurs plus concordantes et, en moyenne, légèrement supérieures à celles fournies par l'autre méthode. (Écart des moyennes inférieur à 1 pour 100). La méthode des électrodes intérieures, dans laquelle le rayonnement de l'émanation intervient directement à côté de celui de la radioactivité induite, semble avoir de ce chef un avantage sur celle des électrodes extérieures, dans laquelle le rayonnement de la radioactivité induite intervient seul; toutefois cette dernière méthode présente en revanche plus de sécurité parce qu'il est certain qu'aucune fuite d'émanation ne peut avoir lieu.

La théorie montre d'ailleurs, que quelques heures après l'introduction de l'émanation dans le récipient, le rayonnement total et le rayonnement pénétrant sont tous les deux très exactement proportionnels à la quantité d'émanation, et décroissent suivant la

même loi que celle-ci, pendant l'intervalle de temps utilisé dans les expériences.

J'ai remarqué que les résultats obtenus avec des électrodes extérieures sont très influencés par l'état d'humidité de l'air qui contient l'émanation. Si, en particulier, celle-ci est rigoureusement desséchée, les résultats sont très irréguliers, à tel point que l'expérience ne peut pas être utilisée pour la détermination de la constante. Ce phénomène s'explique par les conditions de dépôt de la radioactivité induite dans le tube qui contient l'émanation. Ce dépôt se forme dans le gaz et se dépose sur les parois du tube par un phénomène de diffusion; celui-ci est fortement influencé par les variations de la température ambiante qui donnent lieu à la production de remous dans la masse gazeuse. Tout changement de distribution du dépôt actif peut se traduire par une variation de l'intensité d'ionisation dans l'appareil qui utilise les rayons. On peut régulariser le phénomène par deux procédés : 1° en utilisant un tube très étroit, dans lequel le dépôt actif atteint très facilement la paroi et ne séjourne pas dans le gaz; une telle expérience est représentée par la droite VII; 2° en utilisant de l'air très humide dans lequel le dépôt actif subit l'action de la pesanteur et atteint rapidement la paroi inférieure; la droite VI représente une expérience faite dans ces conditions.

On peut conclure qu'en adoptant la valeur $a=0.00526$, on obtient la constante de l'émanation du radium avec une erreur inférieure à 1 pour 100. D'après cette valeur de a on trouve :

$$\lambda = 2.085 \cdot 10^{-6} \frac{1}{\text{sec.}} = 0.00751 \frac{1}{\text{heure}}$$

$$\Theta = 4.796 \cdot 10^3 \text{ sec.} = 133.2 \text{ heures}$$

$$T = 3.524 \cdot 10^3 \text{ sec.} = 92.54 \text{ h.} = 5.85 \text{ jours.}$$

Pour contrôler les résultats des expériences qui viennent d'être décrites, une autre méthode de détermination de la constante λ a également été essayée. On étudiait l'accroissement d'activité en fonction du temps pour un sel radifère qui, après avoir été ramené à son activité minimum, a été enfermé en tube scellé. Pour priver le sel de l'émanation et du dépôt actif, on le dissout et l'on chasse l'émanation en laissant s'accomplir la destruction du dépôt actif accumulé. Ensuite la dissolution est rapidement évaporée à sec. et le sel est introduit dans une ampoule de verre étroite. On mesure le rayonnement pénétrant de cette ampoule au moyen d'un

dispositif expérimental en tout point semblable à celui qui sert pour la mesure de la décroissance de l'émanation par la méthode des électrodes (fig. 1). L'intensité du rayonnement, d'abord très faible, croît progressivement et tend vers une limite déterminée; cette intensité est à chaque instant proportionnelle à la radioactivité induite formée dans le sel, et celle-ci est elle-même proportionnelle à la quantité d'émanation q présente dans le sel après le temps t , à condition que ce temps soit supérieur à quelques heures, et qu'un équilibre de régime entre l'émanation et la radioactivité induite soit établi. La quantité d'émanation q tend vers sa valeur limite q_x suivant la loi

$$q = q_x (1 - e^{-\lambda t})$$

où λ est la constante de l'émanation.

On a donc
$$\frac{q_x - q}{q_x} = e^{-\lambda t}$$

L'excès de l'activité limite sur l'activité actuelle décroît donc suivant la loi de destruction de l'émanation. Si l'on porte en abscisses le temps, et en ordonnées le logarithme de la différence $(q_x - q)$, les points obtenus doivent se placer sur une ligne droite dont l'inclinaison permet de calculer la constante λ .

Plusieurs expériences faites dans ce but ont donné des résultats tout à fait conformes à la théorie. La diminution du logarithme décimal de $(q_x - q)$ par heure est très exactement la même que celle observée sur les droites de la figure 5. Les nombres obtenus dans trois expériences consécutives sont :

$$0.00517 \quad 0.00526 \quad 0.00322$$

L'une des expériences est représentée dans la figure 4.

Cependant cette méthode ne semble pas susceptible

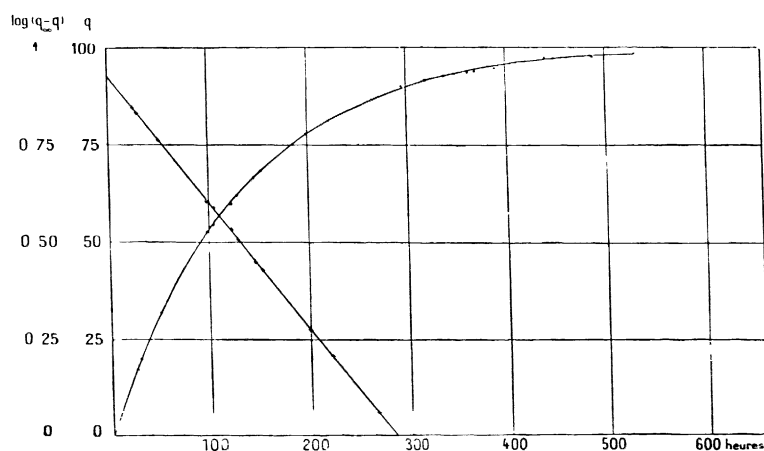


Fig. 4

d'une aussi grande précision que la méthode de mesures de la d émanation, et pour

cette raison les nombres obtenus n'ont pas été utilisés pour la détermination de la constante. L'erreur commise sur l'intensité limite se fait sentir sur chacune des différences $q_x - q$; les courbes obtenues ne sont bien régulières que sur un intervalle de 8 à 10 jours environ.

Les valeurs des fonctions $e^{-\lambda t}$ et $1 - e^{-\lambda t}$ pour l'éma-

nation du radium ont été indiquées par M. Kolowrat¹ pour diverses valeurs de t , dans des tables construites à cet effet. La valeur de λ qui a servi pour le calcul est celle qui a été déduite des déterminations décrites ci-dessus.

[Reçu le 14 Février 1910.]
