

EFFET DE LA TEMPÉRATURE SUR LA DIFFUSION NEUTRON-PROTON

THÈSE

présentée à l'Ecole Polytechnique Fédérale, Zurich,
pour l'obtention du grade de Docteur ès Sciences naturelles par

A. Gibert

de Lisbonne

Rapporteur: M. le Prof. Dr. P. Scherrer

Corapporteur: M. le Prof. Dr. F. Tank

Bâle

Imprimerie Emil Birkhäuser & Cie.

1946

A MA FEMME

Tirage à part de *Helv. Phys. Acta*, Volumen XIX Fasciculus Quartus (1946).

Effet de la température sur la diffusion neutron-proton

par A. Gibert*).

1. Introduction.

La théorie de la diffusion des neutrons lents par des protons liés a été traitée d'abord par FERMI¹⁾, puis par BETHE²⁾ et ARLEY³⁾. Dans le cas limite de neutrons d'énergie nulle ou quand on peut considérer le proton comme lié rigidement, on prévoit que la section efficace de diffusion est proportionnelle au carré de la masse réduite du système neutron-molécule hydrogénée. Si le proton est lié à une masse infinie, la section efficace prend une valeur maximum σ_∞ . Ce maximum, σ_∞ , est relié à la section efficace de diffusion des neutrons par les protons libres, σ_H , par la relation $\sigma_\infty = 4\sigma_H$. Ces résultats semblent être confirmés expérimentalement, en particulier par les mesures de CARROL⁴⁾ sur l'influence des liaisons moléculaires.

La diffusion par les molécules gazeuses présente deux cas simples extrêmes : 1) si l'énergie des neutrons est grande relativement à l'énergie de liaison de la molécule, les protons peuvent être considérés comme libres ; 2) si par contre l'énergie des neutrons n'est suffisante pour exciter ni les vibrations ni les rotations de la molécule les protons se comportent comme des points matériels susceptibles seulement de translations. Dans ces deux cas limites on peut donc éliminer l'influence des liaisons chimiques.

Le cas intermédiaire complexe où il faut tenir compte des liaisons du proton caractéristiques de la molécule hydrogénée a été étudié par SACHS et TELLER⁵⁾. Pour pouvoir résoudre effectivement ce problème, ces auteurs ont dû se borner au cas particulier où l'énergie des neutrons ne suffit pas à exciter les vibrations de la molécule mais est assez grande pour que le mouvement de rotation de la molécule puisse être traité classiquement.

Indépendamment de ces considérations, il faut tenir compte de l'agitation thermique des molécules quand le corps diffuseur

*) Boursier de l'Etat portugais (Instituto para a Alta Cultura).

se trouve à l'état gazeux⁶). Si l'on n'envisage que des neutrons monocinétiques de vitesse v , on tiendra compte de cet effet en posant

$$\sigma_{\text{eff}}(v) = \frac{1}{v} \int |\vec{v} - \vec{u}| \sigma(|\vec{v} - \vec{u}|) N(\vec{u}) d\vec{u}$$

où $N(\vec{u}) d\vec{u}$ est la distribution de vitesses des molécules du gaz, $\sigma(|\vec{v} - \vec{u}|)$ la section efficace théorique et $\sigma_{\text{eff}}(v)$ la section efficace mesurée. La supposition que σ est indépendante de la vitesse permet l'intégration et conduit au facteur de correction qu'il faut appliquer à σ_{eff} pour avoir le vrai σ .

En réalité σ n'est pas indépendant de la vitesse. L'approximation de SACHS et TELLER tient compte de ce fait et permet le calcul explicite du rapport $\bar{\sigma}/\sigma_H$ (où $\bar{\sigma}$ est la section efficace moyenne de diffusion d'un proton lié) dans les deux cas suivants: a) neutrons monocinétiques, b) courant de neutrons du type

$$P_n^2 \exp(-P_n^2/2mkT_n) dP_n,$$

où P_n est le moment du neutron. On obtient ainsi des formules qui mettent en évidence la façon dont le rapport $\bar{\sigma}/\sigma_H$ dépend 1) de la température du gaz diffuseur, ou plus exactement du rapport T/T_n , de la température T du gaz à la température $T_n = \frac{2}{3} \frac{E_n}{k}$ des neutrons d'énergie moyenne E_n , 2) de la structure de la molécule.

Le cas b) est susceptible d'un contrôle expérimental dans les conditions courantes où les neutrons lents employés présentent une répartition de vitesses voisine de la distribution théorique envisagée. Par conséquent, pour autant qu'il sera possible de réaliser les conditions expérimentales exigées par les hypothèses de la théorie, l'étude de l'effet de la température dans la diffusion des neutrons lents par des molécules hydrogénées gazeuses semble devoir être intéressante pour les trois raisons suivantes:

a) elle constituera un contrôle du degré d'approximation de la théorie de SACHS et TELLER,

b) elle permettra d'établir, dans les conditions expérimentales réalisées, la grandeur de cet effet de température,

c) si l'expérience semble confirmer suffisamment la théorie la mesure pourra fournir, ainsi que le suggèrent SACHS et TELLER, une contribution au problème de la valeur de σ_H , par la combinaison des résultats expérimentaux et théoriques.

En effet, la théorie permet de calculer $\bar{\sigma}/\sigma_H$ à différentes températures; si l'on mesure $\bar{\sigma}$ à ces mêmes températures, il sera pos-

sible d'en déduire une valeur moyenne de σ_H avec une assez bonne précision. On sait que les valeurs connues de σ_H , soit purement expérimentales, soit semi-théoriques, présentent entre elles une dispersion qui dépasse largement les erreurs acceptables. Le tableau suivant donne un résumé chronologique des valeurs trouvées pour σ_H et des méthodes employées dont nous avons connaissance.

Auteurs (réf.)	Année	Méthode	Valeur
7)	1936	diffusion dans la paraffine	11,5
2)	1937	calculée	14
8)	1938	extrapolé	16,5
9)	1939	neutrons rés. I et Ag dans l'eau . .	14,8±0,8
10)	1939	neutrons rés. Rh dans la paraffine . .	20±2
11)	1939	calculée d'après ¹⁵⁾	20±2
12)	1940	neutrons rés. Rh	14,4
6)	1940	calculée à partir de ¹⁶⁾	16,6
13)	1940	neutrons rés. In et Ag dans la paraffine	20
14)	1941	neutrons rés. In et I dans le cétane .	21±1

D'autre part il peut être intéressant d'essayer de déterminer l'influence de l'état d'aggrégation en comparant la diffusion des neutrons dans les deux phases, gazeuse et liquide, de l'hydrogène dans les mêmes conditions de température et pour des neutrons possédant des distributions d'énergie identiques. En effet, les mesures effectuées jusqu'ici, à l'occasion de recherches sur l'ortho et le parahydrogène^{15) 16)}, ne permettent pas cette comparaison. Ainsi, à 20° K, les seules valeurs disponibles se rapportent à des neutrons C de 300° K (état liquide: $\sigma = 24,0$) et à des neutrons monocinétiques de 20° K (état gazeux: $\sigma = 38,15$).

