Sur le rayonnement du radium à la température de l'hydrogène liquide

Pierre Curie, M. Kamerlingh Onnes

► To cite this version:

Pierre Curie, M. Kamerlingh Onnes. Sur le rayonnement du radium à la température de l'hydrogène liquide. Radium (Paris), 1913, 10 (6), pp.181-186. 10.1051/radium:01913001006018100 . jpa-00242609

HAL Id: jpa-00242609

<https://hal.science/jpa-00242609>

Submitted on 1 Jan 1913

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 le rayonnement du radium
à la température de l'hydrogène liquide

Par Mme P. CURIE et M. KAMERLINGH ONNES

[Laboratoire cryogénique de Leyde.]

Parmi les propriétés des corps radioactifs, l'une des plus remarquables est l'indépendance du rayonnement de la température. On ne constate non plus aucune influence de la température sur la valeur des constantes radioactives. Ces deux faits sont connexes; ils prouvent que les transformations radioactives ne sont pas sensibles à l'action de la température qui joue un rôle si important dans les transformations chimiques moléculaires.

Dans la théorie des transformations radioactives, l'intensité du rayonnement d'une substance simple est, en effet, proportionnelle à la vitesse de transformation, de sorte que la variation de l'une de ces quantités entraîne la variation de l'autre. Les recherches expérimentales, relatives à l'action de la température, ont porté sur la mesure de constantes radioactives et sur celle de l'intensité du rayonnement de quelques substances. P. Curie a montré que la loi de transformation de l'émanation n'est pas modifiée à la température de 450° ou à la température de l'air liquide¹.

Divers observateurs ont constaté que le rayonnement pénétrant du radium ou de l'uranium est le même à la température ordinaire et à la température de l'air liquide².

L'action des températures élevées sur l'émanation du radium et sur les produits de sa transformation, en particulier sur le radium C, a aussi fait l'objet de plusieurs travaux et a donné lieu à des discussions. Il semble néanmoins légitime de conclure que les variations observées dans certains cas sont attribuables à des phénomènes accessoires d'importance secondaire et que les constantes radioactives des substances indiquées ne sont pas modifiées d'une manière appréciable quand la température s'élève jusqu'à 1500 degrés³.

Étant donnée la grande importance de cette question, on pouvait chercher à étendre ces résultats en opérant dans les limites de température plus éten-

dues et en augmentant la précision des mesures, laquelle pouvait au plus atteindre 1 pour 100 dans les recherches dont il vient d'être question.

Nous nous sommes proposé d'utiliser la température de l'hydrogène liquide. L'emploi d'une méthode de compensation permettait d'apprécier une très petite variation dans l'intensité du rayonnement.

Les mesures ont porté sur le rayonnement pénétrant du radium. Les résultats ne sont pas favorables à l'existence d'un effet rapide de ce grand abaissement de température sur le rayonnement, à une précision qui atteint probablement 0,2 pour mille.

Ce travail a été exécuté pendant la première partie de l'année 1911. Les mesures préparatoires ont été effectuées d'une part à Paris, d'autre part à Leyde. Les mesures définitives ont été faites à Leyde en juillet 1911. Les expériences devaient être continuées et étendues et pour cette raison la publication a été retardée. Mais la reprise du travail ayant été empêchée jusqu'à présent par suite d'une longue maladie de l'un de nous, il semble préférable de publier les résultats obtenus.

Après quelques tâtonnements, le dispositif expérimental suivant a été adopté.

L'appareil (fig. 1 et 2) se compose d'un vase Dewar A dans lequel on fait pénétrer un vase de cuivre B contenant le bain froid. Le vase Dewar, assez large dans sa partie supérieure A₁, est constitué dans sa partie inférieure A₂ par un tube dont la longueur est environ 16 cm et les deux diamètres 8,5 mm et 15 mm. Le vase de cuivre s'applique bien sur les parois du vase Dewar et possède comme celui-ci une partie tubulaire, moins longue que celle du vase Dewar. Le tube de cuivre est fermé à son extrémité inférieure B₁ par une pièce métallique C₁ qui porte un tube d'aluminium mince C₂ (0,5 mm d'épaisseur), dans lequel se trouve une ampoule de verre contenant le radium. L'espace étroit dans lequel est placée cette ampoule, dans la partie inférieure du vase Dewar, constitue une chambre froide dont la température diffère très peu de celle du bain froid; la différence pouvait à peine être appréciée quand le

