



HAL
open science

Chambres d'ionisation différentielles pour la mesure de variation de période radioactive

M. Bogé, A. Meykens

► **To cite this version:**

M. Bogé, A. Meykens. Chambres d'ionisation différentielles pour la mesure de variation de période radioactive. *Revue de Physique Appliquée*, 1976, 11 (1), pp.167-174. 10.1051/rphysap:01976001101016700 . jpa-00243961

HAL Id: jpa-00243961

<https://hal.science/jpa-00243961>

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.

Classification
 Physics Abstracts
 0 676

CHAMBRES D'IONISATION DIFFÉRENTIELLES POUR LA MESURE DE VARIATION DE PÉRIODE RADIOACTIVE

M. BOGÉ

Laboratoire de Chimie Physique Nucléaire
 Département de Recherche Fondamentale de Grenoble CEN/G, BP 85, 38041 Grenoble Cedex, France

et

A. MEYKENS

Institut Voor Kern-en Stralingsfysika Celestijnenlaan 200 D 3030 Heverlee, Belgique

(Reçu le 15 juillet 1975, accepté le 25 juillet 1975)

Résumé. — Nous avons mis au point deux chambres d'ionisation différentielles à très faible bruit de fond ($\approx \pm 10^{-16}$ A) pour nous permettre de mesurer des variations du taux de désintégration d'un isotope radioactif en fonction de son environnement physico-chimique. Des effets de l'ordre de 10^{-4} doivent pouvoir être mesurés.

Abstract. — We describe two differential ionization chambers with very low background ($\approx \pm 10^{-16}$ A) to measure the lifetime variation of a radioactive isotope as a function of its physical and chemical state. It should be possible to measure effects of order 10^{-4} .

Introduction. — Après la découverte de la radioactivité, une des préoccupations majeures a été la compréhension du phénomène de décroissance radioactive. La théorie statistique de cette décroissance a conduit à admettre une probabilité de désintégration λ propre à chaque nuclide radioactif. De nombreux travaux furent entrepris (Rutherford 1911, M^{me} Curie 1924) pour essayer de faire varier ce facteur en fonction de la température, de la pression, etc. Aucun effet ne pu être mis en évidence. Plus récemment en 1947 Segré [1] d'une part, R. Bouchez, R. Daudel *et al.* [2] d'autre part pour le ^7Be , et en 1953 K. T. Bainbridge *et al.* [3] pour le $^{99\text{m}}\text{Tc}$ montrèrent l'influence de l'environnement chimique dans le cas de décroissance radioactive par capture électronique (^7Be) et par conversion interne ($^{99\text{m}}\text{Tc}$). En effet, ce type de décroissance est lié directement à la densité de charge électronique $|\psi_{(0)}|^2$ près du noyau donc à l'état physico-chimique de la substance. Et l'on peut écrire :

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} \approx \frac{|\Delta\psi_{(0)}|^2}{|\psi_{(0)}|^2}$$

$\Delta\lambda$ étant la variation de la probabilité λ et $|\Delta\psi_{(0)}|^2$ la variation correspondante de la fonction d'onde $|\psi_{(0)}|^2$.

Plus récemment, l'intérêt des mesures de $\Delta\lambda$ s'est accru du fait du développement des techniques Mössbauer et ESCA. En effet, par effet Mössbauer on peut

mesurer le déplacement isomérique ΔE dû à deux environnements chimiques différents :

$$\Delta E = kR^2 \left| \frac{\Delta R}{R} \right| \cdot \Delta |\psi_0|^2$$

$\Delta R/R$ exprime la variation relative du rayon du noyau entre l'état fondamental et l'état excité. En mesurant $\Delta\lambda/\lambda$ on peut connaître le facteur électronique $\Delta |\psi_0|^2$ et calculer la valeur du facteur nucléaire $\Delta R/R$.

La mesure de variation de période s'effectue par une méthode différentielle. Celle-ci est évidemment préférable à la soustraction de deux mesures absolues puisque l'on réduit les risques d'erreurs systématiques et aléatoires. Deux types d'appareillage sont utilisés : les compteurs à scintillation et les chambres d'ionisation. C'est cette dernière méthode qui sera décrite ici.

1. Mesure par chambres d'ionisation. — 1.1 PRINCIPE DE LA MESURE (Fig. 1 et 2). — Cette méthode déjà utilisée par Rutherford en 1911 consiste à utiliser deux chambres d'ionisation montées en opposition (l'une alimentée en tension positive, l'autre en tension négative), et à mesurer le courant différentiel. On se propose donc de comparer deux échantillons S_1 et S_2 composés des mêmes noyaux radioactifs, de même intensité initiale, mais placés dans deux états physiques ou chimiques différents conduisant ainsi à une variation $\Delta\lambda$

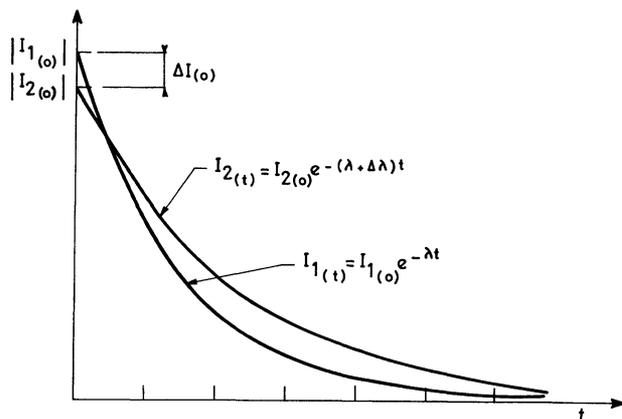


FIG. 1. — Décroissance du courant des deux sources S₁ et S₂.

