

SUR UN PROBLÈME D'ACTIVATION PAR DIFFUSION.

SOMMAIRE. — L'auteur étudie le problème de diffusion posé par les expériences de M^{lle} CHAMIÉ sur l'activation par les atomes de recul de ThC'' et montre que le résultat conduit, en accord suffisant avec l'expérience, à une loi hyperbolique de variation de cette activation en fonction de la distance entre la lame activée et la lame source de l'émission de ThC''.

1. Dans le mémoire précédent, M^{lle} Chamie a étudié l'activation produite, à travers l'air à la pression atmosphérique, par une lame plane S portant un dépôt actif de ThC, sur une lamé parallèle L grâce à la diffusion vers celle-ci des atomes de recul de ThC'', émis par S. Ces atomes sont arrêtés au voisinage de la source dans une mince couche d'air d'épaisseur égale à leur parcours, 0,13 mm. La décroissance rapide de l'activation quand la distance l entre les deux lames augmente m'a semblé pouvoir s'expliquer de la manière la plus simple par le fait que les atomes de ThC'' diffusant dans l'air après leur arrêt, sont adsorbés dès qu'ils viennent au contact de l'une ou de l'autre des lames S et L. Il en résulte une concentration nulle de ces atomes dans l'air au voisinage immédiat de chacune des lames. Le problème de diffusion ainsi posé comporte une solution très simple qu'il m'a paru intéressant de donner ici et de comparer aux résultats de M^{lle} Chamie.

Nous admettrons que les dimensions de la source sont assez grandes par rapport à la distance l pour que la concentration n , ou nombre d'atomes de ThC'' participant à l'agitation thermique par unité de volume d'air ne soit fonction, indépendamment du temps t , que de la distance x à la source. La production p , ou nombre d'atomes de recul arrêtés dans l'air par unité de volume et par unité de temps, sera, dans les mêmes conditions, uniquement fonction de x . Bien que, dans les expériences de M^{lle} Chamie, cette fonction p s'annule pour $x \geq 0,13$ mm, et que la distance l soit, en général, supérieure à cette limite, nous traiterons d'abord le cas général où p est une fonction quelconque de x et où, par conséquent, le parcours a_1 des atomes de recul peut être supérieur à l . Le nombre N d'atome de ThC'' que reçoit la lame L par unité de surface et par unité de temps, se composera de deux parties : le nombre N_p de ceux qui sont projetés par la source à distance du plan de celle-ci supérieure à l et qui atteignent directement L sous forme d'atomes de recul, et d'autre par le nombre N_d de ceux qui arrivent à L par diffusion après avoir été arrêtés dans l'air à distance de S inférieure à l . On a, évidemment :

$$(1) \quad N_p = \int_l^{a_1} p \, dx$$

et, en désignant par D le coefficient de diffusion des atomes de ThC'' dans l'air :

$$(2) \quad N_d = -D \left(\frac{n}{\partial x} \right)_l$$

2. Si λ représente la constante radioactive du ThC'' , on obtient facilement pour l'équation à laquelle satisfait la fonction n des deux variables indépendantes x et t :

$$(3) \quad \frac{\partial n}{\partial t} = D \frac{\partial^2 n}{\partial x^2} - \lambda n + p.$$

La solution est déterminée par la connaissance de la distribution initiale à l'origine du temps n_0 comme fonction de x et par la double condition que n s'annule quel que soit t pour $x = 0$ et pour $x = l$, c'est-à-dire sur les deux lames S et L.

Nous commencerons par chercher la solution $n_1(x)$ de régime permanent qui s'établit au bout d'un temps théoriquement infini mais pratiquement très court, ainsi que nous le verrons. Cette solution doit satisfaire à l'équation :

$$(4) \quad D \frac{d^2 n_1}{dx^2} - \lambda n_1 + p = 0$$

et se trouve déterminée par la double condition de s'annuler pour $x = 0$ et pour $x = l$.

Nous poserons ensuite :

$$(5) \quad n(x, t) = n_1(x) + n'(x, t).$$

Par substitution dans (3) et en tenant compte de (4), on obtient pour l'équation à laquelle satisfait n' :

$$(6) \quad \frac{\partial n'}{\partial t} = D \frac{\partial^2 n'}{\partial x^2} - \lambda n'.$$

La solution n' est déterminée par les conditions de s'annuler quel que soit t pour $x = 0$ et $x = l$, de prendre à l'origine du temps la valeur obtenue en faisant $t = 0$ dans l'équation (5) :

$$n_0'(x) = n_0(x) - n_1(x)$$

et de s'annuler pour t infini, en régime permanent, quel que soit x .

