

§ 2. — *Activation de diverses substances précipitées dans les dissolutions de sels radioactifs.*

Nous venons de voir que l'activité induite se transmet par l'intermédiaire des gaz : il existe un mode d'activation beaucoup plus énergique qui consiste à mettre les corps en contact intime à l'état de dissolution.

Dès le début de leurs recherches, M. et M^{me} Curie reconnurent que les substances inactives que l'on introduit dans une dissolution renfermant un sel de radium très actif prennent une forte radioactivité induite, et la conservent pendant quelque temps après avoir été séparées du radium. Ce fait a été observé également par M. Giesel (1) qui a ainsi activé du bismuth. La difficulté de ces expériences consiste dans les soins extrêmes qu'il faut prendre pour éliminer le radium.

Dans ses recherches sur l'actinium (2), M. Debierne a reconnu des effets du même ordre, et, en particulier, il a activé des sels de baryum en les maintenant en dissolution avec des sels d'actinium.

A la même époque, M. Bela v. Lengyel (3), ayant préparé un mélange de nitrate d'urane et de nitrate de baryum fondus à la haute température de l'arc électrique, en retira un baryum actif, et M. Giesel fit voir que l'uranium ainsi traité diminuait d'activité.

(1) *Soc. de Phys.*, de Berlin (janvier 1900).

(2) *Comptes rendus de l'Académie des Sciences*, t. CXXX, p. 906 (2 avril 1900) et t. CXXXI, p. 333 (30 juillet 1900).

(3) *Berichte der deutschen chemischen Gesellschaft*, n° 8, p. 1237 (mai 1900).

En même temps, Sir W. Crookes (1) publiait une étude sur la radioactivité de l'uranium, l'affaiblissement des sels d'urane et la préparation d'une matière active; nous y reviendrons ci-après.

Ces diverses expériences pouvaient faire douter de la radioactivité propre de l'uranium, et l'on pouvait supposer que les traitements divers dont il a été question entraînaient des traces d'une matière très active, à laquelle les corps auraient dû leur radioactivité. Un tel entraînement existe en fait dans la précipitation du sulfate de baryum au sein d'une solution d'un sel d'actinium.

De mon côté (2), en mélangeant des solutions de chlorure d'uranyle et de chlorure de baryum, et en précipitant la baryte à l'état de sulfate, j'obtins divers précipités actifs et des sels d'urane affaiblis; mais avant d'exposer ce travail, ainsi que celui de Sir W. Crookes, nous donnerons quelques détails sur les résultats très importants obtenus par M. Debierne (3).

Nous venons de rappeler qu'en faisant séjourner dans une même dissolution du chlorure de baryum avec un sel d'actinium très actif, on obtenait du chlorure de baryum actif. On a des effets bien plus intenses en précipitant du sulfate de baryte dans une solution contenant de l'actinium (toujours associé au thorium). Le sel actif est entraîné dans la précipitation; les produits sont ramenés à l'état de chlorure et l'actinium est séparé en le précipitant par

(1) *Proc. Roy. Soc.*, vol. 60, p. 409 (mai 1900).

(2) *Comptes rendus de l'Académie des Sciences*, t. CXXX, p. 1583 (11 juin 1900) et t. CXXXI, p. 137 (16 juillet 1900).

(3) *Ibid. id.*, p. 333 (30 juillet 1900).

l'ammoniaque à l'état d'hydrate. Si le temps du séjour du baryum avec le sel actif a été suffisant, on peut obtenir du chlorure de baryum dont l'activité est plusieurs centaines de fois plus grande que celle de l'actinium.

Le baryum ainsi activé possède une partie des propriétés du radium.

Il reste actif après diverses transformations chimiques; son activité est donc une propriété atomique.

Le rayonnement émis ionise les gaz, provoque la phosphorescence des platinocyanures, impressionne les plaques photographiques; une partie est déviée dans un champ magnétique; et le chlorure anhydre est spontanément lumineux.

Le chlorure de baryum activé se fractionne comme le chlorure de baryum radifère. Lorsqu'on fait cristalliser ce sel dans l'eau ou dans une solution d'acide chlorhydrique, le chlorure qui cristallise est plus actif que celui qui reste en dissolution. Cette propriété a permis d'obtenir par des cristallisations fractionnées des produits mille fois plus actifs que l'uranium ordinaire. On a donc ainsi créé un produit qui ressemble au radium, mais qui n'en possède pas le spectre caractéristique; en outre, son activité diminue avec le temps. Nous verrons plus loin un phénomène semblable avec le sulfate de baryte activé par l'uranium.

La propriété qu'ont les corps activés de pouvoir être concentrés par fractionnement, et de se comporter comme des éléments chimiques distincts des corps non activés, doit inspirer la plus grande réserve dans les conclusions que l'on peut formuler relativement à la présence d'éléments nouveaux dans les préparations radioactives.