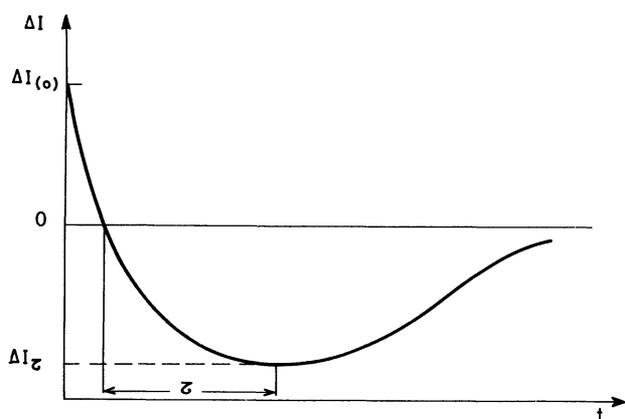


FIG. 2. — Décroissance du courant différentiel.

La source S₁ de constante λ dans la chambre 1 donnera le courant I₁, la source S₂ de constante (λ + Δλ) dans la chambre 2 donnera le courant I₂. A chaque instant nous aurons un courant :

$$\Delta I(t) = I_{1(t)} - I_{2(t)}$$

au temps t = 0

$$\Delta I(0) = I_{1(0)} - I_{2(0)}$$

au temps t

$$\begin{aligned} I_{1(t)} &= I_{1(0)} e^{-\lambda t} \\ I_{2(t)} &= I_{2(0)} e^{-(\lambda + \Delta\lambda)t} \end{aligned}$$

Le courant différentiel

$$\begin{aligned} \Delta I(t) &= I_{1(t)} - I_{2(t)} = I_{1(0)} e^{-\lambda t} - I_{2(0)} e^{-(\lambda + \Delta\lambda)t} \\ \Delta I(t) &= \Delta I_0 e^{-\lambda t} + I_{2(0)} e^{-\lambda t} - I_{2(0)} e^{-\lambda t} e^{-\Delta\lambda t} \end{aligned}$$

L'expression de Taylor permet d'écrire :

$$\Delta I(t) = \Delta I_0 e^{-\lambda t} + I_{2(0)} e^{-\lambda t} \Delta\lambda t \quad (1.1)$$

à condition que Δλt ≪ 1,

$$\text{et} \quad \frac{\Delta I(t)}{I_{2(0)}} = \frac{\Delta I(0)}{I_{2(0)}} + \frac{\Delta\lambda}{\lambda} \cdot \lambda t \quad (1.2)$$

expression de forme linéaire y = b + at dont la pente est Δλ.

On peut écrire enfin :

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \left(\frac{\Delta I(t)}{I_{2(t)}} - \frac{\Delta I_0}{I_{2(0)}} \right) \cdot \frac{1}{\lambda t} \quad (1.3)$$

Il faut remarquer l'importance du signe de I₂₍₀₎ selon que la source correspondante est située sur la chambre positive ou négative.

Si ΔI(0) = 0 l'expression (1.1) devient :

$$\Delta I(t) = I_{2(0)} e^{-\lambda t} \Delta\lambda t$$

fonction qui passe par un minimum pour

$$t = \frac{1}{\lambda} = \tau = \frac{T}{0,693} \quad (\text{Fig. 2})$$

τ étant la vie moyenne du nuclide radioactif et T sa période. Pour t = τ la valeur du courant minimum ΔI sera :

$$\Delta I(\tau) = \frac{I_{2(0)}}{e} \cdot \frac{\Delta\lambda}{\lambda} \quad (1.4)$$

1.2 LES CHAMBRES D'IONISATION. — On dispose de deux chambres géométriquement identiques, l'une alimentée en tension positive, l'autre en tension négative par rapport à la masse (Fig. 3). Les électrodes de mesure respectives montées en opposition sont également reliées à la masse à travers un système électrométrique.

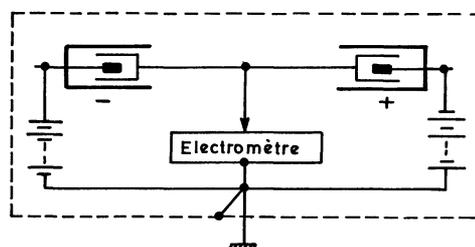


FIG. 3. — Principe de mesure.

Ces chambres d'un volume de 2 litres chacune, sont remplies de 5 atm d'argon, spectroscopiquement pur. Les enceintes, provenant d'un ancien dispositif sont en laiton. Les électrodes intérieures sont en cuivre, l'isolant haute tension en araldite pure, celui de l'électrode de mesure en polystyrène. Toutes les surfaces ont été polies miroir et soigneusement nettoyées, sans poussière. Ces chambres sont dites à puits (Fig. 4). La source radioactive est placée au centre de la chambre et logée dans un cylindre supporté par une tige isolante et un système de réglage micrométrique. L'angle solide de mesure est donc voisin de 4 π. La géométrie est cylindrique à double électrode haute tension afin d'augmenter l'espace utile ; le tube dans lequel on introduit la source est à la haute tension. L'électrode de mesure collecte donc les charges sur ses surfaces intérieures et extérieures. Ces charges s'écoulent par une tige de cuivre, isolée par une pièce de polystyrène poli qui est protégée de la haute tension par un anneau de garde en

