CHAPITRE VIII

ÉMANATION

§ 1. — *Émanation dans l'air et dans les espaces fermés.*

Dans les chapitres précédents, on n'a traité que du rayonnement des corps radioactifs, c'est-à-dire d'un mode particulier d'énergie, qui, en dehors d'un champ magnétique ou électrique, se transmet rectilignement dans l'espace et traverse les corps solides, le verre ou le mica, les métaux ou d'autres corps opaques pour la lumière ordinaire.

A côté de ce phénomène, il en est un autre non moins important, qui paraît intimement lié à la radioactivité, s'il n'en est pas le phénomène primordial. Le thorium et le radium émettent de l'énergie sous une forme particulière; l'activité qui en résulte se propage à la manière d'une vapeur active, ou d'une sorte d'*émanation* arrêtée par toute enveloppe qui arrête les gaz, quelque mince que soit cette enveloppe. Cette émanation se fixe sur les corps pour disparaître ensuite, rendant ceux-ci temporairement radioactifs quand ils ne sont plus sous l'influence

de la source active ; l'activité disparaît même lorsque les corps activés sont maintenus dans une enceinte fermée. Il n'est pas démontré que le gaz ne serve pas seulement de support à la forme particulière d'énergie qui constitue l'émanation.

Ces deux propriétés fondamentales ont été découvertes simultanément par M. et M^{me} Curie et par M. Rutherford.

Par ordre de date, la première publication a été faite par M. et M^{me} Curie le 6 novembre 1899 (1). Les auteurs ont montré que tous les corps solides exposés devant un sel de radium deviennent temporairement radioactifs. Cette radioactivité *induite* augmente avec le temps de l'exposition jusqu'à une limite qui est la même pour tous les corps activés dans les mêmes conditions. Ceux-ci, éloignés de la source, à l'air libre, perdent leur activité, rapidement d'abord, puis ensuite, suivant une loi asymptotique.

Peu de temps après cette publication, parut, dans le fascicule du 1^{er} janvier 1900 du *Philosophical Magazine* (2), un mémoire de M. Rutherford, daté de Montreal, septembre 1899, et intitulé : « *Sur une Substance radioactive émise par les composés du thorium.* »

E'auteur se reporte d'abord à l'observation de M. Schmidt sur l'activité du thorium, puis à un travail de M. Owens (3) qui, après avoir reconnu l'existence de deux types de radiations, les unes absorbables, les autres

(1) *Comptes rendus de l'Académie des Sciences*, t. CXXIX, p. 714.

(2) *Phil. Mag.*, t. 49, p. 1.

(3) *Phil. Mag.*, t. 48, p. 360 (Radiation du thorium).

pénétrantes, avait observé qu'un courant d'air pouvait réduire l'activité du thorium à 0,33 de la valeur qu'elle possède dans l'air calme. (Je rappellerai à cette occasion que, deux ans auparavant, j'avais obtenu, comme on l'a vu plus haut, une réduction identique, 0,327, en entraînant l'air ionisé par l'uranium, et que, plus tard, M^{me} Curie, en retrouvant l'activité du thorium, avait signalé la grande irrégularité des observations faites avec ce corps à l'air libre.)

M. Rutherford explique cette variabilité par l'existence d'une *émanation* entraînée par l'air, se comportant comme un gaz actif, traversant les substances poreuses, des feuilles minces de métal battu, barbotant, sans perdre son activité, dans l'eau à diverses températures, dans l'acide sulfurique étendu ou concentré, mais ne traversant pas une feuille de mica de 0^{mm},06 d'épaisseur.

Cette émanation diffère d'un gaz en ce qu'elle est indépendante de la pression, et qu'elle ne donne pas de tension appréciable dans le vide. Elle ne donne pas non plus de spectre caractéristique avec l'étincelle électrique.

A la fin de ce premier mémoire, M. Rutherford annonce qu'il a observé que les corps qui reçoivent l'émanation deviennent eux-mêmes actifs.