Il conviendra de discuter plus loin si ce n'est pas seulement une apparence et si ce qui paraît être une concentration de molécules actives n'est pas seulement une concentration progressive des propriétés de l'émanation sur certaines molécules matérielles. Bien des phénomènes s'éclaircissent à la faveur de cette hypothèse.

On a cité plus haut un travail intéressant de Sir W. Crookes (1) sur la radioactivité de l'uranium. Après avoir répété et varié diverses expériences relatives à l'action de l'uranium sur une plaque photographique, l'auteur fut conduit à purifier des cristaux de nitrate d'urane en les dissolvant dans l'éther; une partie se sépare sous forme de dissolution aqueuse. En soumettant à des cristallisations fractionnées les cristaux retirés de ces dissolutions, il observa: d'une part, que les cristaux plusieurs fois redissous dans de l'eau renouvelée étaient affaiblis au point de devenir inactifs, et, d'autre part, qu'à l'autre extrémité du fractionnement les cristaux recueillis ou les précipités des matières étrangères formés dans les eaux mères étaient très actifs. On conçoit très bien que ces expériences, faites avec l'idée que les corps faiblement actifs devaient leurs propriétés à des traces de matières excessivement actives, aient conduit Sir W. Crookes à les expliquer par l'existence d'une substance nouvelle qu'il a appelée Ur.X.

Mais en les comparant aux expériences de M. Debierne ainsi qu'à celles que j'ai eu l'occasion de réaliser à la même époque, et dont il va être question, on reconnaîtra que les produits actifs ne sont autres que des produits

(1) *Proc. Roy. Soc.*, vol. 60, p. 409 (mai 1900).

activés, et que l'affaiblissement des cristaux retirés de certaines solutions est un phénomène identique à celui qui résulte de la dissipation de l'émanation par les dissolutions.

La matière Ur.X est peut-être une matière distincte, mais il résulte des expériences que j'ai réalisées qu'elle n'est autre que l'émanation de l'uranium.

Au moment où j'ai eu connaissance des expériences de M. Bela v. Lengyel, je me suis proposé de rechercher si l'uranium avait bien une activité qui lui était propre, et, dans l'hypothèse qui était alors suggérée par la communication de M. Debierne sur l'actinium, on pouvait penser entraîner les traces du corps actif par des précipités de sulfate de baryte. En prenant du chlorure d'uranyle que l'on dissout dans l'eau, et en ajoutant à la solution un peu de chlorure de baryum, puis en précipitant le baryum à l'état de sulfate, on obtient un sulfate de baryum actif.

Dans une première expérience (1), une dissolution de quelques grammes de chlorure d'uranyle du commerce a été traitée ainsi deux fois de suite. Le chlorure de la dissolution traitée a été desséché et son activité mesurée par la vitesse avec laquelle il déchargeait un électroscope chargé à une vingtaine de volts. En prenant pour unité l'activité du chlorure d'uranyle non traité, celle du chlorure traité a été trouvée égale à 0,67 et l'activité du premier précipité de sulfate obtenu a été égale à 0,27.

Si, dans la solution d'une centaine de grammes de chlorure d'uranyle, on ajoute une très petite quantité de chlorure de baryum, le produit obtenu par une précipi-

(1) *Comptes rendus de l'Académie des Sciences*, t. CXXX, p. 1583 (11 juin 1900).

tation ultérieure est relativement très actif, et peut devenir plus actif que le sel d'uranium, mais le sel d'uranium quoique affaibli reste toujours actif.

Cette opération a été poussée plus loin (1); après avoir pris une dissolution déterminée de chlorure d'uranyle et avoir prélevé un échantillon du sel, on a réalisé dans cette dissolution un grand nombre de précipitations successives de quantités de sulfate de baryum sensiblement proportionnelles à la quantité d'uranium de la dissolution; chaque fois on prélevait une petite quantité du chlorure de la dissolution; dans ces opérations, on n'a pas toujours conservé le précipité du sulfate de baryte. L'activité du sel d'uranium retiré des dissolutions successivement traitées a diminué progressivement. L'activité a été, soit observée par la photographie, soit mesurée par l'électroscope; la figure 70, Pl. XIII, montre l'action progressivement affaiblie des divers produits; en prenant pour unité l'activité du chlorure non traité, on a obtenu avec l'électroscope les nombres suivants :

Nombre de précipitations ou numéros des produits.	0	2	3	12	15	17	18
Activité relative.	1	0,86	0,82	0,67	0,65	0,47	0,30

Ces nombres très approximatifs ne sont donnés ici que comme une indication de l'affaiblissement; ils semblent ne pas suivre une progression aussi rapide que l'affaiblissement de l'activité sur une plaque photographique.

(1) *Comptes rendus de l'Académie des Sciences*, t. CXXXI, p. 137 (16 juillet 1900).

En outre, avec la plaque photographique, l'absorption au travers du papier noir, puis au travers de lamelles de verre de 0^{mm},₁ d'épaisseur ou de lamelles d'aluminium de même épaisseur, n'a pas paru varier exactement de la même manière. L'aluminium a paru un peu plus transparent que le verre pour le rayonnement des produits non traités ou pour celui des premiers traitements, tandis que la transparence de l'aluminium a paru plutôt moindre que celle du verre pour les produits à partir du n° 12.