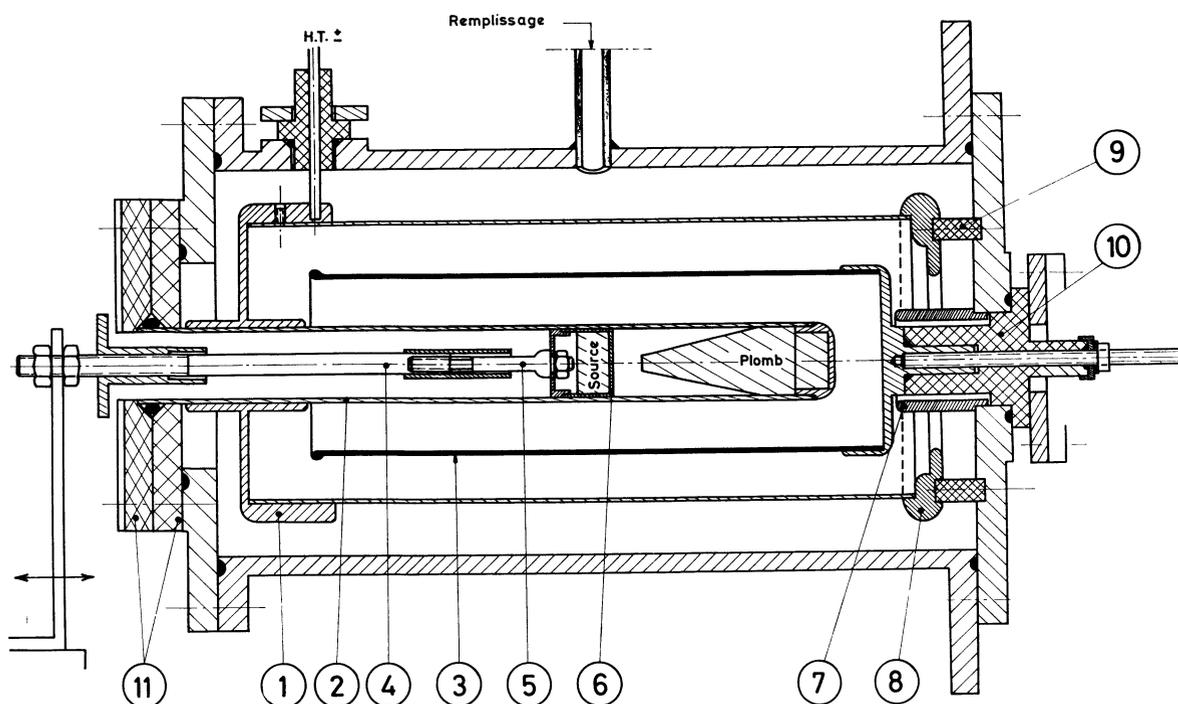


FIG. 4. — Coupe de la chambre d'ionisation : 1 : Enveloppe haute tension ; 2 : Puits (haute tension) ; 3 : Electrode de mesure ; 4 : Tige porte source ; 5 : Tige isolante ; 6 : Porte source (haute tension) ; 7 : Anneau de garde ; 8 : Couronne (haute tension) ; 9 : Isolant en plexiglass ; 10 : Isolant en polystyrène (mesure) ; 11 : Isolants en plexiglass.

cuivre. Pour éviter des effluves ou des décharges, tous les bords de pièces ont été arrondis. La haute tension est assurée par 2 batteries de piles, l'une positive, l'autre négative, de 300 V chacune. Dans le domaine de mesures de courants faibles, les alimentations, même les mieux stabilisées, ne donnent pas satisfaction, le *résiduel* si faible soit-il, amène des parasites enregistrés sur l'électrode de mesure et amplifiés par le système électrométrique. Nous avons d'abord utilisé des piles courantes du commerce. Leur qualité n'était pas suffisante, de petits claquages internes de l'ordre de quelques microvolts apparaissaient et perturbaient la mesure. Nous avons choisi finalement des piles au mercure Mallory. Ces batteries sont placées dans un blindage en cuivre relié à la masse.

Les électrodes de chaque chambre sont reliées l'une à l'autre par une connexion soudée à l'étain et reliée au système électrométrique. Cette ligne de mesure se trouve à l'intérieur d'un tube relié à la masse, qui lui sert de blindage électrostatique et dans lequel on peut faire le vide. Entre les deux chambres et autour de ce tube, on a disposé un blindage en plomb pour limiter l'influence d'une source radioactive sur la chambre voisine.

1.3 MESURE DU COURANT. — 1.3.1 *Circuit électrométrique.* — La mesure du courant s'effectue par un électromètre CARY type 401 à capacité vibrante dont le gain d'amplification est de 1 000. Il est alimenté par une batterie d'accumulateur de 12 V, 90 A/h.

Il y a deux façons de connaître la valeur de ce cou-

rant, soit en mesurant la différence de potentiel aux bornes d'une résistance de grande valeur

$$(10^9 \Omega < R < 10^{13} \Omega),$$

soit en mesurant en fonction du temps la charge d'une capacité de valeur connue. Cette dernière méthode, plus précise, a été retenue pour nos mesures. Le courant recueilli I charge un condensateur de valeur $C = 1,9728 \times 10^{-11}$ F pendant le temps t_A , au bout duquel la capacité est court-circuitée. Après un temps t_1 , le circuit est à nouveau ouvert pour un autre cycle et ainsi de suite. Avant chaque court-circuit, on mesure la tension V aux bornes du condensateur, qui donne la valeur du courant :

$$I = \frac{C \cdot V}{t_A}.$$

Ce circuit électrométrique (chambres + piles + électromètre CARY) est protégé des perturbations extérieures par un blindage en plomb servant à la fois de cage de Faraday et de protection contre le rayonnement. Il faut surtout signaler l'importance du point de *masse*. Celui-ci doit être situé le plus près possible de la capacité de mesure. Il est donc pris sur le préamplificateur de l'électromètre « CARY ». Chaque partie du circuit est rattachée séparément à ce point par une tresse de masse isolée. Ce point de masse est relié lui-même à la terre par une tresse de masse isolée elle aussi. Cette dernière connection est rendue nécessaire par le fait qu'on utilise une installation électronique alimentée

par le secteur 220 V et reliée à la terre. Si de telles précautions ne sont pas prises, de faibles différences de potentiel peuvent apparaître entre différents points de la masse et venir perturber la mesure.