Cependant, dans le cas de l'oxygène et de l'azote, CARROL⁴⁾ trouve des sections efficaces pour l'état gazeux qui s'accordent pratiquement avec celles de l'état liquide¹⁵⁾. Mais, ici aussi, les mesures à l'état liquide ont été faites à environ 80° K, tandis que pour les mesures à l'état gazeux la température était de 300° K.

Dans la présente publication, nous donnons les résultats de nos mesures dans l'hydrogène gazeux aux températures de 290°, 77° et 20° K.

2. Les hypothèses de la théorie et les conditions expérimentales.

La théorie de SACHS et TELLER n'est applicable qu'à des neutrons dont l'énergie, pour un composé hydrogéné gazeux donné, satisfait aux conditions $E_{\text{rot}} < E_n < E_{\text{vib}}$ et $E_n > (E_{\text{rot}} kT)^{1/2}$ où E_n est l'énergie des neutrons, T la température du gaz, E_{vib} la plus petite énergie de vibration de la molécule et $E_{\text{rot}} = \frac{\hbar^2}{I_{\text{min}}}$ où I_{min} est le plus petit moment d'inertie de la molécule. Pour l'hydrogène il en résulte que E_n doit être compris entre 0,015 et 0,5 eV.

N'ayant pas à notre disposition une source de neutrons monochromatiques d'énergie aussi basse, nous avons dû envisager des mesures avec des neutrons ralentis dans la paraffine (à la température T_n) et absorbés dans le cadmium (neutrons C). Comme l'on sait, la valeur moyenne du spectre ainsi obtenu est bien égale à $\frac{3}{2} kT_n$ ¹⁷⁾¹⁸⁾ ainsi qu'il faut s'y attendre si l'on admet que la distribution est maxwellienne.

Dans ces conditions, à la température ordinaire, la plupart des neutrons entrant en ligne de compte ont une énergie comprise entre 0,020 et 0,2 eV (limite d'absorption du cadmium). La condition de température la plus défavorable est donc $(E_{\text{rot}} kT)^{1/2} \approx 0,02$, ce qui donne $T \simeq 300^\circ \text{K}$ (pour le gaz). Il est évident que la condition est alors satisfaite a fortiori pour des valeurs de $T < 300^\circ \text{K}$.

Nous en sommes ainsi réduits au domaine des températures inférieures à la température ordinaire.

Pour l'hydrogène la théorie n'impose pas d'autres limitations, mais il est évident qu'il faut que le courant des neutrons incidents soit monochromatique ou possède la distribution envisagée sous b). En fait, malgré de fortes présomptions¹⁷⁾¹⁸⁾ en faveur d'une distribution maxwellienne des neutrons C (dans la paraffine), il est possible que le courant ait une forme comprise entre

$$P_n^3 \exp(-P_n^2/2mkT_n) dP_n \quad \text{et} \quad P_n^2 \exp(-P_n^2/2mkT_n) dP_n.$$

La dernière expression correspondrait au cas où les neutrons sont freinés en un temps court relativement à la durée de vie moyenne des neutrons dans la substance où ils sont ralentis. D'après BETHÉ (§ 17), la vie moyenne des neutrons dans la paraffine est de 10^{-4} s, tandis qu'il faut à peine 10^{-6} s aux neutrons rapides pour que leur énergie tombe à 1 eV. On pourrait donc s'attendre, ainsi que le remarquent d'ailleurs SACHS et TELLER, à trouver des valeurs mesurées plus petites que les valeurs calculées. Cependant, il faut

tenir compte aussi de la façon dont les neutrons sont détectés. Nous employons la méthode usuelle de la chambre de bore, ce qui nécessite une correction due au fait que la section efficace varie alors comme $1/v$. On obtiendra donc la valeur expérimentale de σ en remplaçant, dans le calcul de la moyenne sur le spectre de neutrons, le courant neutronique émergeant de la paraffine, $I(P_n)$, par $\frac{I(P_n)}{P_n}$. On est conduit ainsi aux formules de SACHS et TELLER mais pour une distribution maxwellienne des neutrons dans la paraffine.

Pour d'autres gaz que l'hydrogène, les hypothèses théoriques imposent des restrictions supplémentaires aux conditions expérimentales, les plus favorables se rapportant au méthane.

3. Chambre thermique et production des températures.

Ainsi que nous l'avons déjà indiqué, nos mesures ont dû se faire à des températures inférieures à la température ordinaire et, comme il y a tout avantage à les distribuer sur un domaine de températures aussi étendu que possible, nous avons choisi l'intervalle 20—300° K (voir aussi n° 9).

Ne disposant pas d'hydrogène liquide, nous avons construit un liquéfacteur dont une description a déjà été publiée¹⁹⁾ et à cette occasion nous avons établi une chambre de liquéfaction spéciale directement adaptée à des mesures de diffusion de neutrons aux différentes températures entre 20 et 300° K. Outre cette particularité le liquéfacteur devait avoir un rendement appréciable (env. 2,5 l/h) et peu de pertes, de façon à rendre possible le refroidissement de la masse relativement élevée de la chambre de diffusion (env. 1 kg).

Les températures étaient mesurées avec un thermomètre à résistance de platine et le contrôle de leur constance se faisait par la mesure de la pression dans la chambre de diffusion ainsi qu'au moyen de couples thermo-électriques.

La chambre thermique, formant en même temps chambre de liquéfaction pour l'hydrogène, était constituée par un vase métallique à double paroi de forme spéciale (Fig. 1). La construction métallique a dû être adoptée parce que nous ne disposions pas d'un verre dépourvu de bore, par exemple du verre à base de cérium¹⁵⁾, et ensuite du fait de la forme particulière et des grandes dimensions nécessaires. L'épaisseur des parois était de 0,5 mm et la perturbation ainsi apportée par cet obstacle peut être négligée.

L'espace compris entre les parois était évacué au moyen d'une pompe à diffusion de mercure. Le vide nécessaire, d'environ

10^{-5} mm-Hg, était contrôlé au moyen d'un manomètre à ionisation magnétique²⁰).