Afin d'avoir des produits inaltérables à l'air humide on a transformé une partie de chaque échantillon en oxyde noir. Sous cette forme les produits disposés sur des plaques photographiques ont montré encore un affaiblissement progressif, mais moins accentué que les chlorures. Comme il s'était écoulé plusieurs jours entre ces séries d'expériences, il faut peut-être faire intervenir l'effet d'une récupération partielle d'activité dont il sera question ci-après.

On observe, dans l'activité des produits retirés après les traitements successifs, des irrégularités qui apparaissent aussi bien avec la plaque photographique qu'avec la mesure de l'ionisation qu'ils produisent dans l'air. Ces irrégularités peuvent être dues, en partie, à des irrégularités dans les proportions de matières employées dans les traitements successifs, irrégularités qui ont été soigneusement évitées dans les expériences ultérieures.

A la même époque, M. Lecoq de Boisbaudran m'avait remis deux échantillons de nitrate d'uranyle qui étaient les termes extrêmes d'un fractionnement par cristallisation effectué avec le plus grand soin. Ces cristaux étaient

préparés depuis longtemps. J'ai trouvé les deux échantillons absolument identiques, soit dans leur action sur une plaque photographique, soit dans leur action sur l'électroscope.

Ce fait venait s'ajouter à une observation qui m'avait frappé au commencement de mes recherches, et qui plus tard avait également été signalée par M. et M^{me} Curie. C'était que l'activité d'un composé déterminé d'uranium pris dans le commerce ou dans un laboratoire était toujours la même quelle qu'en soit la provenance, et, par suite, quels que soient les traitements, antérieurement subis. Cette constatation paraissait du reste suffisante pour établir l'existence d'une activité propre à l'uranium.

Or, puisque les sels d'uranium peuvent avoir été affaiblis à un moment donné et qu'on ne constate plus cet affaiblissement, on devait en conclure que les sels d'uranium reprenaient avec le temps leur activité primitive. Les propriétés des corps activés, mises en évidence par les expériences de M. et M^{me} Curie et de M. Debierne, m'avaient conduit en outre à une hypothèse (1) aboutissant à la même conclusion.

Si les corps actifs peuvent activer les corps voisins par une fixation de leur « *émanation* », ils doivent activer de même, et très énergiquement, les matières inactives mélangées avec eux, peut-être également activer les molécules des corps combinés avec leurs molécules, et peut-être aussi activer leurs propres molécules. Je dévelop-

(1) *Comptes rendus de l'Académie des Sciences*, t. CXXXIII, p. 978 (9 décembre 1901).

perai plus loin cette hypothèse. Dans tous les cas, elle conduisait aux résultats suivants : les phénomènes observés dans l'affaiblissement des sels d'uranium et dans l'activation des précipités devaient être temporaires; les corps seraient activés aux dépens de l'émanation soustraite au mélange; la dissipation de cette émanation intermoléculaire serait favorisée par la dissociation électrolytique dans les solutions.

S'il en était ainsi : 1° les sels d'uranium affaiblis devaient reprendre spontanément leur activité primitive en fixant une partie de l'émanation produite par l'activité propre des molécules; 2° les précipités activés devaient perdre leur activité, ce qui ne se produirait pas si ceux-ci avaient entraîné une matière spontanément active.

Or, l'expérience a pleinement confirmé ces conclusions. En décembre 1901, j'ai de nouveau examiné les produits dont il vient d'être question et qui avaient été préparés dix-sept mois auparavant. Les produits uraniques progressivement affaiblis avaient tous repris leur activité première. Les préparations de chlorure, ou du moins celles qui, conservées à l'air, n'avaient pas été altérées, depuis le n° 1 jusqu'au n° 18, avaient la même activité, soit sur la plaque photographique, comme le montre la figure 71, Pl. XIII, soit encore à l'électromètre. Il en a été de même pour les oxydes. Les comparaisons ont été faites avec les échantillons mêmes qui avaient servi aux expériences de 1900.

Par contre, le sulfate de baryte, qui en juillet 1900 était plus actif que l'uranium, a été trouvé en décembre 1901 complètement inactif. L'activité qu'il avait acquise était

donc un phénomène de la nature de l'activité induite, comme dans les expériences de M. Debierne avec l'actinium. La précipitation n'avait entraîné aucune matière douée d'une activité permanente.

Ces faits m'ont conduit à cette époque à une série d'expériences et de mesures qui n'ont pas été publiées parce que la concordance des résultats ne m'avait pas paru suffisante; je comptais reprendre plus tard la question.

Je m'étais proposé de rechercher, dans l'hypothèse où une « émanation » serait mise en liberté par la dissociation électrolytique dans les solutions étendues, s'il y aurait une différence entre l'activité des précipités formés dans des solutions concentrées et dans des solutions étendues.