Ainsi les auteurs arrivent chacun avec une découverte: M. et M^{me} Curie découvrent la radioactivité induite et voient de suite que le phénomène est temporaire et indépendant de la nature du corps activé; M. Rutherford découvre l'émanation qu'il ne va pas tarder à caractériser comme la cause de la radioactivité induite.

En effet, au moment où M. et M^{me} Curie publiaient leurs premières observations, M. Rutherford complétait

son premier travail par des observations très intéressantes, exposées dans un second mémoire assez étendu daté du 22 novembre 1899 et publié dans le fascicule de février 1900 du *Philosophical Magazine* (1), sous le titre « *Radioactivité produite par l'action des composés du thorium* ». C'est l'étude d'un phénomène produit par le thorium, identique à celui que M. et M^{me} Curie avaient observé avec le radium; mais M. Rutherford trouve un phénomène nouveau, c'est que l'émanation se fixe sur les corps électrisés négativement, et que l'on peut par ce moyen concentrer sur un fil la radioactivité induite. Voici, du reste, les conclusions du Mémoire de M. Rutherford :

Tous les composés du thorium qui ont été examinés produisent la radioactivité. Lorsque les conducteurs sont chargés, c'est le conducteur négatif qui devient radioactif. On peut concentrer ainsi l'action sur un fil fin. L'oxyde est le plus actif des composés du thorium; il perd son pouvoir s'il est chauffé pendant plusieurs heures à une température élevée.

Le pouvoir inducteur est lié à une « *émanation* ». La radiation excitée est homogène et plus pénétrante que celle du thorium et de l'uranium. Elle est confinée à la surface, indépendante de la substance activée et de la nature de la surface. L'activité décroît suivant une progression géométrique et diminue de moitié en onze heures environ.

L'induction croît pendant l'excitation d'abord proportionnellement au temps, puis plus lentement jusqu'à un

(1) *Phil. Mag.*, fév. 1900.

maximum. L'activité produite au bout d'un temps donné d'exposition varie avec la différence de potentiel et devient constante pour une grande force électro-motrice.

Elle est indépendante de la pression, excepté pour de basses pressions, et varie peu dans l'air, l'hydrogène ou l'acide carbonique.

On n'observe pas d'augmentation de poids du corps activé. La chaleur, l'acide nitrique froid ou chaud, l'eau n'enlèvent pas toute la radioactivité. L'acide chlorhydrique ou sulfurique la fait disparaître. Le résidu de la solution évaporée est actif.

M. Rutherford en conclut que l'émanation est de la matière qui se fixe sur les corps, et que cette matière est chargée positivement par son passage dans l'air. Une plaque activée n'a pu exciter la radioactivité sur une autre plaque approchée de la première.

Nous ne discuterons pas encore l'exactitude de ces diverses conclusions; celles-ci ont été rapportées pour montrer à quel point les savants français et anglais avaient amené la question.

Les recherches sur ce phénomène subirent une courte interruption. On verra plus loin l'exposé d'autres expériences qui peuvent être rattachées au même ordre de phénomènes. A cette époque, l'action, nouvellement découverte, d'un champ magnétique sur le rayonnement attira momentanément l'attention sur d'autres points qui ont été traités plus haut. Pendant que je m'attachais presque exclusivement à l'analyse magnétique du rayonnement, M. Curie, après avoir réalisé la belle expérience par laquelle il démontra la charge négative des rayons dé-

viables β , reprit le premier l'étude de la radioactivité induite dans la voie qu'il avait ouverte.

