

## RECOMBINAISON ET DIFFUSION DES IONS GAZEUX.

1° La connaissance exacte des lois relatives au déplacement et à la recombinaison des ions dans les gaz pour des pressions et des températures variées est de la plus haute importance, en particulier pour les progrès ultérieurs des théories de la décharge disruptive où ces ions jouent le rôle essentiel, pour l'étude des phénomènes de conductibilité des gaz chauds et des flammes, enfin pour la compréhension des faits météorologiques de plus en plus nombreux qui sont liés à la présence d'ions dans l'atmosphère.

La plus actuelle peut-être de ces applications, la théorie des phénomènes disruptifs, a fait récemment de tels progrès que M. Townsend<sup>(1)</sup>, dans un travail récent, a pu calculer à quelques volts près les potentiels explosifs en s'appuyant sur l'étude du courant qui précède la décharge disruptive dans les gaz à basse pression. Ce phénomène préliminaire ainsi élucidé, la décharge disruptive qui lui succède modifie profondément la répartition du champ électrique dans le gaz; des ions sont présents en quantité considérable, et le régime permanent qui s'établit dépend pour une large part de la loi suivant laquelle les ions de signes contraires se recombinent à la pression généralement très faible où l'étude de la décharge est particulièrement intéressante. Le fait qu'un tube de Lecher, où la décharge vient de passer, conserve pendant un temps relativement très long la possibilité de s'illuminer facilement dans un champ électrique, semble indiquer que cette recombinaison se produit beaucoup plus lentement aux basses pressions qu'à la pression ordinaire.

2° En effet, comme conséquence de déterminations directes du rapport :

$$\varepsilon = \frac{\alpha}{4\pi(k_1 + k_2)}$$

entre le coefficient de recombinaison des ions dans les gaz et le produit par  $4\pi$  de la somme des mobilités des ions positifs et négatifs dans un champ électrique, j'ai obtenu<sup>(1)</sup> ce résultat qu'aux pressions inférieures à la pression atmosphérique le coefficient  $\alpha$  varie sensiblement comme la pression du gaz. Ce résultat, d'accord avec des prévisions basées sur la théorie cinétique des gaz est en contradiction avec les expériences de M. Mc Clung<sup>(2)</sup>, qui obtient un coefficient de recombinaison constant. Je voudrais montrer comment ces expériences sont entachées d'une grave cause d'erreur, par suite de la diffusion des ions vers les parois métalliques du récipient qui contient le gaz conducteur, et comment il est vraisemblable que les valeurs obtenues par M. Mc Clung aux faibles pressions ( $\frac{1}{8}$  d'atmosphère pour la plus petite) sont au moins

(1) J.-S. TOWNSEND, *Phil. Mag.*, décembre 1904.

(2) P. LANGEVIN, *C. R.*, t. CXXXVII, p. 177; 1903.

(3) R. K. Mc CLUNG, *Phil. Mag.*, t. III, p. 283; 1902.



quatre ou cinq fois trop fortes. De plus, la même observation s'applique aux mesures que le même auteur a publiées récemment<sup>(1)</sup> sur la variation du coefficient de recombinaison avec la température, de sorte que vraisemblablement la variation exacte, encore inconnue et qu'il serait de la plus grande importance d'établir de façon certaine, est beaucoup moins rapide que celle indiquée par M. Mc Clung.

3° La méthode qu'il emploie dans ses deux travaux, indiquée tout d'abord par M. Rutherford<sup>(2)</sup>, consiste à ioniser le gaz placé entre deux lames métalliques parallèles au moyen de rayons de Röntgen, qui libèrent par unité de volume une quantité d'électricité  $q$  de chaque signe, mesurée par le courant de saturation qu'un champ intense permet d'obtenir entre les deux lames.

Laissant ensuite, en l'absence de champ, les ions s'accumuler jusqu'à ce qu'un régime permanent s'établisse par équilibre entre la production et la recombinaison, on obtient par unité de volume une densité  $n$  des charges de chaque signe telle que :

$$q = \alpha n^2;$$

$n$  est mesuré par la quantité d'électricité qu'un champ intense établi brusquement peut extraire du gaz où le régime permanent s'est établi.

4° Or, dans les mesures de M. Mc Clung, le gaz était placé dans un récipient contenant des feuilles d'aluminium parallèles, distantes de 2 cm environ, et il est facile de montrer que, dans ce cas, la diffusion des ions vers les lames joue un rôle important dans le régime permanent, et fait disparaître des quantités d'électricité qui peuvent être *plusieurs fois supérieures* à celle que la recombinaison détruit.

Je supposerai, pour simplifier, que les ions des deux signes ont même coefficient de diffusion  $D$ , de sorte que, leur diffusion s'opérant suivant la même loi, il n'y aura en aucun point du gaz excès de charges d'un signe et, par suite, aucun champ électrique, si les lames parallèles sont maintenues au même potentiel.