A l'intérieur du récipient se trouvaient les organes de liquéfaction et, au fond, la chambre de diffusion. La forme de la chambre thermique a été dictée par le souci d'interposer le moins de matière

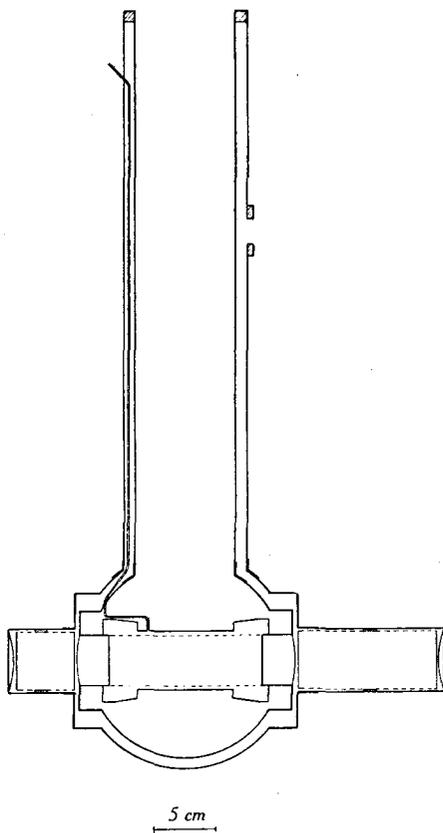


Fig. 1.

possible sur le trajet des neutrons, tout en satisfaisant aux conditions suivantes, que des essais préliminaires nous ont appris à considérer comme essentielles, à savoir: 1) les faces d'entrée et de sortie du faisceau de neutrons dans la chambre thermique doivent être isolées thermiquement de la paroi extérieure; celle-ci a en effet tendance à se recouvrir d'une mince couche de buée (dont l'épaisseur variable surtout serait à craindre), 2) tout au long du trajet à l'intérieur de la chambre thermique, le faisceau de neutrons doit

être délimité par des cylindres de cadmium coaxiaux, 3) les faces (d'entrée et de sortie) de la chambre de diffusion doivent être isolées de façon à ne pouvoir entrer en contact avec les liquides refroidisseurs ou avec leur vapeur (pour des raisons de précision évidentes), 4) la chambre de diffusion doit pouvoir être facilement enlevée pour faire place à une autre ou à de nouveaux éléments nécessaires à d'autres travaux avec la même chambre de liquéfaction.

D'autre part la nécessité de donner à la chambre thermique une construction mécaniquement résistante nous a conduits à la prévoir sans manteau protecteur d'azote liquide, l'isolement thermique direct entre l'hydrogène liquide et l'extérieur étant réalisé seulement par le vide de 10^{-5} mm-Hg dans l'espace compris entre les parois de la chambre thermique. Ces conditions sont relativement critiques car au-dessus d'une pression d'environ 10^{-4} mm-Hg on n'arrive plus à refroidir la chambre de diffusion à moins de 35° K environ.

La solution habituelle d'un manteau isolant d'azote liquide contenu dans un vase de DEWAR enveloppant la totalité de la chambre était à exclure d'avance pour des mesures avec neutrons.

Le choix des métaux employés dans la chambre a été dicté par les raisons suivantes: 1) il est clair que le fond de la chambre de liquéfaction n'a pas besoin d'être construit en alliage mauvais conducteur; il y a par conséquent tout avantage à choisir le cuivre en raison de la facilité avec laquelle il se laisse étamper, 2) sur le trajet des neutrons on a remplacé le cuivre par du laiton moins absorbant; l'aluminium, préférable encore sous ce rapport, a dû être rejeté, car il n'a pas été possible de trouver une soudure à l'aluminium satisfaisante pour le vide poussé, 3) les différences de coefficients de dilatation des métaux employés sont suffisamment petites pour qu'il ne se développe pas de tensions trop élevées aux lignes de jonction.

Les différentes parties métalliques sont soudées les unes aux autres soit à l'étain, soit à l'argent, le choix étant déterminé uniquement par les nécessités de montage ou démontage facile de la chambre de diffusion. Le comportement des deux types de soudure est parfait du point de vue de l'étanchéité, même aux basses températures.

Nous avons fait des mesures à la température ordinaire, à celle de l'azote liquide et à celle de l'hydrogène liquide. Pour obtenir la température de 77° K, on laissait s'évaporer une petite quantité d'azote liquide, conduite jusqu'au fond de la chambre thermique et renouvelée régulièrement suivant la consommation.

Cet azote pouvait être introduit au moyen d'un tube de neussilber descendant dans la chambre de liquéfaction jusqu'au niveau de la valve d'expansion du liquéfacteur. La température de 20°K était obtenue en produisant d'abord une certaine quantité d'hydrogène liquide et en conservant ensuite ce volume aussi longtemps que possible au moyen d'un courant réduit d'hydrogène juste suffisant.

Dans de bonnes conditions de fonctionnement du liquéfacteur nous pouvions mesurer à 20°K pendant 6 heures environ, avec une consommation de 20 litres d'azote liquide et de 16.000 litres d'hydrogène gazeux sous une pression allant de 80 à 50 atm. Le temps de mise en marche de l'installation était en moyenne

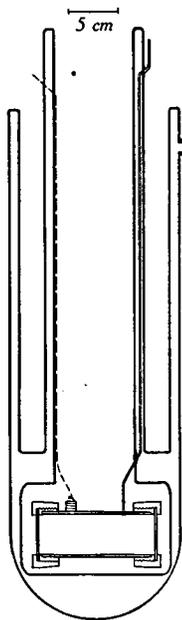


Fig. 2.

de une heure et quart. L'intérieur de la chambre de liquéfaction (chambre de diffusion comprise) était refroidi préalablement à l'azote liquide et ensuite évacué ce qui abaissait la température à environ 63°K .

Toute température intermédiaire, comprise entre 20 et 300°K , peut d'ailleurs être obtenue et maintenue constante avec une précision de 1 à 2°K , en produisant un état thermique stationnaire de la façon déjà indiquée¹⁹). Une partie de nos mesures a été effectuée avec une chambre thermique plus simple (Fig. 2). Nous

avons pu l'employer pour la température de 77° K, mais des défauts d'étanchéité l'ont rendue inutilisable pour la liquéfaction de l'hydrogène. Dans ce type de chambre, l'intérieur était isolé à l'azote liquide sur la plus grande partie possible, mais la construction était beaucoup moins solide et la géométrie pour les neutrons moins satisfaisante que dans le second type.

4. La chambre de diffusion.

La nécessité de placer la chambre de diffusion à l'intérieur de la chambre de liquéfaction sans trop augmenter les dimensions de celle-ci, et le souci de réaliser sensiblement la même transmission aux différentes températures ont limité le choix des dimensions de la chambre de diffusion.

La construction de la chambre de liquéfaction ne permettait pas d'envisager raisonnablement une longueur efficace supérieure à 12 cm. Dans ces conditions, pour avoir une transmission de l'ordre de 50% nous aurions dû prévoir à température ordinaire une pression de 40 atm. environ, ce qui aurait produit la liquéfaction

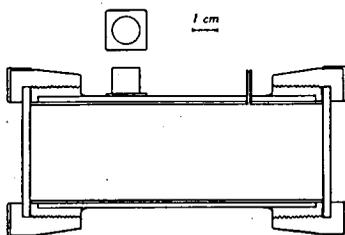


Fig. 3.

vers 25° K²¹). Si l'on veut descendre à l'état gazeux jusqu'à la température de 20° K il est nécessaire de ne pas dépasser 15 atm. à 300° K. Nous avons ainsi été conduits à prendre une longueur effective de 11,60 cm ce qui, pour une pression de 15 atm., donne une transmission de 75% environ (voir aussi n^o 9).