Dans une première note (1), MM. P. Curie et Debierne, après avoir rappelé les observations de MM. Owens et Rutherford sur le thorium, ainsi qu'une reproduction de ces expériences par M. Dorn, à Halle, appellent de nouveau l'attention sur le fait que tout au début de leurs recherches M. et M^{me} Curie avaient préparé un gaz radioactif, qui, dans un tube scellé, conserva son activité pendant un mois, puis celle-ci disparut. Ils montrent ensuite que si l'on opère en vase clos la radioactivité induite est beaucoup plus intense qu'à l'air libre, et qu'elle peut atteindre 8000 fois celle de l'uranium. Le rayonnement n'intervient pas dans le phénomène de l'activation; dans une même enceinte les corps s'activent à l'abri du rayonnement. Si, dans l'enceinte, la matière active est elle-même enfermée dans une ampoule scellée, les corps ne s'activent pas. Il est nécessaire qu'il y ait entre la source et les corps qui s'activent une communication continue par des gaz; la transmission peut se faire par des tubes capillaires très longs.

Les corps activés perdent leur activité en un jour à l'air libre, et plus lentement dans une enceinte fermée.

Les sels de polonium n'ont pas communiqué de radioactivité induite.

Les auteurs insistent sur l'importance du rôle que ce

(1) *Comptes rendus de l'Académie des Sciences*, t. CXXXII, p. 548 (4 mars 1901).

phénomène paraît jouer dans la manifestation de la radioactivité.

Peu après (1), ils précisent le rôle des gaz qui semblent servir seulement de support à la cause qui produit la radioactivité induite. Dans une enceinte fermée contenant un sel de radium, les corps solides prennent tous une activité limite qui est la même, quelle que soit la matière activée, quels que soient les gaz et leur pression, la même encore si le vide a été fait dans l'enceinte. Cependant l'activité induite disparaît, ou ne se produit pas, si l'on entretient constamment le vide avec une pompe à mercure en enlevant les gaz au fur et à mesure qu'ils se dégagent des matières enfermées dans l'enceinte.

Les gaz occlus dans les préparations radioactives de radium, et extraits avec la pompe en les chauffant dans le vide, sont fortement radioactifs, et rayonnent à travers le verre. Les gaz ainsi activés rendent le verre lumineux, et le noircissent à la longue. Dans un tube scellé, leur activité disparaît très lentement.

L'eau extraite par le même procédé du chlorure de baryum radifère hydraté est radioactive; elle perd sa radioactivité à l'air, et la conserve plus longtemps dans un tube scellé. On peut obtenir de l'eau radioactive par trois procédés (2): 1° en extrayant l'eau contenue dans les sels actifs; 2° en plaçant de l'eau et un sel de radium, solide ou dissous, dans une même enceinte fermée et dans

(1) *Comptes rendus de l'Académie des Sciences*, t. CXXXII, p. 768 (25 mars 1901).

(2) *Ibid.*, t. CXXXIII, p. 276 (29 juillet 1901).

deux vases séparés; 3° en plongeant dans l'eau une ampoule fermée en celluloïd contenant une solution d'un sel de radium. Le celluloïd se comporte comme une membrane semi perméable; il ne passe dans l'eau extérieure aucune trace du sel de radium, et seule la cause de l'activation de l'eau se diffuse à travers la membrane.

Dans l'air, les dissolutions des sels de radium subissent une diminution observée déjà par M. Giesel(1), mais elles reprennent leur activité si on les enferme ensuite dans des tubes scellés. Les sels à l'état solide ne perdent pas dans l'air une partie de leur activité comme les dissolutions. Les auteurs concluent de ces faits qu'il y a deux modes de dissipation de l'énergie, par rayonnement et par conduction, et que, dans les diverses conditions, il s'établit un régime entre ces deux modes de dissipation de l'énergie et l'apport d'énergie fourni par le phénomène atomique qui est la cause de la radioactivité.

Avec les dissolutions la perte par conduction est considérable et les effets induits sont beaucoup plus intenses, (20 à 40 fois par exemple). Les sels recueillis des dissolutions sont d'autant moins actifs que celles-ci ont été plus longtemps exposées à l'air, mais les sels solides reprennent tous peu à peu leur activité primitive. Dans ceux-ci l'énergie radioactive se dissipe surtout par rayonnement.