1.3.2 *Circuit de traitement* [7] (Fig. 5 et 6). — Les cycles d'intégration de charge effectués avec l'électro-

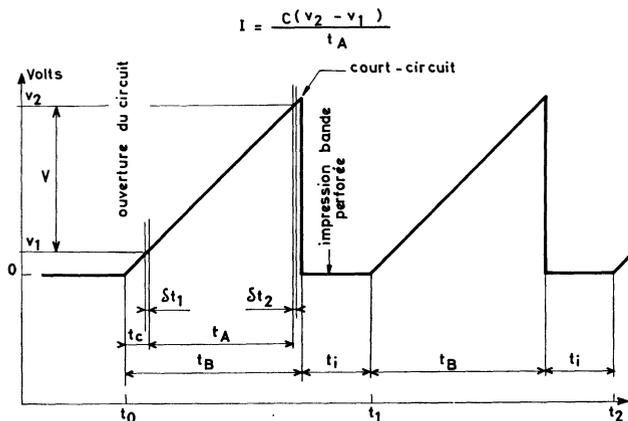


FIG. 5. — Cycles d'intégration.

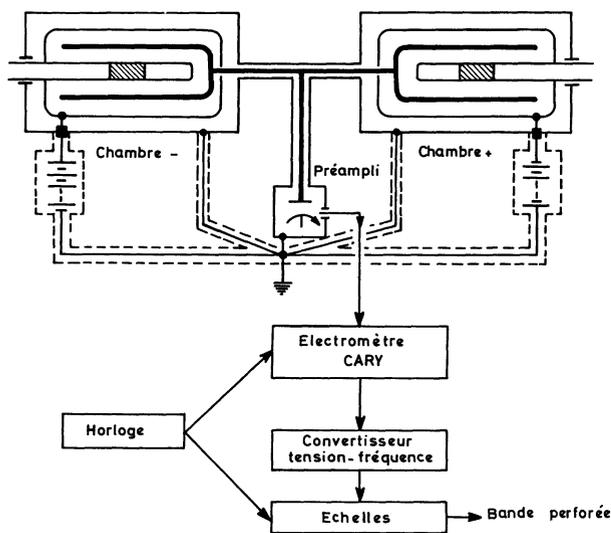


FIG. 6. — Schéma des circuits de mesure et de traitement.

mètre « CARY » sont commandés automatiquement par une horloge à quartz. Pour mesurer la tension V avec grande précision, on la transforme en fréquence par un convertisseur tension-fréquence. Les impulsions du convertisseur sont envoyées sur une échelle dont le contenu est enregistré sur une bande perforée pour être traité au ordinateur. Le processus s'établit donc de la façon suivante : au temps $t = 0$ l'horloge déclenche l'ouverture du circuit du condensateur. Au temps t_c choisi de façon à ce que la perturbation due à l'ouverture du circuit soit terminée, on mesure la tension v_1 en comptant le nombre d'impulsions reçues pendant un intervalle δt . Ce nombre est enregistré dans l'échelle E1. Après un temps d'intégration t_A on mesure la tension v_2

de la même manière que l'on a mesuré v_1 pendant l'intervalle δt_2 , le nombre d'impulsions reçues étant enregistré dans l'échelle E2. L'horloge déclenche alors successivement : l'impression sur la bande perforée à travers un codeur, le court-circuit du condensateur (qui restera ainsi pendant un temps t_1 à la suite duquel le cycle recommencera), et la remise des échelles à zéro. Quatre valeurs s'impriment sur la bande : celle de l'échelle E1, celle de l'échelle E2, le signe de la tension V et le temps total t_B .

Pour nos mesures nous avons choisi les valeurs de temps suivantes : $t_c = 10$ s, $\delta t_1 = \delta t_2 = 1$ s. Celle de t_A peut être fixée à $10, 10^2, 10^3$ ou 10^4 s. Elle est choisie en fonction de la période de l'isotope radioactif et du courant à mesurer. Plus le courant est élevé, plus le temps t_A sera court, afin de ne pas obtenir une tension trop élevée à l'entrée du convertisseur tension-fréquence (5 V). L'intégration sur un temps long diminue les erreurs de statistique. Mais il faut tenir compte de l'influence de la décroissance radioactive pendant ce temps t_A . Il faut s'assurer que dans l'intervalle $t = 0$ et $t = t_A$:

$$I_{t_A} = I_0 e^{-\lambda t_A} \approx I_0$$

donc que $e^{-\lambda t_A} \approx 1$.

Puisque par approximation $e^{-\lambda t_A} = 1$, il faut donc que $\lambda t_A \ll 1$.

1.3.3 *Conditions de mesure*. — Les faibles valeurs de $\Delta\lambda/\lambda$ (10^{-3} à 10^{-4}) impliquent des conditions expérimentales très rigoureuses pour la mesure des rapports

$$\frac{\Delta I(t)}{I(t)} \quad \text{et} \quad \frac{\Delta I(0)}{I(0)} \quad (\text{formule (1.3)}) .$$

La valeur maximum de I_0 est limitée par l'activité de la source que l'on ne veut pas trop élevée pour des raisons de protection. Pour des activités comprises entre $100 \mu\text{Ci}$ et 1 mCi , la valeur de I_0 est de l'ordre de 10^{-10} A ; celle de ΔI_0 peut être de 5×10^{-14} A environ. Au bout de 3 à 4 périodes radioactives (temps de mesure suffisant) le courant différentiel sera de l'ordre de 10^{-15} A. La première qualité de l'appareillage est donc d'avoir un bruit de fond inférieur à cette valeur. La deuxième qualité réside dans les caractéristiques des chambres d'ionisation (palier, sensibilité), le troisième point important étant la stabilité de la tension délivrée par les piles.