L'application de la méthode de Fourier à l'équation (6) conduit, en tenant compte des conditions aux limites pour x , à représenter la solution cherchée pour n' par une somme de la forme :

$$(7) \quad n' = \sum_1^{\infty} C_m \sin \frac{m\pi x}{l} e^{-\lambda_m t}$$

où m prend toutes les valeurs entières de 1 à l'infini, avec :

$$(8) \quad \lambda_m = \lambda + D \frac{m^2 \pi^2}{l^2}$$

ou, en posant :

$$(9) \quad k^2 = \frac{\lambda}{D},$$

$$\lambda_m = \lambda \left(1 + \frac{m^2 \pi^2}{k^2 l^2} \right).$$

La condition de régime permanent est satisfaite par l'équation (7) dont les coefficients C_m se détermineront au moyen des conditions initiales :

$$(10) \quad n'_0 = \sum_{m=1}^{\infty} C_m \sin \frac{m\pi x}{l}$$

c'est-à-dire en décomposant la fonction connue $n'_0(x)$ en série de Fourier suivant la formule (10).

Le temps que le régime permanent n_1 mettra à s'établir est déterminé par les constantes λ_m dont la valeur augmente rapidement avec l'entier m . Si l'on adopte pour D la valeur 0,1, qui est très inférieure à ce que permet de prévoir la théorie cinétique et conduira, par conséquent, à des valeurs trop faibles pour les λ_m et par conséquent, trop fortes pour le temps nécessaire à l'établissement du régime permanent, et si l'on introduit pour λ , constante radio active du ThC'' la valeur $3,61 \times 10^{-3}$ on obtient pour λ_1 la valeur :

$$\lambda_1 = 3,61 \times 10^{-3} + \frac{1}{l^2}$$

et comme, dans les expériences de M^{lle} Chamié l a été au maximum égal à 0,17 cm, on obtient :

$$\lambda_1 > 30.$$

Il en résulte que le premier terme dans l'expression (7) de n' et par conséquent *a fortiori* les termes suivants pour lesquels λ_m est plus grand, deviennent négligeables au bout d'une fraction de seconde certainement inférieure à $\frac{1}{5}$, de sorte que le régime permanent intervient seul dans les conditions où les expériences que nous discutons ont été faites.

3. Examinons maintenant ce régime permanent n_1 qui nous donnera l'apport par diffusion. Pour obtenir la solution cherchée de l'équation (4) nous profiterons du caractère linéaire de celle-ci pour décomposer le problème en une infinité de problèmes élémentaires dans chacun desquels la production sera limitée à une tranche infiniment mince comprise entre les abscisses a et $a + da$ où la fonction p prend la valeur $p(a)$, la solution élémentaire correspondante satisfaisant aux conditions de s'annuler pour $x = 0$ et $x = l$ et de satisfaire, en dehors de la tranche de production d'épaisseur da où la production par unité de temps est égale à $p da$, à l'équation :

$$(11) \quad D \frac{d^2 n_1}{dx^2} = \lambda n_1 \quad \text{ou} \quad \frac{d^2 n_1}{dx^2} = k^2 n_1.$$

Pour trouver cette solution élémentaire, nous décomposerons l'intervalle entre les lames S et L en deux régions ; la région (1) comprise entre $x = 0$ et $x = a$ et la région (2) comprise entre $x = a + da$ et $x = l$.

La solution de l'équation (11) du côté (1), qui doit s'annuler pour $x = 0$, est nécessairement de la forme :

$$(12) \quad n_1 = A_1 \text{Sh } kx$$

et la solution du côté (2), qui doit s'annuler pour $x = l$, est nécessairement de la forme :

$$(13) \quad n_2 = A_2 \text{Sh } (l - x).$$

Les constantes A_1 et A_2 sont déterminées par deux conditions : d'une part, la concentration n doit varier de façon continue au passage de la région (1) à la région (2), c'est-à-dire qu'on doit avoir pour $x = a$:

$$(14) \quad n_1(a) = n_2(a) = A_1 \text{Sh } ka = A_2 \text{Sh } k(l - a)$$

d'autre part, le flux total qui sort par diffusion de la tranche da doit, pour cette solution élémentaire dans laquelle la concentration n est infiniment petite de l'ordre de da , être égal à la production $p da$, la destruction spontanée dans cette tranche, $\lambda n da$ étant infiniment petite du second ordre puisque n est du premier. Le flux du côté (1) sortant de la tranche da est :