Un sel radifère qui a été dissous et vient d'être séché possède le même pouvoir pour provoquer l'activité induite, qu'un échantillon qui, après avoir été préparé à l'état solide, est resté dans cet état un temps suffisant

(1) GIESEL, *Ann. der Physik und Chemie*, t. LXIX, p. 91, 1899.

pour atteindre la radioactivité limite; l'activité des deux produits peut cependant être très différente.

Quand on chauffe un composé radifère, ce composé dégage de l'émanation et perd de l'activité. Ce fait a été observé par M. Rutheford et par M. et M^{me} Curie. La diminution d'activité ne persiste pas, et l'activité se régénère spontanément. M^{me} Curie a reconnu que l'activité limite atteinte par cette régénération est plus élevée que l'activité du sel avant la chauffe, du moins pour le chlorure. L'effet de la chauffe ne persiste pas quand on dissout la substance radifère chauffée.

MM. Curie et Debierne (1) ont encore montré que la radioactivité induite dans une enceinte fermée, indépendante de la nature du gaz, de sa pression, et de la nature des corps solides activés, variait cependant avec l'espace gazeux existant devant ces corps, et semblait proportionnelle à cet espace. Ils ont également reconnu que le rayonnement des corps activés par le radium contenait, comme le rayonnement du radium, des rayons déviables, et des rayons non déviables par un champ magnétique.

Signalons encore une expérience brillante qui consiste à placer dans deux ballons séparés, réunis par un tube scellé, d'un côté une solution d'un sel de radium et de l'autre une couche de sulfure de zinc phosphorescent. Celui-ci ne tarde pas à s'induire, et, sous l'influence de sa propre radioactivité, il devient très lumineux. Il resterait ainsi indéfiniment lumineux s'il ne subissait pas une dé-

(1) *Comptes rendus de l'Académie des Sciences*, t. CXXXIII, p. 931 (2 décembre 1901).

composition chimique qui, au bout de quelques jours, fait disparaître la phosphorescence.

Enfin, par une série de mesures publiées récemment (1), M. Curie a complété les faits que nous venons de résumer.

Il y a deux phénomènes distincts à considérer dans la dissipation de l'activité des corps activés: d'une part, la déperdition de l'activité des gaz actifs qui transmettent la radioactivité induite ou servent de support à l'émanation, activité qui diminue de moitié en quatre jours, et, d'autre part, la déperdition de l'activité des corps solides activés dans une enceinte fermée, et transportés à l'air libre; leur activité diminue de moitié en vingt-huit minutes.

Pour étudier le premier phénomène on dispose une enceinte de verre, tube ou ballon, en communication par un tube de verre avec un flacon contenant un sel de radium; au bout d'un temps variable on sépare l'enceinte du flacon en fermant à la lampe le tube de communication, et l'on étudie le rayonnement des parois. Celui-ci tombe de moitié en quatre jours. Dans ce cas, c'est l'air radioactif intérieur qui entretient l'activité des parois, car si l'on ouvre l'enceinte activée et si l'on chasse l'air qu'elle contient, les parois de l'enceinte se désactivent à partir de ce moment suivant la loi plus rapide commune aux solides placés à l'air libre.

La loi de désactivation des gaz actifs renfermés dans une enceinte close est représentée par la formule $I = I_0 e^{-\frac{t}{\theta}}$ dans laquelle le temps $\theta = 4,97 \cdot 10^5$ secondes.

(1) *Comptes rendus de l'Académie des Sciences*, t. CXXXV, p. 857 (17 nov. 1902), t. CXXXVI, p. 223 (26 février 1903) et p. 364 (9 fév. 1903).

Ce temps θ est le même si l'on emploie, pour l'activation, du chlorure de radium solide ou des solutions d'un sel de radium, quelles que soient leur activité, les dimensions et les formes des enceintes activées, les épaisseurs ou la nature des parois (verre, cuivre, aluminium); il est indépendant des dimensions des tubes qui ont servi à conduire l'activation, du temps de cette activation, de la pression et de la nature des gaz activés (air, hydrogène, acide carbonique), et de la température qui a varié entre celle de l'air liquide et $+400^{\circ}$.