1. P. CURIE, *C. R.* (1905).
2. BÉQUEREL, CURIE, DEWAR, RUTHERFORD.
3. CURIE et DANNI, *C. R.* (1904); BRONSON, *Phil. Mag.* (1906).
MAKOWIR et RUSS, *Le Radium* 1907; ENGLER, *Ann. d. Phys.* (1908); SCHMIDT, *Phys. Zeitschr.* (1908).

vase de cuivre était rempli d'air liquide. Il a donc paru préférable d'opérer ainsi, plutôt que de placer l'ampoule elle-même dans l'air liquide, ce qui présente toujours un certain danger.

Les rayons émis par l'ampoule sont en partie des rayons pénétrants qui peuvent traverser les parois du

électrostatique. Quand l'appareil est monté, la partie tubulaire du vase Dewar pénètre dans le tube central D_2 de la boîte D_1 , le raccord étant obtenu au moyen d'un tube de caoutchouc épais s'appliquant sur une pièce d'ambre g mastiquée sur le vase Dewar. L'ampoule étant en place, les ions sont produits dans l'air qui remplit la boîte D_1 , de part et d'autre de l'électrode E . Le courant recueilli par celle-ci est mesuré au moyen d'un électromètre et d'un quartz piézo-électrique.

L'expérience consiste à mesurer le courant d'ionisation produit par les rayons du radium 1° quand le radium est à la température ambiante; 2° quand le radium est à la température de l'hydrogène liquide.

La chambre d'ionisation qui est extérieure au vase Dewar reste d'ailleurs sensiblement à la température ambiante. Cette chambre est étanche, et la masse de gaz qui y est contenue ne varie pas pendant les expériences.

On augmente grandement la sensibilité de la méthode si, au lieu de mesurer la totalité du courant, on utilise une méthode de compensation. Celle-ci consiste à compenser le courant à mesurer par un courant de sens opposé, produit dans une seconde chambre d'ionisation par les rayons pénétrants d'une ampoule de radium qui ne subit aucune variation de température pendant les expériences. Ce compensateur de courant est d'un type ordinaire dans les mesures de radioactivité. L'électrode isolée G , a la forme d'un tube fermé à l'extrémité inférieure et relié à l'électromètre et à l'électrode E_1 au moyen de fils protégés par des tubes de laiton remplis de paraffine. Le tube G pénètre à l'intérieur d'une boîte cylindrique H reliée à une batterie et formant chambre d'ionisa-

Fig. 1.

tube d'aluminium et celles du vase Dewar et pénétrer au travers d'une paroi métallique dans une chambre d'ionisation étanche. Celle-ci se compose d'une boîte cylindrique D_1 reliée à une batterie; dans la base supérieure de cette boîte est soudé un tube disposé suivant l'axe du cylindre et fermé à l'extrémité inférieure. L'électrode isolée E_1 , ayant la forme d'un cylindre à fond, est reliée à l'électromètre. La boîte métallique F , reliée au sol, assure la protection

tion. La boîte extérieure K sert d'enveloppe protectrice. L'électrode G (de même que l'électrode E_1) est protégée à la manière ordinaire par un tube de garde relié au sol. A l'intérieur du tube G se trouve une ampoule qui contient un sel de radium. Les boîtes D_1 et H sont maintenues à des potentiels élevés de signes contraires. Dans ces conditions, on mesure à l'électromètre la différence des courants d'ionisation produits dans les deux chambres. Avec des courants

d'intensité suffisante on peut ainsi atteindre une sensibilité très élevée.

Il est utile de remarquer que diverses petites imperfections des méthodes de mesures, qui restent d'ordinaire inaperçues, deviennent visibles quand on opère de la manière qui vient d'être décrite. Ainsi,

du sel à l'aide de secousses répétées. Mais on laisse néanmoins subsister de petits effets de ce genre inférieurs à 1 pour 1000 dans nos expériences. La plus grande prudence est donc nécessaire dans les manipulations nécessitées par les expériences.