$$D \left(\frac{dn_1}{dx} \right)_a = k D A_1 \text{Ch } ka$$

et le flux du côté (2) vers L est :

$$- D \left(\frac{dn_2}{dx} \right)_a = k D A_2 \text{Ch } k(l - a).$$

La condition de conservation des atomes de ThC'' est donc :

$$k D A_1 \text{Ch } ka + k D A_2 \text{Ch } k(l - a) = p(a) da$$

d'où, en tenant compte de (14) :

$$A_1 = \frac{p da \text{Sh } k(l - a)}{k D \text{Sh } kl} \quad A_2 = \frac{p da \text{Sh } ka}{k D \text{Sh } kl}$$

Les deux fonctions $n_1(x)$ et $n_2(x)$ qui composent la solution élémentaire sont donc données

entre $x = 0$ et $x = a$, par :

$$n_1(x) = \frac{p da \text{Sh } k(l - a)}{k D \text{Sh } kl} \text{Sh } kx$$

entre $x = a$ et $x = l$, par :

$$n_2(x) = \frac{p da}{kD} \frac{\text{Sh } ka}{\text{Sh } kl} \text{Sh } k(l-x).$$

Pour avoir la solution totale n_1 en un point d'abscisse x , il faut ajouter les solutions élémentaires du côté (2) pour $0 \leq a \leq x$ et du côté (1) pour $x \leq a \leq l$; ceci donne pour n_1 :

$$(15) \quad n_1 = \frac{1}{kD \text{Sh } kl} \left[\text{Sh } k(l-x) \int_0^x p(a) \text{Sh } ka da \right. \\ \left. + \text{Sh } kx \int_x^l p(a) \text{Sh } k(l-a) da \right].$$

Il est facile de vérifier que cette fonction de x satisfait bien à l'équation (4) caractéristique du régime permanent. Pour le flux par unité de surface à la distance x on obtient :

$$(16) \quad -D \frac{dn_1}{dx} = \frac{1}{\text{Sh } kl} \left[\text{Ch } k(l-x) \int_0^x p(a) \text{Sh } ka da \right. \\ \left. - \text{Ch } kx \int_x^l p(a) \text{Sh } k(l-a) da \right].$$

En vertu de la formule (2), l'apport par diffusion sur la lame L est donné par la formule très simple :

$$N_d = -D \left(\frac{dn_1}{dx} \right)_l = \frac{1}{\text{Sh } kl} \int_0^l p(a) \text{Sh } ka da.$$

[En ajoutant à cet apport par diffusion l'apport par projection directe de recul que donne l'équation (1), nous obtenons la solution générale pour l'activation par unité de temps de la lame L :

$$(17) \quad N = \frac{1}{\text{Sh } kl} \int_0^l p(a) \text{Sh } ka da + \int_l^{a_1} p(a) da.$$

Ce résultat prend une forme particulièrement simple si l'on suppose que la distance l entre les lames est supérieure au parcours a_1 des atomes de recul; il vient dans ce cas à partir de (17) :

$$(18) \quad N = \frac{1}{\text{Sh } kl} \int_0^{a_1} p(a) \text{Sh } ka da = \frac{\Lambda}{\text{Sh } kl}.$$

Par conséquent, dès que la distance entre les lames est supérieure au parcours, c'est-à-dire dès que la zone de production des atomes qui diffusent, ou d'arrêt des atomes de recul, est entièrement comprise entre les lames, l'activation de la lame L varie simplement en raison inverse de $\text{Sh } kl$.

L'expression devient plus simple encore si l'on tient compte des ordres de

grandeur. D étant certainement supérieur à 0,1 et λ égal à $3,61 \times 10^{-3}$ sec⁻¹, on a, par la formule (2) :

$$k = \sqrt{\frac{\lambda}{D}} < 0,19$$

et comme $l < 0,17$, on a toujours $kl < 0,032$, ce qui permet de remplacer partout le sinus hyperbolique par l'argument avec une erreur inférieure au six-millième; *a fortiori*, puisque dans (18) a_1 est inférieur à l on peut remplacer dans cette équation $Shka$ par ka et l'on obtient :

$$(19) \quad N = \frac{1}{l} \int_0^{a_1} ap \, da = \frac{C}{l}$$

c'est-à-dire une loi hyperbolique et non une loi exponentielle de variation de l'activation avec la distance dès que celle-ci est supérieure à a_1 , c'est-à-dire à 0,13 mm pour le ThC²³² dans l'air atmosphérique.