Cette constante de temps qui correspond à une diminution de moitié, de 4 jours, est une constante caractéristique de la forme particulière sous laquelle l'énergie est emmagasinée dans les gaz actifs.

La loi de désactivation des corps retirés de l'enceinte activante et transportés à l'air libre est un peu plus complexe. Elle est la même quelle que soit la durée du séjour dans l'enceinte, si cette durée dépasse vingt-quatre heures. En général, la nature des corps n'intervient pas. La formule qui exprime l'intensité du rayonnement à un instant quelconque est alors

$$I = I_0 \left[a e^{-\frac{t}{\theta_1}} - (a-1) e^{-\frac{t}{\theta_2}} \right],$$

avec

$$\theta_1 = 2400 \text{ sec.}, \quad \theta_2 = 1860 \text{ sec.}, \quad \text{et} \quad a = 4,20.$$

Au bout de quelques heures, le terme en θ_1 est prépondérant, et M. Curie considère cette constante θ_1 , comme caractéristique de la forme sous laquelle l'énergie est emmagasinée à la surface des corps solides. La constante θ_1 , cor-

respond à une diminution de moitié en vingt-huit minutes.

Lorsque la durée de l'activation est inférieure à vingt-quatre heures les courbes qui représentent les logarithmes des intensités en fonction du temps, manifestent des variations pendant les premières heures de la désactivation, présentant une chute brusque, un minimum, puis un maximum, et enfin une loi régulière commune. La grandeur de ces variations du début change avec la durée de l'activation, et est surtout notable si l'activation n'a duré que quelques secondes ou quelques minutes.

Les corps activés retirés de l'enceinte activante ont la propriété d'émettre eux-mêmes, pendant quelque temps, une émanation capable d'activer d'autres corps placés dans leur voisinage. Cette propriété étudiée avec des lames métalliques activées se perd assez rapidement et ne se manifeste plus au bout d'une ou deux heures, alors que les lames sont encore fortement radioactives. M. Curie fait observer qu'il faut peut-être rechercher, dans la présence et la transformation d'une certaine quantité d'émanation, la cause des singularités des courbes au début de la désactivation.

La loi d'activation d'un corps solide est la même que celle de la désactivation.

La désactivation ne dépend pas en général des corps activés ; cependant, pour certains corps qui ont subi une activation longue, la loi exponentielle finale ne s'applique plus. Le phénomène est manifeste avec le celluloid et le caoutchouc ; il est faible avec la paraffine et la cire, et se fait sentir avec l'alun et le plomb. L'intensité décroît moins vite que ne l'indique la loi ci-dessus. Le cellu-

loïd a, de plus, la propriété d'émettre de l'émanation pendant plusieurs jours avant de se désactiver complètement.

Enfin M. Curie a montré récemment (1) que l'émanation se diffuse dans l'air avec la même vitesse qu'un gaz dans un autre gaz. Si l'on met en communication deux réservoirs contenant, l'un de l'air actif, l'autre de l'air inactif, l'émanation se diffuse et se partage entre les deux réservoirs proportionnellement à leurs volumes. Si l'un des réservoirs est échauffé ou refroidi, l'émanation se partage entre les réservoirs dans les mêmes proportions que les gaz dans les mêmes conditions.

Ces résultats remarquables sont, comme on le voit, établis avec la plus grande netteté, indépendamment de toute théorie.

De son côté, M. Rutherford reprit en 1902 l'étude de la radioactivité. Dans la série des mémoires qui parurent à de courts intervalles (2), les premiers montrent que l'auteur n'est pas au courant des recherches récentes et en particulier de celles de M. Curie; mais dans les mémoires suivants cette lacune est comblée, et plusieurs conclusions erronées sont rectifiées. La plus grande partie des expériences est relative à l'émanation et à la radiation du thorium, ainsi qu'à des phénomènes dont nous parlerons plus loin, et à l'occasion desquels nous analyserons ce travail. On doit seulement mentionner ici : 1^o l'observation

(1) *Comptes rendus de l'Académie des Sciences*, t. CXXXVI, p. 1314 (2 juin 1903).