Toutefois la chambre de diffusion a été dimensionnée pour pouvoir supporter une pression de 60 atm. (Fig. 3). Elle est constituée par un cylindre de cuivre creux, revêtu intérieurement d'une couche de cadmium de 1 mm d'épaisseur. Ce cylindre est fermé à ses deux extrémités par des plaques circulaires de duraluminium de 0,30 cm d'épaisseur. Ces plaques s'appuient sur des couronnes de laiton soudées au cuivre et sont serrées contre celles-ci par d'autres pièces, de laiton aussi, vissées sur les premières. On réalise ainsi un ensemble parfaitement étanche, tant pour le vide, que

pour des pressions allant jusqu'à 40 atm. au moins, et aussi bien à la température ordinaire qu'à celle de l'hydrogène liquide. Nous avons essayé d'autres combinaisons mais celle-ci seule nous a donné toute satisfaction.

Sur la paroi latérale du cylindre de cuivre est soudée une petite pièce cylindrique également de cuivre. Sur celle-ci s'enfonce un capuchon métallique sur lequel est enroulé le fil de platine qui constitue notre thermomètre à résistance.

Le diamètre de la chambre de diffusion (4,0 cm) a été choisi de façon à satisfaire aux conditions de collimation qui seront discutées plus loin (n° 6).

L'épaisseur assez grande des parois (2 mm) permet à la chambre de supporter, comme nous l'avons déjà dit, des pressions plus élevées que celle que nous avons choisie pour ce travail. Une telle épaisseur est cependant intéressante car elle assure à la chambre une grande capacité calorifique qui oppose une forte inertie à d'éventuelles variations de température. On peut en tout cas être sûr ainsi que la température donnée par le thermomètre à résistance de platine est bien égale à celle du gaz diffuseur. De leur côté les conditions de solidité requises par le mode de fermeture que nous avons adopté imposaient aussi des dimensions appréciables. Ainsi, malgré une économie de métal aussi poussée que possible, le poids total de la chambre de diffusion dépassait 1 kg ce qui, nous l'avons déjà vu, exige un bon rendement du liquéfacteur.

Le gaz à étudier peut être introduit dans la chambre de diffusion au moyen d'un tube de neusilber que l'on voit sur les figures 1 et 2. La pression du gaz dans la chambre était donnée par un manomètre de précision avec lequel on pouvait connaître la valeur initiale avec une erreur contrôlée de l'ordre de 0,1%.

5. Production et détection des neutrons.

a) Nous avons employé les neutrons produits par une source de 67 mg de Ra + Be à laquelle nous avons joint pour la plus grande partie des mesures une source de 300 mc de Rn + Be*). Ces neutrons étaient ralentis dans un bloc de paraffine de la forme qu'il est convenu d'appeler « howitzer »²²). Les rayons gamma étaient affaiblis par un cylindre absorbant de plomb et la collimation du howitzer renforcée par des écrans de cadmium creux remplis de poudre comprimée d'acide borique (Fig. 8). Le nombre

*) Bien que nous n'ayons pas essayé de faire des mesures absolues, nous n'avons remarqué aucune différence dans le rendement par mc des deux types de source.

de neutrons émis dans le sens utile était environ triple de celui émis en sens opposé.

b) La détection des neutrons se faisait par chambre d'ionisation, remplie de fluorure de bore (BF_3) sous 3,2 atm. Avec une longueur effective de 10 cm l'efficacité de la chambre atteignait 25 %, valeur élevée rendue nécessaire par la géométrie de notre dispositif et l'intensité limitée de la source. D'autre part, afin d'avoir une collection rapide des ions malgré la forte pression et la tension relativement basse, nous avons prévu un système double d'électrodes. Il en est résulté un champ d'environ 1000 V/cm mais, par contre, la capacité de la chambre a fortement augmenté, rendant nécessaire une amplification de l'ordre de 150 000. Du reste le seul inconvénient de la grande capacité de la chambre est une certaine sensibilité aux rayons gamma et, par suite, un niveau perturbateur plus élevé. En fait, son fonctionnement s'est révélé très

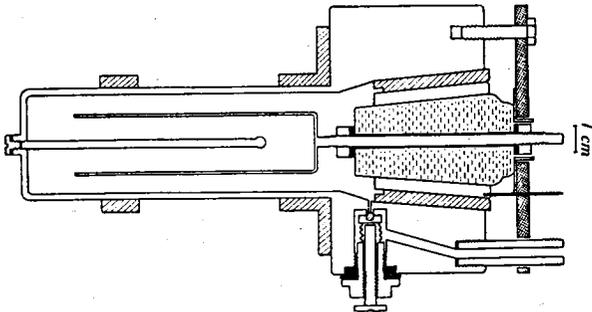


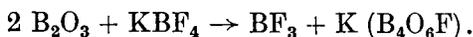
Fig. 4.

constant depuis plus d'un an et nous croyons intéressant d'en donner un schéma détaillé (fig. 4). La partie centrale supportant l'électrode collectrice est constituée simplement par un bouchon de verre rodé à l'émeri et percé le long de l'axe. Cette partie, et avec elle l'ensemble des pièces coniques, est maintenue par une plaque d'acier vissée au corps de la chambre, afin de bien en assurer l'étanchéité. Celle-ci a été contrôlée pendant deux mois sous une pression de 5 atm. L'ajustage étanche des pièces coniques les unes aux autres est obtenu simplement par le fini de leur rodage; aucune substance de liaison n'est interposée entre elles. Nous évitons ainsi la présence dans la chambre de substances susceptibles d'être attaquées par le trifluorure de bore ou de le rendre actif en se déshydratant. Les mêmes raisons nous ont fait choisir, pour isoler l'anneau de garde, un anneau d'ébonite dont la résistance à l'action du trifluorure de bore avait été éprouvée auparavant. Partout où cela

était nécessaire des joints de plomb ont été adoptés, ce métal étant, lui aussi, comme l'aluminium, réfractaire à l'action du trifluorure de bore bien sec.