Le 18 décembre 1901 on a fait une solution saturée de chlorure d'uranyle, à la température de $14^{\circ}5$, et une solution de 4 grammes de chlorure de baryum dans 5 centimètres cubes d'eau. On a pris deux portions de la première solution, de 10 centimètres cubes chacune; dans la première on a versé 2 centimètres cubes de la solution de baryum; la seconde a été étendue d'abord à 200 centimètres cubes d'eau, puis on y a versé 2 centimètres cubes de la solution de baryum. Chaque mélange est resté ainsi environ une heure, puis on a précipité le baryum à l'état de sulfate en versant goutte à goutte une solution d'acide sulfurique au cinquième. On a obtenu ainsi un précipité (*a*) avec la solution concentrée et (*b*) avec la solution étendue. Ces précipités, lavés et séchés, ont été examinés immédiatement après avec la disposition électrique figure ci-contre (fig. 34); cette disposition consistait essen-

tiellement en un plateau de cuivre isolé et relié à un électromètre. Ce plateau était placé à l'intérieur d'un cylindre de cuivre isolé, et porté au potentiel de 200 volts. La partie inférieure du cylindre était fermée par une feuille d'aluminium battu, parallèle au plateau, et à quelques cen-

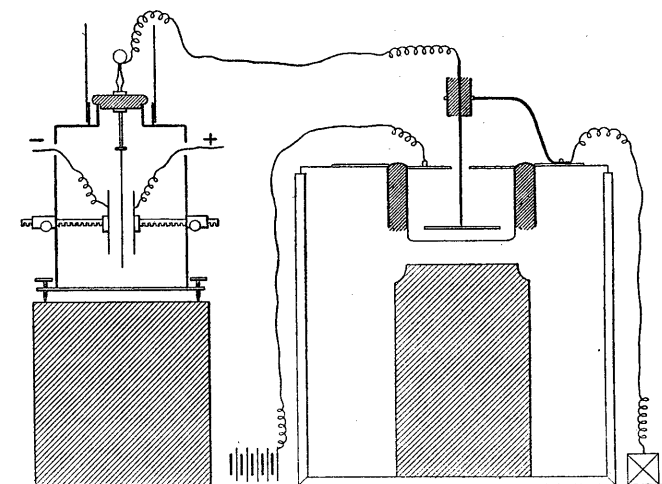


Fig. 24.

timètres au-dessous de celui-ci, on plaçait le corps radioactif à étudier, au-dessous de la feuille d'aluminium.

Les courants obtenus, mesurés, comme il a été dit plus haut, par la vitesse de la charge exprimée en volts par seconde, ont été, $0^v,064$ pour (a) et $0^v,071$ pour (b); le 20 décembre on a encore obtenu $0^v,065$ pour (a) et $0^v,075$ pour (b). Le produit précipité dans la solution étendue a été le plus actif.

Les résultats obtenus en étendant davantage les solutions n'ont pas été les mêmes. Le 18 décembre 1901, on a préparé les mélanges suivants : On a pris une solution

de chlorure d'uranyle un peu moins concentrée que la précédente, et on a encore prélevé deux portions de 20 centimètres cubes. A la première on a ajouté 4 centimètres cubes d'une solution saturée de chlorure de baryum. On a fait la même opération pour la seconde après avoir étendu le volume de la solution à deux litres. Ces solutions ont passé la nuit ainsi mélangées: la solution concentrée dans un flacon bouché, la solution étendue dans un vase cylindrique largement ouvert. Le lendemain 19 décembre, on a précipité le baryum en ajoutant à chaque solution 55 gouttes d'une solution d'acide sulfurique au dixième; les précipités, C de la solution concentrée et E de la solution étendue, ont été filtrés à chaud, lavés, séchés, et leur activité a été mesurée immédiatement après vers 4 heures du soir.

On a opéré sur 1 gramme de précipité de chaque nature, mis dans des cuves plates en plomb ayant la même surface. Les activités mesurées à divers intervalles ont donné les valeurs relatives suivantes exprimées par l'accroissement de potentiel de l'électromètre en une seconde.

DATES.	PRÉCIPITÉ C.		PRÉCIPITÉ E.	
	v		v	
19 décembre 1901	0,0709	1	0,0489	1
20 —	0,0842	1,187	0,0592	1,210
21 —	0,0714	1,007	0,0538	1,100
23 —	0,0653	0,921	0,0488	1,000
24 —	0,0626	0,882	0,0436	0,891
26 —	0,0572	0,806	0,0380	0,777
28 —	0,0527	0,746	0,0353	0,722

Il s'est produit d'abord une augmentation temporaire dans l'activité des deux préparations, puis l'activité a diminué régulièrement avec le temps. Dans ces expériences, contrairement au résultat obtenu plus haut, l'activité du précipité formé dans la solution étendue a été moindre que celle du précipité formé dans la solution saturée.