Les oscillations radioactives du courant d'ionisation

Fig. 2.

quand on mesure chaque courant séparément, la saturation semble complète pour des potentiels de 500 volts. Mais, en mesurant la différence des courants, laquelle n'atteignait généralement pas 5 pour 100 de la valeur de chacun d'eux, on pouvait se rendre compte que le courant dans chaque chambre augmentait encore avec le voltage. Quand le potentiel augmente depuis 500 volts à 800 volts, le courant augmente de 2 à 5 millièmes. Il faut donc opérer avec des voltages invariables.

La précision est limitée par les conditions de stabilité des appareils et par les oscillations radioactives.

Le travail a été effectué avec des sels de radium solides, contenus dans les ampoules. Le sel était en petits grains, et l'ampoule n'était pas complètement remplie. Quand des secousses se produisent, les grains peuvent se déplacer dans une certaine mesure. Il en résulte un petit changement dans la distribution du rayonnement à l'intérieur des chambres. On en diminue le danger en réalisant d'avance un tassement

se manifestent quand on augmente suffisamment la sensibilité des mesures. Elles donnent lieu à des irrégularités qui ne peuvent être éliminées que par un grand nombre de mesures. Elles sont le moins à craindre quand on opère avec les rayons γ , ce qui était le cas dans nos expériences. Elles ne pouvaient apporter de troubles dans les mesures.

Il est très important que les chambres d'ionisation contiennent une masse d'air invariable. Quand on utilise des rayons pénétrants, le courant est, au moins approximativement, proportionnel à la masse d'air ionisé. Pour que le courant reste constant, à une grande précision, il faut donc assurer la fermeture parfaite des chambres. Chacune d'elles était munie d'un robinet. En faisant varier la masse d'air dans la chambre de compensation, on pouvait régler le courant dans cette chambre, de manière à obtenir la compensation au degré voulu.

L'air sec est introduit dans les deux chambres au moyen d'un tube rempli d'ouate, qu'on relie par

un joint rodé au robinet de la chambre, à une pompe à vide et à un manomètre qui permet de régler l'admission.

Nous avons dû prendre beaucoup de soins pour éviter que les opérations cryogéniques n'entraînent des défauts d'isolement, par suite d'un dépôt d'humidité de l'atmosphère sur les parties refroidies de l'appareil. L'arrangement cryogénique adopté a permis d'éviter toute difficulté de ce genre. Cet arrangement qui, du reste, était indiqué pour travailler facilement et en toute sécurité avec l'hydrogène liquide, avait aussi cet avantage que l'ampoule à radium ne pouvait être en contact qu'avec le gaz du bain, de sorte qu'on n'avait pas à craindre des dépôts d'air solide autour d'elle.

L'appareil cryogénique est tout à fait fermé. Le vase Dewar porte un couvercle h , d'argentan mince, qui y est appliqué avec une ligature en caoutchouc, permettant de réaliser une fermeture hermétique, de sorte que, l'ampoule avec le radium étant mise en place, tout l'appareil cryogénique peut être évacué et rempli d'avance (par l_1) avec de l'hydrogène gazeux pur et sec.

Une perforation du petit bouchon C_5 , sur lequel l'ampoule repose dans le tube d'aluminium, assure l'équilibre de pression, qui s'y établit facilement pendant cette opération, de sorte que l'ampoule ne court aucun risque par cet effet.

L'hydrogène liquide est introduit dans le vase B, par le petit tube en argentan h_1 , et le tube en caoutchouc h_2 . Pour cela, on enlève le bouchon en verre qui ferme celui-ci, et on y introduit (après avoir enlevé le bouchon k_2) le tube siphon k_1 d'une grande boule Dewar w , dans lequel on a transporté l'hydrogène liquide préparé d'avance. Avant de faire le raccord du siphon et du tube, l'appareil et la boule sont mis en communication par les tubes L_1 et L_5 avec un gazomètre d'hydrogène pur. Le raccord étant fait, on supprime la communication de la boule et du gazomètre et, en exerçant une pression sur le robinet m , à l'aide d'un réservoir à hydrogène comprimé, d'après les indications d'un manomètre à mercure n , on verse l'hydrogène liquide dans l'appareil. La communication entre la boule de provision et le gazomètre est alors rétablie, le raccord réchauffé, le siphon séparé du tube, et celui-ci de nouveau fermé par le bouchon de verre aussitôt remis en place. Pour éviter que ces manipulations ne donnent des secousses à l'appareil, le tube en caoutchouc h_2 , d'ordinaire aussi court que possible, a été pris assez long; mais comme le caoutchouc devient très cassant par le froid extrême, ce qui peut occasionner des ennuis, nous nous sommes bornés à une longueur de 7 cm. Les secousses sont restées alors au-dessous des limites de stabilité de l'appareil qui a servi aux expériences, dont il est question dans ce mémoire.