Cependant toutes ces précautions seraient vaines si le gaz n'était pas parfaitement sec et si l'on ne prenait pas grand soin d'éviter toute contamination d'humidité lors du remplissage de la chambre.

c) Nous avons préparé nous-mêmes le trifluorure de bore, en principe d'après une méthode due à HELLRIEGEL²³). Nous avons chauffé à 600° C, dans un gros tube à essai en verre Pyrex, un mélange d'anhydride borique (obtenu en déshydratant de l'acide borique dans un creuset de nickel) et de borofluorure de potassium KBF_4 . La réaction est la suivante:



Il est nécessaire que le borofluorure de potassium soit aussi très sec. Nous l'avons préparé par une méthode connue²⁴) que nous rappellerons brièvement. Sous une hotte, on neutralise à froid avec du carbonate de potassium un mélange d'acide fluorhydrique et

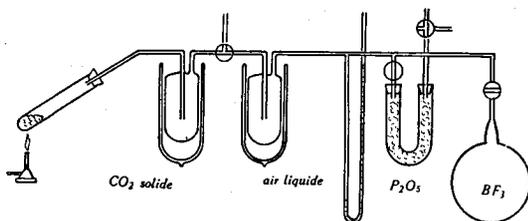
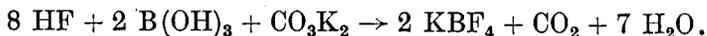


Fig. 5.

d'une solution d'acide borique. (Il est recommandé de le faire dans un récipient de platine.) On dissout alors dans un excès d'eau, on chauffe et on laisse évaporer l'eau qui entraîne l'acide fluorhydrique en excès. On laisse refroidir lentement et on filtre. On obtient ainsi une substance amorphe à consistance pâteuse. On la réchauffe à 270° C et on la laisse cristalliser alors très lentement en présence d'anhydride phosphorique sous une cloche évacuée. On obtient ainsi une poudre blanche très fine. La réaction se résume par l'équation



La figure 5 indique schématiquement l'appareil que nous avons employé pour la production du trifluorure de bore. La première

trappe est refroidie à la glace carbonique et la seconde à l'air liquide. Dans celle-ci le trifluorure de bore se solidifie.

Des précautions analogues à celles de la préparation s'imposent lors du remplissage de la chambre; nous avons employé le dispositif de la figure 6. Le petit ballon de verre, refroidi dans l'air liquide, permet de liquéfier le gaz et de le comprimer ensuite aisément dans la chambre jusqu'à la pression désirée.

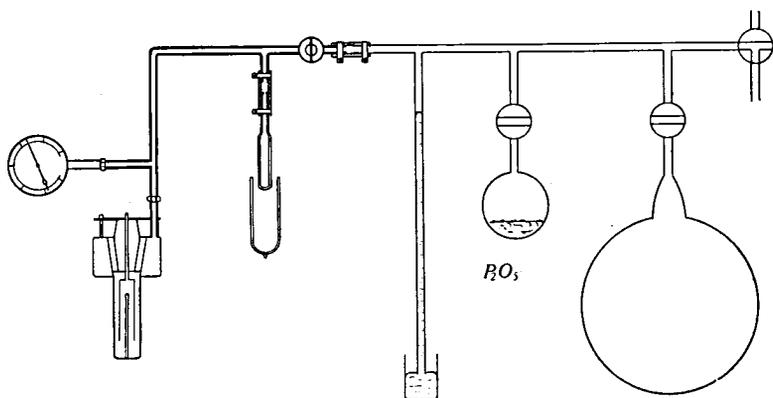


Fig. 6.

d) L'amplification et l'enregistrement des réactions déclenchées dans la chambre étaient assurés par un amplificateur linéaire déjà décrit²⁵, précédé d'un étage préamplificateur (lampe 38 montée en pentode) avec une résistance de grille de $4 \cdot 10^9$ ohms. La sortie de l'amplificateur attaquait, soit par l'intermédiaire d'un «scale of two», soit directement, la grille d'une thyatron coupant toutes les impulsions au-dessous d'un certain niveau et commandant un compteur mécanique du type des numérateurs téléphoniques. Toutes les tensions d'alimentation étaient stabilisées, le chauffage se faisait avec accus et les tensions d'anode et de grille-écran de la lampe préamplificatrice étaient fournies par une pile sèche.

La tension de la chambre était stabilisée et particulièrement bien filtrée. Tous les câbles étaient blindés et des découplages avaient été prévus aux endroits sensibles.

En l'absence de source le mouvement propre du compteur n'a jamais dépassé 4 coups par minute.

Dans la figure 8 nous donnons une photo de l'ensemble du dispositif de mesure.

6. Géométrie du dispositif.

Pour les mesures de diffusion une bonne géométrie, c'est-à-dire une bonne collimation et un faisceau parallèle, est essentielle. D'une part il est nécessaire de réduire au minimum des effets éventuels de diffusion multiple à l'intérieur de la chambre de diffusion de même que le plus grand angle de diffusion simple possible. D'autre part il faut éviter que la chambre de bore et la chambre de diffusion, puissent être atteintes par des neutrons étrangers au faisceau qu'on étudie, ou par des neutrons déjà diffusés qui rejoignent ce faisceau après de nouveaux chocs.

La collimation est déterminée par les diamètres de la chambre de bore et de la chambre de diffusion et les distances source—chambre de diffusion—chambre de bore, ainsi que par l'action du howitzer. Des écrans de cadmium et de bore évitent d'autre part que la chambre d'ionisation ne reçoive des neutrons extérieurs au faisceau qui a traversé la chambre de diffusion.

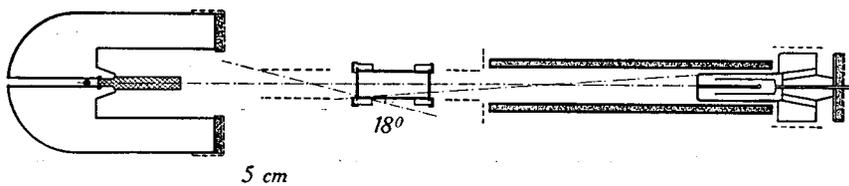


Fig. 7.

Dans la figure 7 nous donnons un schéma de la disposition relative du howitzer, du diffuseur et de la chambre d'ionisation. Les écrans de cadmium sont constitués par des feuilles de 1 mm d'épaisseur²⁶⁾ et ceux de bore par de la poudre d'acide borique comprimée, sous une épaisseur de 10 mm environ. Le diamètre de la chambre de bore est de 4,0 cm et celui de la chambre de diffusion de 3,8 cm. Le plus grand angle possible de diffusion simple est de 18 degrés, mais cette valeur maximum n'intervient qu'avec une très faible probabilité, en particulier grâce aux propriétés collimatrices du howitzer.

Quant à la diffusion multiple dans la chambre de diffusion, il est légitime de la négliger à condition que la longueur de la chambre soit plus petite que le libre parcours moyen des neutrons dans le gaz étudié.

Un autre aspect important de la géométrie du dispositif est l'alignement sur un même axe de ses différentes parties, ainsi que

la reproductibilité des positions de celles que l'on doit déplacer. A cet effet nous avons pris des précautions spéciales et pensons pouvoir assurer que les différentes pièces ont toujours été centrées les unes sur les autres à moins de 1 mm.