1.3.3.1 Bruit de fond. — Le bruit de fond mesuré par une chambre d'ionisation a trois origines fondamentales : le rayonnement cosmique et ses effets secondaires (mésons, électrons), le rayonnement ambiant provenant soit de la radioactivité naturelle (béton, acier, plomb), soit de la radioactivité artificielle de l'environnement (présence de réacteurs nucléaires, stockage de produits, etc...), et enfin la contamination de matériaux constituant la chambre. Pour diminuer les effets provenant des deux premières origines [4], les chambres sont protégées par un écran de 10 cm de

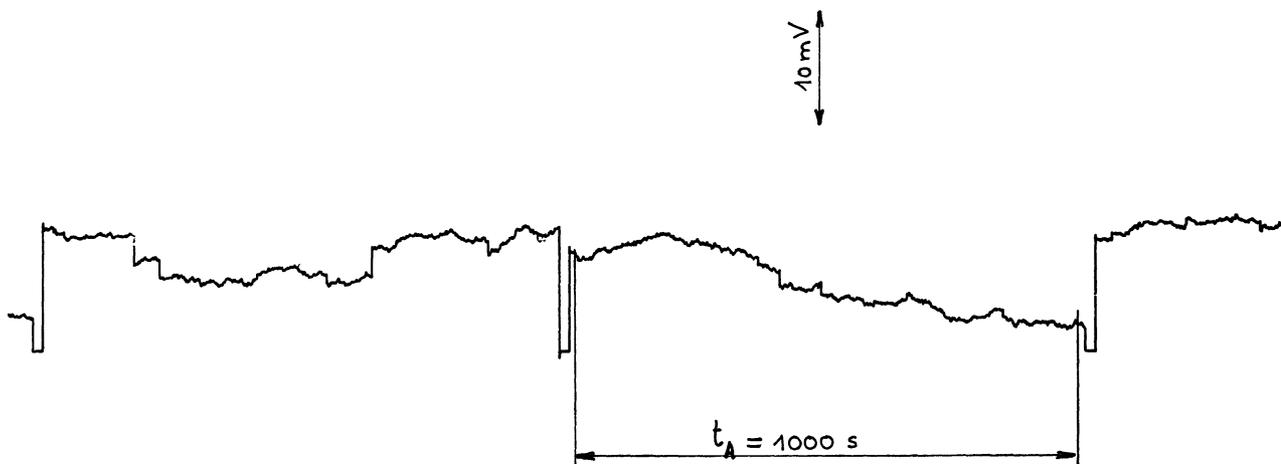


FIG. 7. — Enregistrement du bruit de fond par série d'intégrations de 1 000 s.

plomb, qui sert également de protection pour l'expérimentateur pendant la mesure. La contamination des matériaux est diminuée par le choix de ceux-ci. Parmi les métaux les plus courants, nous avons choisi le cuivre électrolytique qui a une faible activité [4]. La mesure finale étant différentielle les effets enregistrés par une chambre sont compensés par l'autre. Une autre origine du bruit de fond, très importante est le courant de fuite au niveau de l'isolant de l'électrode de mesure. Ce diélectrique doit avoir une grande résistivité et doit être blindé pour éviter une fluctuation de sa polarisation. Nous avons choisi le polystyrène qui a une résistivité de $3 \times 10^{20} \Omega \cdot \text{cm}$ [5]. Le montage de ce diélectrique nécessite évidemment des soins particuliers (propreté des surfaces, absence de poussières, etc.).

Dans les conditions énumérées ci-dessus, chaque chambre a un bruit de fond de l'ordre de $3 \times 10^{-15} \text{ A}$. Avec le montage différentiel nous avons obtenu les 4 valeurs suivantes représentant chacune 72 h de mesure ($t_A = 1000 \text{ s}$)

$$\begin{aligned} i_1 &= + (0,77 \pm 1,22) 10^{-16} \text{ A} \\ i_2 &= + (0,177 \pm 1,57) 10^{-16} \text{ A} \\ i_3 &= + (0,56 \pm 0,94) 10^{-16} \text{ A} \\ i_4 &= + (0,113 \pm 0,938) 10^{-16} \text{ A} . \end{aligned}$$

(Cette dernière valeur i_4 a été obtenue après le montage des piles au mercure.) On peut donc affirmer que le bruit de fond est de l'ordre de $\pm 10^{-16} \text{ A}$, valeur acceptable pour nos mesures de variation de période. Sur la figure 7 (enregistrement du bruit de fond par série d'intégrations de 1 000 s) on voit la perturbation créée par l'ouverture du circuit de mesure de part et d'autre du zéro (capacité court-circuitée). Ceci explique pourquoi le début de la mesure de la tension ne peut se faire qu'après le temps $t_c = 10 \text{ s}$. Cette perturbation est produite par les potentiels de contact du relais effectuant le court-circuit (contacts en or). La dernière remarque intéressante concerne les variations rapides d'apport de charge en cours d'intégration. Ceci est dû probablement au rayonnement ambiant (particules α

provenant du cuivre des chambres) (1). On en relève en moyenne $3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ pour une surface totale (pouvant contribuer à ce phénomène) de 1800 cm^2 ce qui donne donc $1,6 \times 10^{-6}$ particules $\alpha/\text{s}/\text{cm}^2$ valeur en accord avec celle trouvée par d'autres auteurs (1).

1.3.3.2 Palier des chambres. — La courbe caractéristique du courant recueilli dans une chambre d'ionisation en fonction de la tension appliquée aux électrodes présente une saturation dite *palier* (Fig. 8)

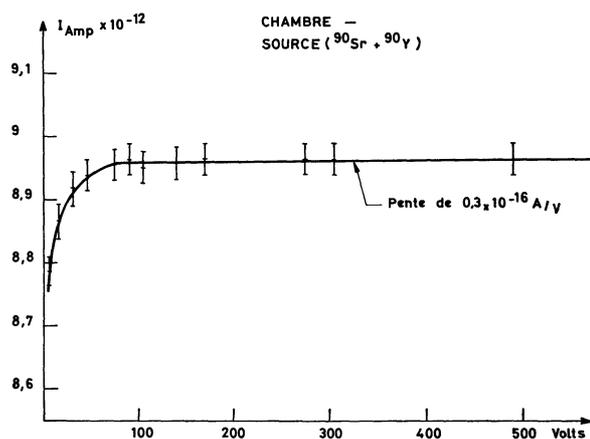


FIG. 8. — Courbe de saturation.