Dans un plus grand appareil, destiné à des expériences prolongées pendant plus de vingt-quatre heures, avec lequel nous n'avons encore pu faire que des expériences préliminaires, nous avons réussi à obtenir une plus grande stabilité, et nous sommes devenus plus indépendants des secousses causées par les manipulations. En versant le gaz liquéfié, il faut éviter qu'il ne déborde du vase en cuivre B, auquel cas il pourrait pénétrer dans la chambre froide, ce qui donnerait lieu à des irrégularités et pourrait nuire à l'ampoule. D'un autre côté, il faut être averti quand le bain est évaporé, afin de ne pas prolonger les expériences sans être sûr de la température. La hauteur du niveau du gaz liquéfié est appréciée au moyen d'un flotteur. C'est une boîte d'argentan p_1 suspendue à un faible ressort p_2 porté par une tige p_3 . La tige glisse dans une boîte d'étoupe qui se trouve à l'extrémité supérieure d'un tube en verre q , porté par le couvercle h . À côté du ressort et suspendue avec lui à la tige, se trouve une petite échelle, munie en bas de quelques divisions. Vu la densité très petite (1/14) de l'hydrogène liquide, le flotteur est très léger.

Lorsqu'en baissant le ressort, le flotteur atteint la surface, on s'en aperçoit par un raccourcissement du ressort et on lit la hauteur du niveau sur la division et sur la tige.

Lorsqu'on veut verser le gaz liquéfié, on règle la position du flotteur au niveau choisi pour le remplissage.

Avant de commencer les mesures on enfonce le ressort de manière à être averti par son allongement quand le bain est évaporé jusqu'au niveau auquel on veut arrêter les expériences.

L'hydrogène évaporé s'échappe par L_1 . Le tube R, se terminant sous du mercure, fonctionne comme tube de sûreté.

Pour assurer l'isolement du vase Dewar et pour éviter des courants nuisibles à la constance de la batterie, le tube L_1 est interrompu par une pièce d'ambre t . On évite que celle-ci se refroidisse trop pendant le remplissage en dirigeant alors les vapeurs froides par un conduit auxiliaire L_2 qu'on supprime après que le gaz liquéfié a été versé. Le débit de vapeur étant devenu normal, un courant d'air un peu plus chaud que celui de la salle suffit pour maintenir l'isolement. Le courant d'air est fourni par un réservoir à air comprimé; l'air passe dans un long tube dont une partie est chauffée par de l'eau chaude.

Le raccord de la pièce d'ambre g mastiquée sur le vase Dewar avec le tube D_2 de la chambre principale est fait avec beaucoup de soin, pour assurer une fermeture hermétique, de sorte que l'humidité ne puisse pénétrer dans l'espace libre entre le tube et le vase.

Au moyen d'une gaine de papier, on dévie les cou-

rants d'air froid qui descendent. Il faut aussi tenir compte de l'eau qui en venant du couvercle coule le long du verre. Le froid intense des vapeurs à l'intérieur du couvercle détermine sur celui-ci, pendant le remplissage, un dépôt de givre qui fond ensuite. De plus, quand le remplissage est terminé, la condensation d'humidité atmosphérique continue en donnant de l'eau; celle-ci est prise par de la ouate au-dessus de la gaine de papier dont nous venons de parler et au-dessous de celle-ci par du papier buvard. Sur la pièce d'ambre on dirige un courant d'air sec un peu chauffé, qui en même temps sèche le bas du vase Dewar.