7. Organisation des mesures.

Les mesures de sections de diffusion totale consistent dans l'enregistrement du courant de neutrons alternativement, avec et sans gaz diffuseur. Cela se fait, en général, au moyen de deux chambres de diffusion exactement pareilles, l'une remplie de gaz, l'autre vide (témoin), que l'on replace successivement dans la même

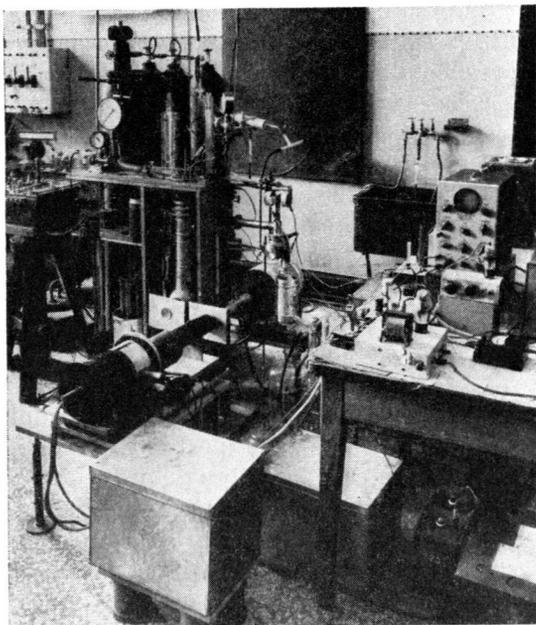


Fig. 8.

position sur le trajet des neutrons. Il est bien évident qu'avec notre dispositif, conçu pour des mesures aux basses températures, une telle méthode était inapplicable. Il nous était impossible en effet de déplacer la chambre de diffusion et nous ne pouvions songer à réaliser un témoin parfaitement équivalent à cette dernière à cause précisément de la variété des pièces qui l'entouraient dans la chambre de liquéfaction.

Dans ces conditions nous avons dû laisser la chambre de diffusion fixe et déplacer l'ensemble constitué, d'une part par le howitzer et d'autre part par la chambre d'ionisation et l'étage préamplificateur. Dans ce but nous avons monté chacune de ces deux parties sur un charriot (fig. 8). Les déplacements se faisaient à la main et des points d'arrêt assuraient, après chaque déplacement, le retour exact à la position initiale.

Dans l'une des positions les neutrons traversaient la chambre de diffusion et dans l'autre, le témoin construit de façon que la géométrie et la collimation soient les mêmes qu'avec la chambre.

Toutes nos mesures étaient organisées en cycles de 20 minutes de la façon suivante: 5 minutes avec diffuseur, 5 minutes avec témoin, 5 minutes avec diffuseur et avec cadmium, puis 5 minutes avec témoin et cadmium, et ainsi de suite.

Nous avons fait également quelques mesures dans d'autres conditions, en apparence plus simples, mais en réalité peu appropriées à la technique des basses températures. Après 20 minutes de mesures avec gaz diffuseur (alternativement toutes les 5 minutes avec et sans cadmium), nous faisons le vide dans la chambre de diffusion mesurons à vide pendant 20 minutes et recommençons le cycle avec la chambre pleine. L'avantage de cette méthode c'est qu'on évite l'emploi d'un témoin et l'erreur statistique supplémentaire qu'il introduit. Par contre avec la première méthode on réalise une grande économie de froid et on n'a pas à craindre d'erreur sur la pression du gaz lors des remplissages à froid de la chambre de diffusion.

La première méthode nous obligeait à déterminer avant et après chaque série de mesures le rapport entre le nombre de neutrons lents que le témoin et la chambre de diffusion vide laissaient passer. Ce rapport était un peu plus grand que l'unité et les différentes valeurs que nous avons obtenues au cours de nos mesures présentaient toutes entre elles des écarts plus petits que les erreurs statistiques.

3. Calcul et erreurs.

Le rapport témoin—diffuseur est donné par quatre nombres

a, b, c, d : $R = \frac{a-b}{c-d}$, avec:

a	=	nombre de neutrons enregistrés avec témoin	sans Cd
b	=	„ „ „ „ „ „	avec „
c	=	„ „ „ „ „ „	chambre vide sans „
d	=	„ „ „ „ „ „	„ „ avec „

L'erreur ΔR sur R est ainsi $\Delta R = \frac{1}{c-d} \sqrt{a+b+R^2(c+d)}$, en prenant pour erreurs sur les nombres enregistrés leur racine carrée.

La section efficace est ensuite calculée par la combinaison de ce nombre avec quatre nouveaux nombres A, B, C, D , dont la définition est la même que pour a, b, c, d , respectivement, à la seule condition d'y remplacer « chambre vide » par « chambre et gaz ». La transmission est donc $T = \frac{(C-D)R}{A-B}$ et en acceptant la loi de transmission exponentielle on a $\sigma = \frac{1}{nd} \log \frac{1}{T}$ où n est le nombre d'atomes, par cm^3 , du gaz diffuseur et d la longueur, en cm, de la chambre.

L'erreur sur σ est ensuite calculée par la formule

$$\Delta \sigma = \frac{1}{nd} \sqrt{\frac{C+D}{(C+D)^2} + \frac{A+B}{(A-B)^2} + \left(\frac{\Delta R}{R}\right)^2}.$$

Comme nous l'avons déjà remarqué, les conditions spéciales aux basses températures nous ont forcés à choisir une transmission de 75% environ. Ceci a entraîné un allongement de nos mesures. En effet, on peut se demander quelles sont les conditions optima de transmission du point de vue de l'erreur et, par conséquent, du temps de mesures. On est amené à chercher le minimum de la fonction $\frac{\Delta \sigma}{\sigma}$ lorsque T varie, mais il est impossible de résoudre rigoureusement ce problème. Dans notre cas des approximations raisonnables indiquent une transmission de 30% environ. Celle-ci serait donc la valeur qui donnerait l'erreur minimum pour un temps de mesure déterminé.

On voit aussi que la nécessité de tenir compte de l'erreur sur les mesures avec témoin a encore augmenté notre erreur statistique totale (voir n° 9).

9. Formules de Sachs et Teller.

L'article déjà cité de SACHS et TELLER contient malheureusement plusieurs erreurs typographiques qui nous ont forcé à refaire leur calculs. Nous croyons donc utile de donner ici les formules auxquelles conduit leur raisonnement, pour le cas qui nous intéresse (distribution de MAXWELL). On a, avec leur notation

$$\frac{\bar{\sigma}}{\sigma_H} = 4 (\mu_1 \mu_2 \mu_3 \mu)^{\frac{1}{2}} (T_0' + T_1' + \dots)$$

où

$$T_0' = \frac{2\lambda^{3/2}}{\pi(\lambda-a)} \left\{ \frac{\sqrt{a}}{\lambda^2} (\lambda - 2a) + (\lambda - a)^{-1/2} \operatorname{arc\,cotg} \left(\frac{\lambda}{a} - 1 \right)^{-1/2} \right\}$$

et

$$T_1' = -\frac{1}{90\mu^2} [a_1(J_1 + J_3) + a_2J_2]$$

avec

$$a_1 = \frac{1}{2} \sum_{i>j} (\mu_i - \mu_j)^2, \quad a_2 = 5 \sum_i n_i \mu_i^2$$

$$J_1 + J_3 = \frac{2\lambda^{3/2}}{\pi(\lambda-a)^3} \left\{ (\lambda^2 - 8\lambda a - 8a^2 - 15) (\lambda - a)^{-1/2} \operatorname{arc\,cotg} \left(\frac{\lambda}{a} - 1 \right)^{-1/2} \right. \\ \left. + \frac{1}{\lambda^2 \sqrt{a}} (a\lambda^3 + 14a^2\lambda^2 + 8\lambda^2 + 9a\lambda - 2a^2) \right\}$$

$$J_2 = \frac{2\lambda^{3/2}}{\pi(\lambda-a)^3} \left\{ 3(\lambda + 4a) (\lambda - a)^{-1/2} \operatorname{arc\,cotg} \left(\frac{\lambda}{a} - 1 \right)^{-1/2} \right. \\ \left. - \frac{\sqrt{a}}{\lambda} (13\lambda + 2a) \right\}.$$