Ce résultat aurait pu être attribué à la dissipation de l'émanation dans l'atmosphère. On a refait alors une nouvelle série en prélevant deux portions de 20 centimètres cubes d'une solution concentrée de chlorure d'uranyle, et en étendant le volume de l'une d'elles à un litre. La précipitation du sulfate de baryum et la mesure de l'activité du précipité séché ont été faites le même jour, et on a obtenu $0^{\circ},0862$ pour mesure de l'activité du précipité de la solution concentrée et $0^{\circ},0747$ pour le précipité de la solution étendue; ces résultats sont dans le même sens que les précédents.

Pour confirmer l'absence d'effet attribuable à une dissipation de l'émanation dans l'air, on a préparé deux dissolutions identiques, formées de 20 centimètres cubes d'une solution saturée de chlorure d'uranyle, de 4 centimètres cubes d'une solution saturée de chlorure de baryum, le tout étendu à un volume total de 1 litre. L'une des solutions a été enfermée dans un ballon scellé à la lampe, l'autre dans un ballon ouvert. Ces solutions préparées le 27 décembre 1901 ont été laissées ainsi pendant 13 jours, jusqu'au 9 janvier 1902; on a précipité alors le baryum de ces solutions, et les précipités de sulfate de baryte ont donné à l'électromètre : $0^{\circ},0718$ pour le précipité recueilli dans le liquide du ballon qui avait été fermé, et $0^{\circ},0779$ pour celui du ballon ouvert.

La différence est faible, et peut être imputée en partie aux erreurs d'expérience. Dans tous les cas cette différence est de sens contraire à celle qui indiquerait une dissipation de l'émanation dans l'air, comme cela s'observe avec le radium.

Cette conclusion était du reste à prévoir, car on n'a pas observé jusqu'ici d'émanation produite par l'uranium dans les gaz, et c'est seulement par analogie avec les autres phénomènes d'activité induite que l'on a été conduit à admettre dans les dissolutions un phénomène de l'ordre d'une émanation qui y resterait confinée.

Dans les préparations précédentes il a pu se produire une cause d'erreur; si, au moment de la précipitation du sulfate de baryte dans les solutions très étendues, le mélange n'est pas agité de façon à provoquer un contact intime entre les diverses parties de la solution, il peut arriver que certaines parties du précipité se forment dans une région déjà appauvrie par les premières parties de la précipitation, et que le précipité soit moins actif qu'il ne devrait l'être. J'ai alors repris récemment une série de mesures sur des précipités préparés avec le plus grand soin de la manière suivante :

Le 17 mars 1903, 100 grammes de chlorure d'uranyle pur du commerce ont été dissous dans 100 centimètres cubes d'eau. On a divisé cette solution en 5 parties égales de 20 centimètres cubes; l'une a été mise à part et a constitué la solution A; deux autres parties ont été étendues à 200 centimètres cubes (solutions B et B'); une quatrième partie a été étendue à 500 centimètres cubes, solution C, et enfin la dernière partie a été étendue à

1000 centimètres cubes, solution D. Ces solutions ont été préparées entre 5 et 6 heures du soir et dans l'une d'elles (solution B') on a ajouté 4 centimètres cubes d'une solution concentrée de chlorure de baryum; puis le tout a été abandonné jusqu'au lendemain.

Le 18, à 5 heures du soir, on a ajouté dans les quatre autres solutions 4 centimètres cubes de la solution de chlorure de baryum, et on a précipité le baryum de la solution B' en ajoutant 54 gouttes d'une solution d'acide sulfurique au dixième, et on a laissé le précipité activé en contact avec la solution jusqu'au lendemain.

Le 20, on a précipité successivement le baryum de chacune des autres solutions, on a filtré à chaud et séché à l'étuve; puis on a mesuré, à divers intervalles de temps, l'activité de 1 gramme de chaque précipité, en la comparant chaque fois à celle de 1 gramme d'oxyde noir d'uranium; chacun de ces produits était placé dans des cuves plates en plomb, ayant toutes les mêmes dimensions.

Les mesures sont résumées dans le tableau ci-contre.

On voit que les produits se partagent en deux classes :
1° Les précipités dans les solutions peu étendues, A, B, B', et B', qui a séjourné plus longtemps au contact de l'uranium, est plus actif que B; 2° Les précipités dans les solutions très étendues qui sont pratiquement identiques entre eux et plus actifs que les précédents. La loi de la disparition de l'activité est la même pour tous les produits, et, après le maximum du 21, l'activité le 4 avril est réduite environ aux deux tiers pour tous les produits.