Quand l devient inférieur au parcours a_1 , et tend vers zéro, la formule (17) montre que l'activation N tend vers une constante égale à l'émission totale des atomes de recul P :

$$P = \int_0^{a_1} p(a) \, da.$$

4. La loi hyperbolique (19) présente ce caractère remarquable d'être indépendante à la fois du coefficient de diffusion et de la constante radioactive de la substance qui constitue les atomes de recul, de sorte que des expériences de ce genre ne permettent pas la détermination du coefficient de diffusion quand on connaît la constante radioactive, contrairement à ce qui se passe dans le cas de l'actinon.

La confirmation de notre théorie peut être cherchée tout d'abord à partir des résultats numériques de M^{lle} Chamié en vérifiant que, pour $l > 0,13$ mm, le produit de l'activation N par la distance l reste constant au degré de précision des mesures. Le tableau I donne le résultat de cette comparaison pour la première série d'expériences dans laquelle une durée d'exposition de dix secondes a été utilisée :

TABLEAU I.

l en mm.	0,13	0,14	0,15	0,16	0,19	0,24	0,29	0,34	0,39	0,49	0,6
N	3,31	3,05	3,21	2,65	2,12	1,77	1,41	0,93	0,85	0,69	0,595
$l \times N$	0,43	0,427	0,47	0,424	0,403	0,425	0,409	0,316	0,331	0,338	0,357

La constance du produit est très satisfaisante jusqu'à la distance 0,24 double du parcours des atomes de recul; la diminution ultérieure est assez irrégulière et ne correspond à la distance 0,6 mm qu'à une différence de 20 p. 100 sur le produit alors que la distance a été presque quintuplée; la baisse rapide rend d'ailleurs les mesures moins précises quand la distance augmente.

La seconde série de mesures correspond à des expositions de dix minutes; les nombres du tableau II représentent chacun la moyenne de quatre expériences :

TABLEAU II.

l en mm	0,15	0,16	0,18	0,2	0,25	0,3	0,4	0,5	0,6	0,7	0,8	0,9	1,0	1,2	1,5	1,7
N	23,4	17,8	14,8	13,5	10,97	9,33	7,6	6,3	5,4	4,9	4,36	3,89	3,51	2,82	2,04	1,64
$l \times N..$	3,51	2,85	2,66	2,70	2,84	2,80	3,04	3,15	3,20	3,36	3,49	3,50	3,51	3,38	3,06	2,74

Les variations du produit se montrent ici encore très faibles par rapport à la variation de la distance; le produit se retrouve exactement le même lorsque cette distance varie de 0,15 à 1, c'est-à-dire dans un rapport voisin de 7. Il est difficile d'attribuer un caractère systématique aux variations du produit, que la difficulté des mesures suffit certainement à expliquer.

5. Une autre confirmation intéressante résulte de la comparaison entre l'activation obtenue sur la lame L et l'émission totale P des atomes de recul dans l'air :

$$P = \int_0^{a_1} p \, da$$

En désignant par \bar{a} la distance moyenne de la lame S à laquelle sont arrêtés les atomes de recul, on peut écrire la formule (19) sous la forme:

$$\frac{N}{P} = \frac{1}{l} \frac{\int_0^{a_1} ap \, da}{\int_0^{a_1} p \, da} = \frac{\bar{a}}{l}$$

d'où :

$$\bar{a} = l \frac{N}{P}$$

M¹¹° Chamié indique pour une distance l de 0,5 mm un « rendement » $\frac{N}{P}$ de l'ordre de 20 p. 100. Cela donne pour \bar{a} :

$$\bar{a} = 0,5 \times 0,2 = 0,1 \text{ mm}$$

valeur tout à fait d'accord avec la valeur 0,13 du parcours des atomes de recul, puisque ceux-ci, suivant la direction de leur émission par rapport à la normale à la lame source S' sont arrêtés dans le gaz à des distances de cette lame comprises entre 0 et 0,13 mm. Une étude plus précise de ce rendement pourrait certainement conduire à une comparaison intéressante entre l'expérience et la théorie.

VIII. GRANDEURS ET UNITÉS

J. Z. 931709.

16A

THE UNIVERSITY OF CHICAGO