(2) *Rutherford et Miss. H. T. Brooks. Phil. Mag.*, 6^e série, t. IV, p. 1 (juin 1902), cf. *Rutherford et E. Grier, ibid.*, p. 315 (sept. 1902).

des irrégularités du début dans la déperdition de la radio-activité induite par le radium, surtout si l'activation a été de courte durée; 2° la constatation que, dans le cas particulier de ces expériences, la pénétrabilité des radiations excitées, soit par le thorium, soit par le radium, était la même, et plus grande que celle du rayonnement (déviabilité total) des matières qui avaient produit l'activité induite; 3° le fait que les corps excités par l'émanation du thorium émettent eux-mêmes une émanation en plus des rayons déviables et non déviables. Une très longue étude (1) sur la cause et la nature de la radioactivité, et relative surtout au thorium, sera analysée plus loin; nous citerons encore un travail (2) sur la radioactivité « excitée » (induite) et son mode de transmission, dont les idées théoriques, qui seront discutées ci-après, ont eu le mérite de faire prévoir à l'auteur que les rayons α , réputés non déviables, devaient être chargés positivement et être analogues aux Kanalstrahlen de M. Goldstein. La démonstration expérimentale de ce fait par M. Rutherford, ainsi que mes expériences sur ce point, ont été développées plus haut (p. 186).

On ne peut terminer ce résumé sans citer un travail très important de MM. Elster et Geitel (3), sur la radio-activité induite par l'air atmosphérique.

Après avoir constaté l'existence d'une conductibilité normale de l'air atmosphérique, les auteurs, s'inspirant d'une expérience de M. Rutherford, ont constaté qu'un

(1) Rutherford et F. Soddy, *Phil. Mag.*, 6^e série, t. IV, p. 370 et 569 (sept., nov. 1902).

(2) *Phil. Mag.*, 6^e série, t. V, p. 95 (janv. 1903).

(3) *Physikalische Zeitschrift*, t. II, p. 390, 1901; — t. III, p. 76, 1901.

fil de cuivre tendu à l'air libre, et maintenu pendant plusieurs heures à un potentiel négatif élevé, devient superficiellement radioactif. On recueille cette activité en frottant la surface du fil avec un petit morceau de peau ou de papier imbibé d'ammoniaque ou d'une solution qui attaque le métal, et dissout la couche superficielle. Ces morceaux deviennent radioactifs; en les brûlant on peut concentrer l'activité sous un petit volume dans le résidu de cendres.

Les lois de l'activation dans ces conditions semblent conformes à celles de l'activité induite; les grandes masses d'air et surtout les masses d'air des enceintes fermées sont fortement conductrices et provoquent une activité plus forte que l'air libre. L'air des caves et des grottes fermées depuis quelque temps est particulièrement actif.

Cette activation spontanée des grandes masses d'air enfermées, à l'abri de tout corps radioactif, rapproche ce phénomène de celui de l'induction par l'émanation; les auteurs ont reconnu plus tard (1) que l'air extrait du sol était radioactif et doué des propriétés de l'émanation du thorium et du radium. L'existence d'une émanation provenant du sol terrestre explique les phénomènes observés par MM. Elster et Geitel dans leur remarquable travail.

Je n'ai pas contribué personnellement à l'observation des faits particuliers qui viennent d'être exposés dans ce paragraphe. Il m'a paru cependant nécessaire de les résumer ici, parce qu'ils constituent l'un des phénomènes fondamentaux de la radioactivité et se lient intimement à ceux dont l'étude fait l'objet de ce mémoire.

(1) *Physikalische Zeitschrift*, t. III, p. 583 (sept. 1902).