DATES.	PRÉCIPITÉ A.		PRÉCIPITÉ B.		PRÉCIPITÉ B'.		PRÉCIPITÉ C.		PRÉCIPITÉ D.	
	fin du séchage à 11 ^h 30 du matin.		fin du séchage à 1 ^h 30 du soir.		fin du séchage à 11 ^h 10 du matin.		fin du séchage à 3 ^h 45 du soir.		fin du séchage à 4 ^h 40 du soir.	
	h. m.		h. m.		h. m.		h. m.		h. m.	
20 mars 1903.	4.24	0,69	»	»	4.55	0,76	5. 7	0,95	5.18	0,96
21 —	9.12	0,63	9.25	0,65	9.45	0,76	10. 2	0,91	10.10	0,92
21 —	5. 7	0,66	5.15	0,73	5.20	0,76	5.25	0,96	5.30	0,98
22 —	7.55	0,66	8. 8	0,71	8.12	0,73	8.21	0,91	8.25	0,92
23 —	1.55	0,61	1.59	0,66	2. 9	0,69	2.19	0,91	2.26	0,88
24 —	9.15	0,59	9.30	0,65	9.38	0,68	9.45	0,88	9.52	0,88
25 —	9.49	0,58	9.57	0,62	10. 5	0,67	10.15	0,85	10.21	0,85
26 —	10.18	0,55	10.30	0,58	10.43	0,62	10.50	0,77	11. 0	0,83
28 —	4.55	0,54	5. 5	0,57	5.10	0,63	5.25	0,80	5.35	0,80
30 —	6.20	0,51	6.30	0,57	6.40	0,63	6.50	0,82	7.10	0,77
4 avril 1903.	4.25	0,41	4.30	0,45	4.39	0,51	4.46	0,63	4.57	0,60

Si l'on représente le décroissement de l'intensité en fonction du temps par une expression de la forme $I = I_0 e^{-\lambda t}$, et si l'on prend pour unité le jour, on a, pour la constante relative aux diverses séries, depuis le 21, jour à partir duquel les produits ont commencé à décroître :

A	$\lambda = 0,035$
B	0,030
B'	0,028
C	0,034
D	0,034

On voit que pratiquement la loi de la diminution de l'intensité peut être considérée comme la même (1).

Ces séries montrent que si l'opération est faite bien

(1) Au cours de cette rédaction j'ai eu connaissance d'un travail de M. Rutherford. *Phil. Mag.*, avril 1903, qui donne exactement le même nombre : $\lambda = 0,031$ pour le décroissement d'un produit activé par l'uranium.

régulièrement, les précipités obtenus dans les solutions étendues sont plus actifs que ceux des dissolutions concentrées.

A l'époque de mes premières recherches sur cette question, j'ai analysé par le champ magnétique le rayonnement émis par les diverses substances activées dans mes expériences. J'ai reconnu d'abord (1) que l'impression photographique obtenue avec l'uranium ne décèle pas de rayons semblables aux rayons α ; elle ne manifeste que des rayons déviables β .

Le sulfate de baryte activé par l'uranium (2) dans les expériences précédemment décrites, même lorsque le produit est notablement plus actif que l'uranium, ne donne également qu'une impression déviable, dépourvue de rayons α . Le thorium et le radium, au contraire, ainsi que les produits activés par ces corps, donnent des impressions où l'on reconnaît l'action des deux espèces de rayons.

L'absence de rayons α dans les impressions photographiques produites par l'uranium est un caractère qui établit une nouvelle distinction entre l'activité de l'uranium et celle du thorium et du radium, caractère que l'on retrouve dans le rayonnement des substances activées par ces divers corps.

Plus tard, M. Rutherford a signalé ces mêmes phénomènes.

Il convient de résumer ici une série de mémoires éten-

(1) *Comptes rendus de l'Acad. des Sciences*, t. CXXXIV, p. 208 (27 janvier 1902).

(2) H. BECQUEREL, *Conférence à la Royal Institution*, Londres, 8 mars 1902.

publiés par M. Rutherford et dans lesquels, à côté de faits déjà observés par d'autres expérimentateurs, se trouvent un certain nombre de constatations nouvelles et importantes. Je passerai généralement sous silence les vues théoriques émises, parce que l'auteur lui-même a été amené à les modifier continuellement dans ses publications successives, et je signalerai dans le dernier chapitre celles de ces vues qui me paraissent devoir être retenues.

Dans une publication (1) sur l'émanation radioactive produite par les composés du thorium, M. Rutherford observe que les solutions dont le thorium a été précipité par l'ammoniaque sont encore radioactives et douées d'un pouvoir d'émanation. L'oxyde de thorium précipité est affaibli. Si l'on agite dans de l'eau de l'oxyde de thorium qui n'est pas soluble, qu'on l'en sépare, puis qu'on évapore l'eau, on obtient un résidu très actif.

A l'exemple de ce qu'avait proposé Sir W. Crookes pour l'uranium, M. Rutherford, pour expliquer les faits qu'il a observés, admet l'existence d'un corps nouveau très actif, différent du thorium, le ThX.

En juillet 1902 (2) dans un autre travail, le même auteur, après avoir rappelé ou retrouvé des faits établis antérieurement, émet une série d'hypothèses que ses expériences ultérieures le conduisent à modifier. Les observations nouvelles que contient ce travail sont relatives au tho-

(1) RUTHERFORD et F. SODDY, *Proceedings of the Chemical Society*, 16 janvier 1902.