Rappelons que dans ces formules le sens des symboles est le suivant :

$$\lambda = \frac{T_n}{T}, \quad a = \frac{1}{\mu} - 1, \quad \mu = \frac{1}{3} \sum_i \mu_i \quad \text{et} \quad \mu_i = \frac{1}{n_i + 1},$$

les n_i étant les composantes du tenseur $n = m M^{-1}$ par rapport aux axes principaux d'inertie de la molécule, m la masse du neutron et M le tenseur-masse du point matériel fictif, que les auteurs associent à la molécule.

Il est regrettable que la valeur de $\bar{\sigma}/\sigma_H$ soit encore très sensible au terme T_1' et que celui-ci soit justement proportionnel à la différence de deux termes presque égaux. La plus grande erreur à craindre nous semble provenir de ce terme T_1' . Or celui-ci décroît avec T (température du gaz) beaucoup plus rapidement que T_0' . Il est donc fort probable que l'accord entre la théorie et l'expérience soit meilleur pour les valeurs relatives aux basses températures.

D'autre part SACHS et TELLER, comme contrôle grossier de leur théorie, donnent la valeur de σ_H calculée d'après leur valeur théorique et les mesures de COHEN, GOLDSMITH et SCHWINGER⁸). Or ceux-ci ont fait leurs mesures à la température ordinaire avec des neutrons probablement de même température. Dans ces conditions on doit poser $\lambda=1$, dans les formules de SACHS et TELLER, et ce faisant on trouve $\bar{\sigma}/\sigma_H = 1,87$ et non pas 1,69 comme les auteurs l'indiquent. Nous n'avons pas pu comprendre l'origine de

cet écart, si ce n'est précisément dans la facilité avec laquelle une erreur peut s'introduire dans le calcul de T_1' .

On peut encore faire une objection à la façon dont nous comparons les valeurs théoriques et les valeurs expérimentales. En effet, la théorie donne une valeur moyenne de σ , tandis que nous ne mesurons pas un σ moyen mais plutôt une transmission moyenne. Cependant il est clair que cette approximation (qui a d'ailleurs toujours été admise) est d'autant plus légitime que la transmission est plus grande et nous avons précisément, pour les raisons déjà données, une transmission de 75% environ.

10. Résultats et discussion.

Nous avons déjà indiqué comment nous avons obtenu nos résultats expérimentaux ainsi que leurs erreurs. Nous avons calculé les grandeurs données par les formules de SACHS et TELLER (n° 9) en y remplaçant partout les symboles par leur valeur numérique prise avec 5 chiffres significatifs.

Pour les raisons exposées précédemment, nous ne pensons pas devoir tenir compte de la valeur théorique de $\bar{\sigma}/\sigma_H$ à 290° K pour le calcul de σ_H moyen. Nous indiquons celui qui résulte de nos mesures et des calculs à 77° K et à 20° K. Nous avons pris pour valeur la plus probable leur moyenne pondérée, en prenant pour poids les inverses des carrés des erreurs quadratiques moyennes des deux déterminations. Nous avons ainsi trouvé

$$\sigma_H = (19,6 \pm 1,4) \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2.$$

Les nombres obtenus sont résumés dans le tableau suivant

T	λ	$\bar{\sigma}/\sigma_H$ calc.	σ par proton mesuré	σ_H déduit
77° K	3,77	1,42	27,2±1,6	19,2±1,1
20° K	14,5	1,27	26,2±2,9	20,3±2,3

D'autre part nos mesures à 290° K ont servi à estimer le fonctionnement correct de notre dispositif de mesures. Notre valeur est $31,6 \pm 0,6$, en excellent accord avec la valeur $31,8 \pm 0,5$ trouvée par CARROL⁴⁾.

La valeur à 20° K, qui n'a malheureusement pas pu être déterminée avec une plus grande précision, est cependant suffisamment distincte de la valeur à 290° K pour que l'existence d'un effet appréciable de la température ne fasse pas de doute.

Par ailleurs, notre méthode de mesure de σ_H est fondée sur des considérations de nature purement moléculaire, qui peuvent être considérées comme définitivement acquises. Tandis que les mesures précédentes de σ_H , même les plus précises s'appuyaient toutes sur des hypothèses nucléaires moins indiscutables, en particulier sur la supposition que les interactions nucléaires sont indépendantes de la vitesse des neutrons au-dessous d'une certaine limite. On peut donc dire que nos mesures sont complètement indépendantes de ces dernières. Or, tandis que COHEN, GOLDSMITH et SCHWINGER trouvent $\sigma_H = 20 \pm 2$, que HANSTEIN mesure $\sigma_H = 21 \pm 1$, nous sommes conduits à la valeur $\sigma_H = 19,6 \pm 1,4$, en très bon accord avec les précédentes. Ce résultat constitue donc une justification à posteriori de la légitimité de l'hypothèse nucléaire que nous venons de rappeler.

11. Conclusions.

Il nous semble légitime de tirer de notre travail les conclusions suivantes:

1) Il existe un appréciable effet de température sur la section efficace de diffusion des neutrons lents par des molécules hydrogénées gazeuses.

A 300° K, celle-ci a la valeur $31,6 \pm 0,6$ pour l'hydrogène gazeux, en bon accord avec les valeurs déjà connues.

2) Dans les limites de son domaine d'application, la théorie de SACHS et TELLER donne une description quantitative de cet effet, du moins aux basses températures.

3) La section efficace de diffusion des neutrons de faible énergie par le proton libre initialement au repos est comprise dans l'intervalle $\sigma_H = 19,6 \pm 1,4$, en bon accord avec d'autres mesures.

4) Pour l'hydrogène à 20° K, l'influence de l'état d'aggrégation sur la valeur de la section efficace de diffusion des neutrons C de 300° K est inférieure aux erreurs d'observation actuelles. En effet, BRICKWEDDE et collaborateurs¹⁵⁾ trouvent pour l'hydrogène liquide $\sigma = 24,0$, tandis que nous trouvons pour l'hydrogène gazeux, à la même température, $\sigma = 26,2 \pm 2,9$.

5) Toutefois certaines conclusions sur l'absence (en général) d'un effet de l'état d'aggrégation (voir, par ex.)⁴⁾ semblent pouvoir être mises en doute, les valeurs comparées se rapportant à des températures nettement différentes. En fait la section efficace de l'état liquide est vraisemblablement différente de celle de l'état gazeux par suite du champ intermoléculaire.