lorsque les phénomènes de recombinaison des ions deviennent négligeables c'est-à-dire lorsque presque tous les ions formés dans la chambre atteignent les électrodes avant de se recombiner dans le gaz. C'est dans cette région de la courbe que l'on se place pour effectuer les mesures. Nous avons donc mesuré la pente de ce palier afin de connaître la variation de courant pouvant provenir d'une variation possible de la tension. Les mesures ont été faites avec des sources de ^{137}Cs , de ^{60}Co et de $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$. Pour une même source les

(1) Bouchez, R., Communication personnelle.

deux chambres présentent la même valeur de saturation. Par contre le seuil des paliers est légèrement différent selon que l'on collecte des ions ou des électrons (tension positive ou négative). Avec une source de ^{60}Co ces seuils se situent vers 20 V pour un courant collecté de l'ordre de 10^{-14} A et vers 60 V pour un courant de 10^{-10} A. Pour ce dernier la pente est $\approx 1,5 \times 10^{-16}$ A/V. La résistance interne ρ de la chambre qui est l'inverse de la pente du palier a donc pour valeur

$$\rho = \frac{\Delta v}{\Delta i} \approx 6 \times 10^{15} \Omega.$$

Avec une source de $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ (courant collecté $\approx 10^{-11}$ A) le palier mesuré est de l'ordre de 3×10^{-17} A/V ce qui donne une résistance interne

$$\rho \approx 3 \times 10^{16} \Omega.$$

Nous avons choisi une tension de 300 V. Cette valeur se situe loin du seuil et ne pose pas de problème de claquages le long des isolants.

1.3.3.3 Zone d'égale intensité. — Etant donné la géométrie de la chambre nous devons connaître la valeur du courant collecté en fonction de la position de la source. La figure 9 donne le résultat de cette mesure.

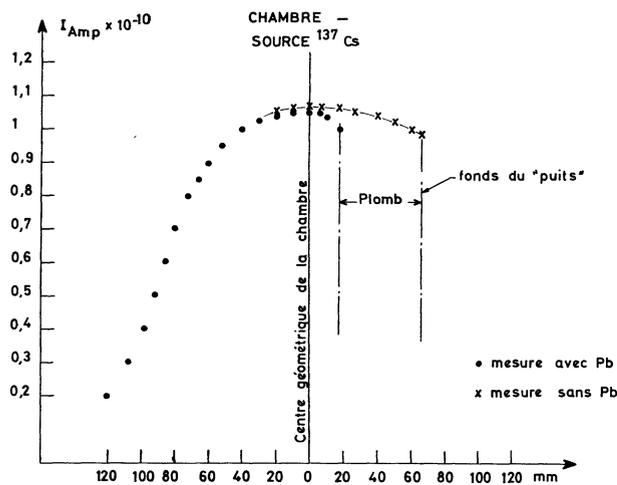


FIG. 9. — Zone d'égale intensité.

On trouve une zone d'égale intensité située près du centre géométrique de la chambre. La largeur de cette zone est d'environ 30 mm. Au fond du *puits* de chaque chambre nous avons placé un *obus* de plomb afin de protéger, du rayonnement, la ligne de mesure (Fig. 4). Ceci change l'allure de la courbe et la zone d'égale intensité se trouve réduite à 20 mm.

1.3.3.4 Protection des chambres. — Comme il a été mentionné plus haut (1.2), nous avons placé du plomb entre les chambres sur le parcours du rayonnement des sources (Fig. 4) dans le but, d'une part, de

protéger la ligne de mesure, d'autre part, de réduire l'influence d'une source sur la chambre voisine. Pour en connaître l'effet nous avons mesuré le courant collecté dans une chambre, lorsqu'une source se trouve placée dans l'autre chambre celle-ci étant débranchée du circuit de mesure. Pour une source de $100 \mu\text{Ci}$ de ^{60}Co donnant un courant de $2,5 \times 10^{-10}$ A, nous avons relevé un courant de 1×10^{-13} A lorsqu'il n'y a aucune protection. En plaçant du plomb entre les chambres (25 cm) ce courant descend à 5×10^{-14} A. Avec l'*obus* de plomb placé au fond du puits, il reste 2×10^{-14} A soit $\approx 10^{-4}$ du courant collecté par l'autre chambre.

2. Mesure de variation de période. — 2.1 DOMAINE DE MESURES. — Nous avons vu (Fig. 2) que le courant différentiel ΔI prenait une valeur nulle et passait ensuite par un minimum ou un maximum selon que ΔI_0 est positif ou négatif. L'allure de cette courbe ainsi que la valeur de $\Delta I_{(t)}$ (1.4) dépendent de $\Delta\lambda$. Pour que la mesure de cette variation soit possible il faut se situer dans une région de la courbe où le courant différentiel $\Delta I_{(t)}$ soit mesurable pendant un temps assez long, de l'ordre de 3 ou 4 périodes radioactives afin de réduire les erreurs statistiques. Le courant différentiel est soumis aux fluctuations statistiques de la décroissance des 2 sources. L'expérience a montré que la fluctuation sur la mesure est de $\pm 25\%$ pour un courant différentiel de 4×10^{-14} A et de $\pm 100\%$ pour un courant de 3×10^{-15} A. On peut considérer que cette dernière valeur est la limite minimum acceptable. La figure 10 montre un exemple de mesures possibles pour

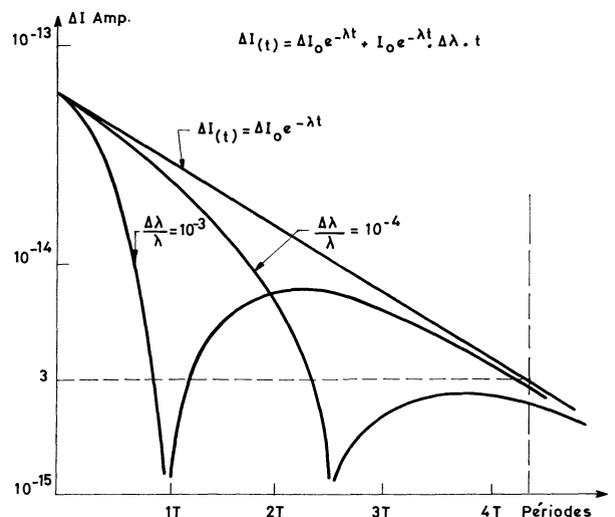


FIG. 10. — Décroissance du courant différentiel pour deux valeurs de $\Delta\lambda/\lambda$.