Soit  $2a$  la distance de ces lames; la distribution des ions quand le régime permanent est établi est évidemment symétrique par rapport au plan médian  $M$ , et il suffit de connaître la densité  $n$  des charges libres de chaque signe pour chaque distance  $x$  comprise entre 0 et  $a$ . Au voisinage immédiat de la lame, pour  $x = 0$ , la diffusion maintient nulle la densité  $n$ ; soit  $n_0$  la valeur maximum qu'elle prend au milieu  $M$  pour  $x = a$ . Dans aucun cas, sauf pour une vitesse de diffusion nulle,  $n_0$  ne peut atteindre la valeur qu'elle prendrait sous l'action de la recombinaison seule :

$$n_1 = \sqrt{\frac{q}{\alpha}}$$

(1) R. K. MC CLUNG, *Phil. Mag.*, t. VI, p. 655; 1903.

(2) RUTHERFORD, *Phil. Mag.*, t. XLIV, p. 422; 1897.



Sous l'influence de la diffusion, chaque unité de surface d'un plan parallèle aux lames, d'abscisse  $x$ , est traversée dans le sens positif pendant l'unité de temps par une quantité d'électricité :

$$-D \frac{dn}{dx}.$$

L'accroissement qui en résulte dans la tranche d'épaisseur  $dx$  est :

$$D \frac{d^2n}{dx^2} dx,$$

qui s'ajoute à la production  $q dx$  pour équilibrer la recombinaison  $\alpha n^2 dx$ , d'où l'équation :

$$q + D \frac{d^2n}{dx^2} = \alpha n^2.$$

Pour intégrer cette équation, il suffit de l'écrire :

$$D \frac{d^2n}{dx^2} = \alpha n^2 - q,$$

et d'intégrer après multiplication par  $dn$  :

$$\frac{D}{2} \left( \frac{dn}{dx} \right)^2 = \frac{\alpha n^3}{3} - qn + C;$$

au milieu, pour  $n = a$ , on a  $\frac{dx}{dn} = 0$ , ce qui donne, pour la constante  $C$  :

$$(1) \quad C = qn_0 - \frac{\alpha n_0^3}{3},$$

$$dx = \frac{dn}{\sqrt{\frac{2}{D} \left( \frac{\alpha n^3}{3} - qn + C \right)}},$$

$$x = \int_0^{n_0} \frac{dn}{\sqrt{\frac{2}{D} \left( \frac{\alpha n^3}{3} - qn + C \right)}}$$

avec la condition, qui détermine la densité  $n_0$  :

$$(2) \quad a = \int_0^{n_0} \frac{dn}{\sqrt{\frac{2}{D} \left( \frac{\alpha n^3}{3} - qn + C \right)}}$$

La perte d'ions par diffusion pour la moitié considérée de l'intervalle des lames est égale à ce qui traverse la surface de la lame pour  $x = 0$ , c'est-à-dire :

$$D \left( \frac{dn}{dx} \right)_0 = \sqrt{2CD}.$$



La perte totale, tant par diffusion que par recombinaison, est égale à la production  $qa$  dans le volume considéré par unité de temps, de sorte que le rapport  $\rho$  de la perte par diffusion à la perte totale a pour valeur :

$$(3) \quad \rho = \frac{\sqrt{2CD}}{qa}.$$

On peut, pour trouver ce rapport  $\rho$  en fonction des données  $D$ ,  $q$ ,  $a$ , prendre pour variable auxiliaire  $n_0$ , qui permet, par (1), (2), (3), de calculer  $a$  et  $\rho$ .

5° Pour simplifier les expressions, il est commode d'employer des *variables réduites* qui mettent plus nettement en évidence la fonction des données dont dépend le rapport  $\rho$ ; ces variables réduites sont :  $d$ , que nous appellerons la *distance réduite* :

$$d = a \sqrt{\frac{4}{4D^2} \frac{qa}{\alpha}}, \quad \xi = x \sqrt{\frac{4}{4D^2} \frac{qa}{\alpha}};$$

et la densité réduite  $v$  :

$$v = \frac{n}{n_1} = n \sqrt{\frac{\alpha}{q}}.$$

On obtient alors les relations :

$$\xi = \frac{1}{2} \int_0^v \frac{dv}{\sqrt{\frac{v^3}{3} - v - \left(\frac{v_0^3}{3} - v_0\right)}}, \quad d = \frac{1}{2} \int_0^{v_0} \frac{dv}{\sqrt{\frac{v^3}{3} - \frac{v_0^3}{3} - (v - v_0)}}$$

$$\rho = \frac{1}{d} \sqrt{v_0 \frac{v_0^3}{3}};$$

$\rho$  et  $d$  sont des fonctions de  $v_0$ , de sorte qu'au total le rapport cherché  $\rho$  de la perte par diffusion à la perte totale est fonction uniquement de la distance réduite  $d$ . Pour trouver cette fonction, il suffit de calculer  $\rho$  et  $d$  pour une série de valeurs de  $v_0$  et de construire une courbe en portant  $d$  en abscisses et la valeur correspondante de  $\rho$  en ordonnées.