Il reste à empêcher le refroidissement des pièces par lesquelles l'électrode principale E_1 communique avec l'électromètre. Pour cela on dirige de même un courant d'air sec et légèrement chauffé sur le bouchon d'ambre entre la tige E_2 et l'anneau de garde E_3 en bas de la chambre principale.

Les courants d'air refroidi qui descendent des conduites de gaz sont déviés loin des appareils par des écrans et des gaines appropriées. Les mouvements d'air dans la salle ont été empêchés autant que possible afin d'éviter un déplacement d'air ionisé autour des contacts, protégés du reste par plusieurs écrans en plomb, indiqués schématiquement, par des feuilles d'étain, etc. L'influence des courants de chauffage a été essayée à la température ordinaire et ne donnait lieu à aucun effet d'influence.

Expériences préliminaires. — La méthode expérimentale a d'abord été étudiée à Paris, en utilisant de l'air liquide pour le bain froid.

Le courant dans la chambre principale était obtenu au moyen d'une ampoule contenant environ 0,1 gr. de chlorure de radium. Dans la chambre compensatrice l'on utilisait une ampoule contenant environ 25 mgr. de chlorure de radium.

Dans les premières expériences, l'ampoule principale était contenue dans un tube d'aluminium de 0,5 mm d'épaisseur, et le tube central D_2 de la chambre D_1 était également en aluminium, de 0,5 mm d'épaisseur. Les rayons traversaient, avant de pénétrer dans la chambre, une épaisseur d'aluminium de 0,8 mm en tout, ainsi qu'une épaisseur de verre d'environ 2,5 mm (paroi de l'ampoule et les deux parois du vase Dewar).

Lors du refroidissement, on observait toujours une diminution du courant dans la chambre principale. Cette diminution, assez peu régulière, était d'environ 2 pour 100, elle s'établissait rapidement, dès que l'air liquide était versé dans le vase de cuivre, et atteignait sa valeur maximum en une demi-heure environ.

Cependant, en retirant rapidement l'air liquide du vase et en suivant, au moyen d'un couple thermo-

électrique, la température de l'ampoule, on pouvait constater que cette température restait encore fixe, le courant remontait déjà, pour reprendre sensiblement la valeur primitive après le réchauffement complet de l'appareil. On pouvait conclure de là que la diminution de courant observée n'était pas attribuable à une variation du rayonnement de l'ampoule, mais à quelque autre circonstance.

Après divers essais, il a paru probable qu'il s'agissait d'un changement de l'effet absorbant des écrans par suite de leur contraction à basse température. Il a donc paru nécessaire d'utiliser des écrans plus denses et plus épais, afin d'opérer avec les rayons les plus pénétrants seulement, sur lesquels des effets de ce genre sont moins à craindre. En entourant l'ampoule d'un tube de cuivre de 1 mm d'épaisseur, on a constaté, en effet, que la diminution de courant à l'introduction de l'air liquide se trouvait réduite à 0,1 pour 100 seulement; elle était établie en 10 minutes. Ce résultat a été obtenu dans trois expériences consécutives.

Il a paru possible d'obtenir des conditions encore meilleures en modifiant le dispositif de manière à faire porter l'absorption sur des écrans qui ne subissent pas le refroidissement. Pour cela on a remis à nouveau l'ampoule dans le tube d'aluminium de 0,5 mm d'épaisseur, mais, en revanche, le tube central de la chambre a été remplacé par un tube de laiton de 2 mm d'épaisseur. La diminution est alors devenue inférieure à 1 pour 1000. Ce dispositif a été adopté pour les expériences avec l'hydrogène liquide.

Expériences définitives. — Les expériences ont été exécutées à Leyde, du 20 au 25 juillet 1911.

Le courant d'ionisation dans la chambre principale était mesuré par 1100 unités arbitraires (environ 10 unités E. S.). L'intensité du courant de compensation était réglée de manière à être un peu plus grande, la différence atteignant au plus 20 unités, soit environ 2 pour 100. Les rayons utilisés étaient les rayons γ .

Deux expériences avec l'hydrogène liquide ont pu être effectuées.

Dans ces expériences, ainsi que nous l'avons exposé plus haut, la chambre froide était remplie de gaz hydrogène sec, et les condensations autour de l'ampoule étaient évitées.