(2) RUTHERFORD et Miss H. T. BROOKS. *Phil. Mag.*, 6^e série, vol. IV, p. 1 (juillet 1902).

rium et surtout à l'émanation produite par ce corps. L'émanation du thorium se transporte à distance comme celle du radium, conformément aux expériences de MM. Curie et Debierne. L'auteur rappelle qu'il avait déjà reconnu en 1900 que la radioactivité induite par le thorium diminue de moitié en onze heures.

Peu après (1) M. Rutherford constate que les corps activés par l'émanation du thorium dans les solutions (le ThX d'après son hypothèse) émettent des rayons déviables, des rayons non déviables, et une émanation, tandis que les corps activés par leur mélange avec l'Uranium (l'UrX de Crookes) émettent uniquement des rayons déviables, phénomène que j'avais déjà signalé.

Ces diverses observations ont été étendues et complétées dans un mémoire important (2), sur « *la cause et la nature de la radioactivité* » qui a paru en deux parties dans le *Philosophical Magazine* en septembre et novembre 1902, et dans lequel l'auteur ne résout malheureusement pas ces deux questions.

Étudiant d'abord la disparition de l'activité de l'émanation du thorium, il trouve que celle-ci diminue de moitié en une minute et demie. Puis poursuivant l'hypothèse rappelée plus haut, M. Rutherford cherche à isoler un corps actif autre que le thorium, sans pouvoir mettre en évidence aucun caractère différent de ceux du thorium.

Il est conduit à observer, comme je l'avais fait anté-

(1) RUTHERFORD et E. GRIER. *Phil. Mag.*, 6^e série, vol. IV, p. 315 (septembre 1902).

(2) RUTHERFORD et F. SODDY, *Phil. Mag.*, 6^e série, vol. IV, p. 370 et 569 (septembre et novembre 1902).

rieurement pour l'uranium, que les préparations affaiblies reprennent avec le temps leurs propriétés ordinaires, et il déduit de ce fait cette conséquence que l'activité normale ou constante du thorium résulte d'un équilibre entre l'accroissement de la radioactivité et la disparition de l'activité de la matière ThX formée à chaque instant; nous discuterons plus loin ce point de vue.

Ces considérations conduisent l'auteur à une étude des lois de la disparition de l'activité de ce qu'il appelle ThX, et de la récupération de l'activité des produits affaiblis. Ces lois sont complémentaires l'une de l'autre; les fonctions $e^{-\lambda t}$ et $(1 - e^{-\lambda t})$ qui représentent la variation relative des deux phénomènes avec le temps t , sont caractérisées par la même constante λ pour la déperdition et la récupération, et cette constante correspond à une diminution de moitié en quatre jours. On a vu plus haut que M. Curie avait trouvé pour l'activité induite par le radium, soit dans la période d'établissement, soit dans la période de diminution, la même valeur de la constante λ .

L'oxyde de thorium précipité par l'ammoniaque est affaibli, et la solution reste active. M. Rutherford exprime ce fait en disant que le thorium est débarrassé du ThX. Tous les autres réactifs précipitent le thorium sans laisser de radioactivité à la solution, dont les résidus évaporés sont inactifs. L'auteur attribue cette différence aux propriétés chimiques du ThX entraîné avec le thorium. Cependant l'activité de ce corps hypothétique n'est influencée par aucun agent connu, non plus que par l'état physique ou chimique des molécules, à l'air libre, ou dans un ballon scellé à la lampe.

M. Rutherford avait reconnu l'accroissement temporaire d'activité qui précède la déperdition régulière des produits activés ainsi que la diminution qui précède la période de récupération des produits affaiblis. Il attribua ces perturbations à la fixation d'une partie de l'émanation sur la matière inactive ambiante, hypothèse identique à celle que j'avais émise antérieurement. Dans les différentes opérations auxquelles a été soumis le thorium, il n'a pas été possible de lui enlever la totalité de son activité.

La seconde partie du Mémoire de M. Rutherford est encore un développement des faits dont nous avons rappelé les principaux. Il avait vu antérieurement qu'une calcination intense enlève à l'oxyde de thorium la propriété d'émettre l'émanation sans altérer son rayonnement. L'émanation reparait si l'oxyde s'hydrate ou subit des actions chimiques. Si l'on transporte l'émanation par un courant d'acide carbonique directement activé par le thorium, et qu'on absorbe ce gaz, après l'avoir mélangé à un gaz inerte, l'émanation reste dans ce dernier gaz. L'auteur observant qu'elle se comporte comme un gaz inerte émet l'hypothèse qu'elle pourrait être un gaz de la famille de l'argon et de l'hélium, hypothèse suggérée par la présence de l'hélium dans les minerais uranifères, et émise comme quelques autres sans aucune sanction expérimentale. Parmi celles-ci cependant, il convient de signaler l'hypothèse qui attribuerait le transport de l'émanation à des ions positifs.