2 valeurs de $\Delta\lambda/\lambda$ en prenant le même courant différentiel ΔI_0 au temps $t = 0$ et le même courant I_0 . La courbe ($\Delta\lambda/\lambda = 10^{-3}$) présente 2 parties mesurables, l'une pour ΔI positif, l'autre pour ΔI négatif et une zone

située de part et d'autre du zéro ($\Delta I \approx 3 \times 10^{-15}$ A) où l'erreur de mesure est grande. Les conditions d'expérience seront différentes selon la valeur de $\Delta\lambda/\lambda$.

2.2 LIMITES DE LA MÉTHODE. — Puisque nous mesurons l'ensemble du rayonnement de la source, celle-ci ne doit pas avoir de contaminant radioactif [3]. Les contaminants éventuels quelquefois difficiles à éliminer, doivent être en quantités égales dans les deux sources. Cette restriction est la première limite de la méthode. La deuxième limite est quantitative. Un courant initial suffisamment grand ($I_0 > 10^{-10}$ A) demande une grande quantité de substance radioactive, ce qui peut poser des problèmes de protection. La 3^e limite est due à la période. En effet le réglage du courant différentiel ΔI_0 demande environ une heure ou deux, temps nécessaire à la stabilisation du système électrométrique. Dans l'état actuel des choses il semble donc difficile d'effectuer des mesures avec des nuclides dont la période est inférieure à quelques heures.

2.3 MESURE DU ZÉRO DE L'APPAREILLAGE. — Les 2 chambres ayant une sensibilité un peu différente l'une de l'autre il est indispensable de connaître le zéro de l'appareil et de s'assurer de la stabilité de ce dernier. Il suffit donc de faire des mesures répétées avec deux sources radioactives de même activité et identiques du point de vue physico-chimique. Nous avons choisi le

^{64}Cu déjà étudié au laboratoire par P. Auric et J. Vargas [6]. Sa période (12,8 h) convient très bien à cette mesure. Il est obtenu par irradiation aux neutrons ($^{63}\text{Cu}(n, \gamma) ^{64}\text{Cu}$). La durée de la mesure a été fixée à 4 périodes soit environ 48 h. La condition citée dans le paragraphe 1.1 ($\Delta\lambda t \ll 1$) est donc satisfaite puisque $t = 4 T \approx 6/\lambda$.

Deux séries de mesures ont été faites, la première avec du cuivre métallique, la seconde avec un composé : la phtalocyanine de cuivre. Ces échantillons avaient été contrôlés par spectrométrie γ . Puisqu'ils sont absolument identiques, on doit obtenir théoriquement une variation du courant différentiel telle que :

$$\Delta I_{(t)} = \Delta I_{(0)} e^{-\lambda t}.$$

Le deuxième terme (1.1) en $\Delta\lambda$ doit être nul. S'il ne l'est pas nous avons donc une variation de période apparente qui constitue le zéro de l'appareil et que nous appelons $(\Delta\lambda/\lambda)_0$.

Pour nos mesures le courant nominal $I_{(0)}$ était compris entre 1×10^{-10} A et 2×10^{-10} A, le rapport $\Delta I_0/I_0$ étant voisin de 5×10^{-4} . Cette dernière valeur est assez délicate à obtenir dans les premières heures de la mesure car il existe alors des fluctuations importantes du courant différentiel provenant d'instabilités instrumentales. Ce phénomène aléatoire n'a pas encore été bien compris. L'enregistrement du courant