Dans la première expérience, le courant mesuré, égal d'abord à 10,9 unités, a pris la valeur de 14,7 unités après l'introduction de l'hydrogène liquide, laquelle a demandé 15 minutes. Cette variation correspond à une diminution du courant principal, égale à 5,4 pour 1000.

Dans la deuxième expérience, le courant mesuré était de 18,5 unités, et une bonne stabilité était

obtenue, les variations des mesures pendant une demi-heure n'atteignant pas 0,1 pour 1000 du courant principal. L'hydrogène liquide ayant alors été introduit, des mesures très concordantes faites pendant une demi-heure ont donné pour la valeur du courant 18,5 unités, et après une heure, 18,2 unités. On peut donc affirmer que dans cette expérience, qui semble faite dans de très bonnes conditions, le refroidissement n'a pas donné lieu à une variation du courant principal qui puisse être évaluée à 0,2 pour 1000.

Une expérience a aussi été faite à la température de l'oxygène liquide. Le courant mesuré était de 1,8 unité. Les mesures faites pendant une heure à la température de l'oxygène liquide ont donné pour la valeur du courant mesuré 2,6 unités, ce qui correspond à une diminution de 0,7 pour 1000 sur le courant principal.

Il aurait été désirable de faire un plus grand nombre d'expériences et aussi de les poursuivre pendant un temps plus long. Néanmoins, en considérant surtout celle des expériences qui paraît la meilleure, il semble légitime d'affirmer que *le refroidissement du radium à la température de l'hydrogène liquide (20°, 3 absolu) pendant un temps qui ne dépasse pas une heure et demie, ne donne pas lieu à une variation de rayonnement γ qui puisse atteindre 1 pour 1000, et probablement même 0,2 pour 1000.*

Il est donc probable d'après cela qu'il n'existe pas, à la précision indiquée, d'effet instantané ou très rapide de cet abaissement de température sur l'émanation ou le dépôt actif à évolution rapide (Radium A, B et C). Mais un effet sur le radium lui-même ou un effet se produisant assez lentement sur ses dérivés, n'aurait pu être mis en évidence dans ces expériences.

Expériences avec le polonium. — Quelques essais ont été faits à Paris pour étudier l'action des basses températures sur le rayonnement du polonium. L'expérience a seulement été faite avec l'air liquide. Elle présente certaines difficultés. Une plaque portant

un dépôt de polonium était placée au fond d'un long tube de verre qui pouvait être plongé dans l'air liquide. Cette plaque agissait, au travers d'un écran d'aluminium mince fermant le tube, sur une chambre d'ionisation étanche, dans laquelle les rayons du polonium étaient absorbés par l'air. Un vide aussi bon que possible était fait dans le tube à polonium; ensuite, on améliorait encore le vide en plongeant dans l'air liquide un tube latéral, adapté au premier, et contenant une petite quantité de charbon. La mesure du rayonnement était faite à la température ordinaire, et ensuite elle était répétée pendant que le fond du tube plongeait dans l'air liquide. Dans ces expériences, on a observé, lors du refroidissement, des diminutions de courant de grandeur variable.

Ces variations se sont montrées d'autant moins importantes que les précautions pour obtenir et maintenir un vide parfait étaient plus grandes. Il est donc très probable qu'elles étaient dues uniquement à la condensation sur le polonium des traces de matières gazeuses présentes dans l'appareil.

Des expériences faites à Leyde avec un appareil provisoire plongé dans l'hydrogène liquide nous ont conduits à la conclusion qu'on pourrait arriver à éliminer tout à fait ces condensations même dans l'hydrogène liquide en faisant usage d'une chambre d'ionisation remplie d'hydrogène, et d'un tube latéral à charbon plongé dans l'hydrogène liquide.

Conclusions. — Il résulte de l'ensemble de ces expériences qui ne sont malheureusement pas aussi complètes que nous l'aurions désiré, que l'indépendance du rayonnement de la température se trouve confirmée dans des limites plus étendues que précédemment. En même temps, les expériences ont mis en évidence les causes d'erreur avec lesquelles il faut compter quand on veut pousser loin la précision des mesures à très basse température.

[Manuscrit reçu le 8 juin 1915.]