Une hypothèse du même genre a été émise par M. Curie (1)

(1) *Comptes rendus de l'Académie des Sciences*, t. CXXXVI, p. 226 (26 janvier 1903).

qui considère l'émanation comme formée de centres actifs émis par les corps actifs.

Dans une note sur la radioactivité produite par les sels d'actinium (1), M. Debierne a développé la même hypothèse, d'après laquelle l'émanation serait constituée par des *ions activants* dont l'énergie s'épuiserait peu à peu avec le temps. M. Debierne a reconnu, en outre, que, dans le cas de l'actinium, l'activation provoquée dans une enceinte fermée est beaucoup plus intense dans le voisinage immédiat de la source que dans les parties éloignées, où elle est très faible. Lorsqu'on fait continuellement le vide dans l'enceinte, l'activation se produit très facilement et uniformément dans toutes les parties. M. Debierne explique ces différentes particularités par la rapidité de la diminution du pouvoir activant de l'émanation, diminution qui est du même ordre que celle de l'émanation du thorium, laquelle tombe de moitié en une minute et demie. La diffusion se ferait plus vite dans le vide que dans l'air, et l'appareil à vide n'éliminerait que des centres déjà épuisés. M. Debierne a observé en outre que l'activation produite par l'actinium, dans le voisinage de la source, diminue suivant une loi plus rapide, qui correspond à une variation de moitié de sa valeur en quelques secondes.

D'après M. Debierne, les centres activants émettent un rayonnement qui produit l'activation. Dans un champ magnétique l'activation sur deux plaques disposées de part et d'autre de la source, parallèlement au champ,

(1) *Comptes rendus de l'Académie des Sciences*, t. CXXXVI, p. 446 (16 janvier 1903).

n'est pas la même. La lame qui s'active le plus est celle qui est située du côté opposé à celui où sont rejetés les rayons cathodiques.

Sans discuter ici la valeur de ces diverses hypothèses, nous appellerons l'attention sur quelques rapprochements qui résultent de ces expériences.

Les corps activés par les solutions de thorium (le Th.X de M. Rutherford) perdent leur activité suivant la même loi de décroissement que l'émanation du radium (diminution de moitié en quatre jours). L'émanation du thorium et l'émanation de l'actinium perdent leur activité suivant une même loi, qui correspond à une diminution de moitié en une minute et demie.

Bien que les diverses constantes de temps qui caractérisent la disparition des phénomènes induits provoqués par le radium, le thorium, l'actinium et l'uranium, soient généralement très différentes, il en est, parmi celles-ci, qui ont la même valeur, et ce fait suggère, pour certaines manifestations de la radioactivité, l'idée d'une communauté d'origine.

M. Rutherford a observé récemment que l'émanation se condense à la température de l'air liquide. M. Curie a vérifié ce fait par l'expérience suivante : un réservoir de verre de grand volume, terminé par un tube capillaire, contient l'émanation du radium ; si l'on plonge le tube dans l'air liquide, toute l'émanation s'y condense. En séparant, à la lampe, le tube capillaire, on constate que le gros réservoir est devenu inactif, et que le tube capillaire, devenu très actif, contient toute l'émanation.

Cette expérience peut se répéter sous une forme très

brillante (1) : deux réservoirs, de capacité inégale, B et C, communiquent par un tube capillaire muni d'un robinet R'; dans ces deux réservoirs, on met du sulfure de zinc phosphorescent, et on fait le vide. Le grand réservoir B peut communiquer par un tube muni d'un robinet R avec une ampoule A contenant une solution d'un sel de radium. On ouvre R; l'air chargé d'émanation pénètre dans B et C et le sulfure de zinc s'illumine instantanément. On ferme le robinet R et on plonge C dans l'air liquide; au bout d'une demi-heure le réservoir B a perdu sa luminosité. On ferme le robinet R' et si l'on retire le réservoir C de l'air liquide, le sulfure de zinc de ce réservoir devient très lumineux. La matière lumineuse était moins brillante quand C plongeait dans l'air liquide, parce qu'à cette basse température elle perd une partie de ses propriétés phosphorescentes.

On peut classer dans la catégorie des substances actives des sels de plomb préparés par MM. Hofmann et Strauss (2), et dont l'activité temporaire avait été attribuée à la présence d'une substance active, que ces auteurs ont appelée « *radioblei* ».

Nous ajouterons, en terminant, que M. F. Giesel (3) a retiré récemment de la pechblende un produit actif dont l'activité ne paraît pas avoir diminué en six mois, mais qui n'a pas encore été identifié avec un corps connu ou caractérisé comme corps nouveau.

(1) *Journal de Physique*, 4^e série, t. II, p. 547.

(2) *Berichte der Deut. Chemischen Gesellschaft*, Bd. XXIII, s. 3126 (1900); Bd. XXXIV, s. 8, 407, 907, 3033, 3970 (1901).

(3) *Berichte der Deut. Chemischen Gesellschaft*, t. CXXXVI, p. 342 (1903).