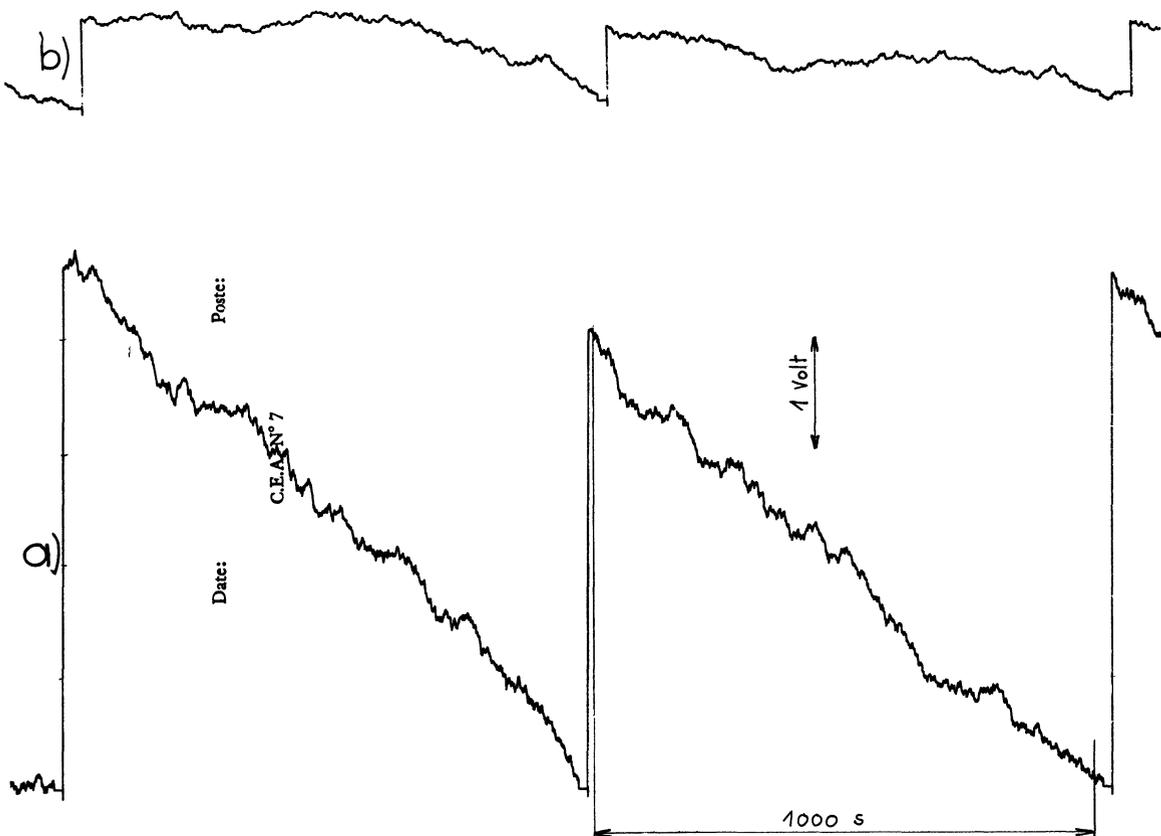


FIG. 11. — Enregistrement du courant différentiel : a) début de mesure $\Delta I \approx 0,8 \times 10^{-13}$ A ; b) fin de mesure $\Delta I \approx 0,12 \times 10^{-13}$ A.

est donc nécessaire tout au long de la mesure afin de déterminer le moment à partir duquel la stabilisation est obtenue. Ce temps peut varier de 30 min à plusieurs heures. Le temps d'intégration du courant t_A est de 10^3 s. Les figures 11a et 11b montrent l'enregistrement du courant au début et à la fin d'une mesure. Le programme de calcul comporte la possibilité d'éliminer les premiers points inutilisables. Il effectue pour chaque point le calcul du rapport $\Delta I_{(t)}/I_{(t)}$. On fait ensuite la moyenne de ces rapports sur 5 points. L'analyse de la mesure se fait par la méthode des moindres carrés afin de trouver la droite théorique qui passe le mieux entre ces points moyens. De la pente de cette droite on en déduit la valeur de $\Delta\lambda/\lambda$ (1.3).

Les résultats ont été les suivants :

N°	Source	$I_{(0)} \cdot 10^{-10}$ A	$\left(\frac{\Delta\lambda}{\lambda}\right)_0 \times 10^{-4}$
1	Cu mét.	1,70	+ 0,45 ± 0,32
2	Cu mét.	1,50	+ 0,58 ± 0,42
3	Cu mét.	2,14	+ 0,45 ± 0,10
4	Pc Cu	2,20	+ 0,58 ± 0,19
5	Pc Cu	1,55	+ 0,40 ± 0,32
6	Pc Cu	2,25	+ 0,34 ± 0,21 (Fig. 12)
7	Pc Cu	1,05	+ 0,43 ± 0,41
8	Pc Cu	1,85	+ 0,23 ± 0,46
9	Pc Cu	1,80	+ 0,45 ± 0,25

Ces valeurs sont toutes du même ordre de grandeur et montrent que l'appareillage est fidèle. Le signe positif obtenu à chaque fois est une caractéristique propre de l'appareil. La valeur moyenne pondérée est de $+ (0,43 \pm 0,12) 10^{-4}$, et constitue une limite pour les mesures.

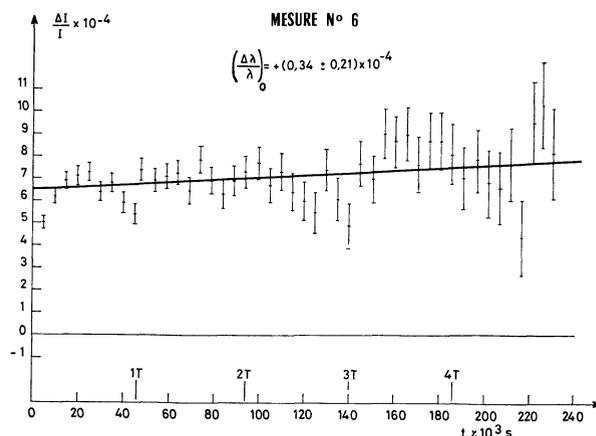


FIG. 12. — Mesure du zéro de l'appareillage.

2.4 MESURE DE PÉRIODE. — On peut également mesurer une période radioactive en n'utilisant qu'une seule chambre, la seconde étant branchée à la masse. La décroissance est calculée selon la méthode des moindres carrés.

3. Conclusion. — Des mesures sont actuellement en cours avec des échantillons de Cuivre de compositions chimiques différentes. Il doit être possible de mesurer un effet de $\Delta\lambda/\lambda = 1 \times 10^{-4}$. Nous tenterons également d'augmenter la précision, d'une part en améliorant la pureté du gaz de remplissage (passage de l'argon sur du calcium chauffé), d'autre part en stabilisant la température ambiante du local où se trouve l'appareillage.

Remerciements. — Nous tenons à remercier M. le Pr. Bouchez pour ses conseils et MM. R. Bertholet, A. Mougin et P. Perrin pour leur aide précieuse qui nous a permis de résoudre bien des difficultés.

Bibliographie

- [1] SEGRE, E., *Phys. Rev.* **71** (1947) 274.
 [2] BOUCHEZ, R. *et al.*, *J. Physique Rad.* **8** (1947) 336.
 [3] BAINDBRIDGE, K. T. *et al.*, *Phys. Rev.* **90** (1953) 430.
 [4] GRINDERG, B. et LE GALLIC, Y., *B. I. S. T. C. E. A.* **65** (1962).
 [5] DUPUY, G., *Mesures en radioactivité*, Techniques générales du lab. de Physique, J. Surugue p. 197 (1962).
 [6] AURIC, P. et VARGAS, J., *Chem. Phys. Lett.* **15** (1972) 366.
 [7] ROULET, R., Thèse Université Grenoble (Déc. 1973).