Pour l'hydrogène l'absence d'un effet très prononcé pourrait s'expliquer²⁷⁾ de la façon suivante: les mesures de l'effet Raman dans l'hydrogène liquide²⁸⁾ ainsi que celles des chaleurs d'évaporation et de fusion de l'hydrogène normal et du parahydrogène²⁹⁾ montrent que les molécules d'hydrogène à l'état liquide exécutent encore des rotations libres, ce qui semble bien indiquer une faible interaction moléculaire.

Dans cet ordre d'idées, il serait intéressant d'étudier l'oxygène ou l'azote. En effet, il semble que pour ces éléments et, en général, pour toutes les molécules non polaires, l'effet Raman³⁰⁾ est insensible à l'état d'aggrégation. D'autre part d'après PAULING³¹⁾, à l'état solide, ce n'est qu'au-dessus des températures de transition (44,8 et 35,4, respectivement) que la plupart des molécules d'oxygène et d'azote sont en rotation libre. Un effet décelable sur la diffusion des neutrons est donc à prévoir à très basse température.

Il en serait de même pour le méthane au-dessus de la température de transition malgré la très basse valeur de celle-ci (20,4° K).

6) Enfin, les considérations qui précèdent, en liaison éventuelle avec la méthode théorique de SACHS et TELLER, semblent susceptibles d'ouvrir aux neutrons une nouvelle voie d'application: celle de l'étude de certains effets des liaisons moléculaires hydrogénées non décelables par les rayons X.

Je dois de très vifs remerciements à Monsieur le Professeur P. SCHERRER pour l'accueil qu'il m'a réservé dans son Institut, ainsi que pour ses encouragements et les moyens de travail qu'il a bien voulu mettre à ma disposition.

Je dois encore remercier tous les mécaniciens de l'Institut pour la perfection de leur travail et leur bonne volonté, et, en particulier, MM. WEBER et WILD, ainsi que M. KELLER pour son aide dans les mesures.

Je remercie aussi mon camarade J. ROSSEL pour sa collaboration dans le montage du liquéfacteur et l'exécution des mesures et surtout pour le profit que j'ai tiré de nos nombreuses discussions.

Je tiens enfin à exprimer ici ma profonde reconnaissance à mon Pays auquel je suis redevable, par l'intermédiaire de l'Instituto para a Alta Cultura, d'une bourse d'études, ainsi qu'à la Faculté des Sciences de Lisbonne, en particulier dans la personne de mon vénéré maître Monsieur le Professeur A. C. SOARES, pour le congé qui m'a été accordé.

Zurich, Institut de Physique de l'E. P. F.

Bibliographie.

- 1) FERMI, E., Ric. Scient. **7**, 13 (1936).
- 2) BETHE, H. A., Rev. Mod. Phys. **9**, 124 (1937).
- 3) ARLEY, N., Kgl. Dansk. Vid. Selsk **16**, 1 (1938).
- 4) CARROL, H., Phys. Rev. **60**, 702 (1941).
- 5) SACHS, R. G., et TELLER, E., Phys. Rev. **60**, 18 (1941).
- 6) SCHWINGER, J., Phys. Rev. **58**, 1004 (1940).
- 7) AMALDI, E., et FERMI, E., Phys. Rev. **50**, 899 (1936).
- 8) CARROL, H., et DUNNING, J. R., Phys. Rev. **54**, 541 (1938).
- 9) SIMONS, L., Phys. Rev. **55**, 792 (1939).
- 10) COHEN, V. W., GOLDSMITH, H. H., et SCHWINGER, J., Phys. Rev. **55**, 106 (1939).
- 11) HAMMERMESH, M., et SCHWINGER, J., Phys. Rev. **55**, 679 (1939).
- 12) AMALDI, E., BOCCIARELLI, D., et TRABACCHI, G. C., Ric. Scient. **11**, 121 (1940).
- 13) COHEN, V. W., GOLDSMITH, H. H., et HAMMERMESH, M., Phys. Rev. **57**, 352 (1940).
- 14) HANSTEIN, H. B., Phys. Rev. **60**, 702 (1941).
- 15) BRICKWEDDE, F. G., DUNNING, J. R., HOGE, A. J., et MANLEY, J. H., Phys. Rev. **54**, 266 (1938).
- 16) ALVAREZ, L. W., et PITZER, K. S., Phys. Rev. **58**, 1003 (1940).
- 17) DUNNING, J. R., PEGRAM, G. B., FINK, G. A., MITCHELL, D. P., et SEGRÈ, E., Phys. Rev. **48**, 704 (1935).
- 18) FINK, G. A., DUNNING, J. R., PEGRAM, G. B., et MITCHELL, D. P., Phys. Rev. **49**, 103 (1936).
- 19) GIBERT, A., et ROSSEL, J., Helv. Phys. Acta **18**, 343 (1945).
- 20) PENNING, F. M., Physica **4**, 71 (1937).
- 21) KEESOM, W. H., et HOUTHOF, D. J., Comm., Leiden, Supp. **65d**; Rapp. Comm., 5e Cong. Int. Froid (1928).
- 22) FINK, G. A., Phys. Rev. **50**, 738 (1936). MANLEY, J. H., HAWORT, L. J., et LUEBKE, E. A., Phys. Rev. **61**, 152 (1942).
- 23) HELLRIEGEL, Ber. Dtsch. Chem. Ges. **70**, 689 (1937).
- 24) VORLÄNDER, HOLLATZ et FISCHER, Ber. Dtsch. Chem. Ges. **65**, 535 (1932).
- 25) HUBER, P., Helv. Phys. Acta **14**, 164 (1941).
- 26) DUNNING, J. R., PEGRAM, G. B., FINK, G. A., et MITCHELL, D. P., Phys. Rev. **48**, 265 (1935).
- 27) SCHWINGER, J., et TELLER, E., Phys. Rev. **52**, 286 (1937).
- 28) MCLENNAND, J. C., et MCLEOD, J. H., Nature **123**, 160 (1929).
- 29) FARKAS, A., Orthohydrogen, Parahydrogen and Heavy Hydrogen, p. 43, Cambridge (1935).
- 30) KOHLRAUSCH, W., Smekal-Raman-Effekt (et Ergänzungsband).
- 31) PAULING, L., Phys. Rev. **36**, 430 (1930).

CURRICULUM VITAE

Je suis né à Lisbonne le 1er août 1914. Le certificat de maturité (classe de sciences) m'y fut délivré en 1933 au Lycée «Luiz de Camoes». J'ai alors suivi pendant cinq ans les cours de la Faculté des Sciences de l'Université de Lisbonne où j'ai obtenu le diplôme de licence. Depuis 1938, je suis assistant de physique à l'Université de Lisbonne. A partir de juin 1942, j'ai travaillé à l'Institut de Physique de l'E.P.F., sous la direction de Monsieur le Professeur Dr. P. SCHERRER.