6° Avant d'indiquer comment peut s'effectuer le calcul de  $d$  en fonction de  $v_0$ , il faut remarquer que la quantité intéressante au point de vue de la mesure du coefficient de recombinaison est la quantité totale d'électricité qu'extraira du gaz où le régime permanent existe un champ intense établi brusquement. C'est pour le demi-intervalle des lames :

$$Q = \int_0^{v_0} n dx = \int_0^{v_0} \frac{n dn}{\sqrt{\frac{2}{D} \left(\frac{an^3}{3} - qn + C\right)}}$$

de sorte que la densité apparente par unité de volume sera :

$$u' = \frac{Q}{a},$$



et on obtiendra le coefficient de recombinaison apparent  $\alpha'$  (celui que donne M. Mc Clung) en admettant que, sous cette densité apparente, la destruction est due tout entière à la recombinaison :

$$q = \alpha' n'^2 = \alpha \frac{Q^2}{a^2},$$

et le rapport du coefficient vrai  $\alpha$  au coefficient apparent  $\alpha'$  est :

$$\rho' = \frac{\alpha}{\alpha'} = \frac{\alpha Q^2}{a q^2};$$

$\rho'$  ne dépend aussi que de la distance réduite  $d$ , car on peut l'exprimer en fonction de celle-ci et de  $v_0$  par :

$$\rho' = \frac{1}{4d^2} \left[ \int_0^{v_0} \frac{v \, dv}{\sqrt{\frac{v^3 - v_0^3}{3} - (v - v_0)}} \right]^2.$$

Il est facile de déduire des définitions qu'on a toujours :

$$\rho' < 1 - \rho$$

et qu'aux grandes valeurs de la distance réduite  $d$  on a sensiblement

$$\rho' = 1 - \rho.$$

De plus, pour les grandes valeurs de  $d$ , il est facile d'obtenir une expression approchée de  $\rho$  et, par suite, de  $\rho'$ , une valeur asymptotique des fonctions

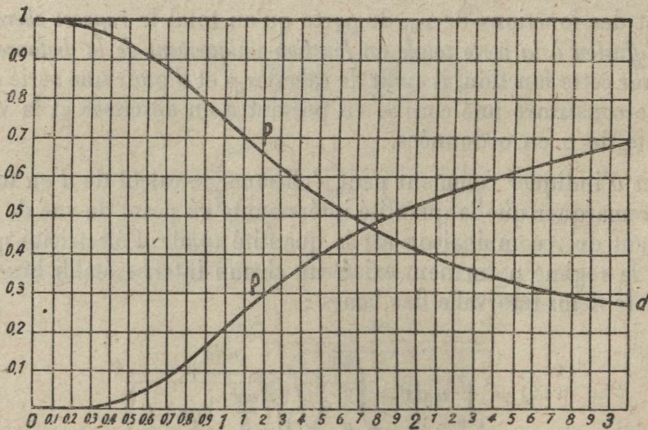


Fig. 46.

$\rho$  et  $\rho'$ . En effet, quand  $d$  est grand, c'est-à-dire quand le coefficient de diffusion  $D$  est faible, la densité  $n$  des charges prend au milieu de l'intervalle et



sur une grande étendue de part et d'autre sensiblement la valeur  $n_1$ , l'effet de la diffusion n'étant sensible qu'au voisinage immédiat des lames métalliques ; ceci revient à faire  $\nu_0 = 1$ .

On obtient :

$$\rho = \frac{1}{d} \sqrt{\frac{2}{3}}$$

et

$$\rho' = 1 - \frac{1}{d} \sqrt{\frac{2}{3}}$$

7° Pour obtenir la relation exacte entre  $\rho$ ,  $\rho'$  et  $d$ , il faut calculer les intégrales elliptiques figurant dans les expressions de  $d$  et de  $\rho'$ . Je ne donnerai pas le détail des calculs qui permettent de les ramener à la forme canonique et de les déduire des tables de Legendre où figurent les fonctions :

$$F_\theta(\varphi) = \int_0^\varphi \frac{d\varphi}{\sqrt{1 - \sin^2\theta \sin^2\varphi}}$$

et

$$E_\theta(\varphi) = \int_0^\varphi \sqrt{1 - \sin^2\theta \sin^2\varphi} d\varphi$$

pour les diverses valeurs de  $\theta$  et de  $\varphi$ .

On aura :

$$d = \sqrt{\frac{4}{4 - \nu_0^2}} \left[ F_\theta\left(\frac{\pi}{2}\right) - E_\theta(\varphi) \right]$$

avec :

$$\sin^2\theta = \frac{1}{2} \left[ 1 + \sqrt{\frac{3\nu_0^2}{4 - \nu_0^2}} \right] \quad \text{et} \quad \sin^2\varphi = \frac{3(2 - \nu_0^2) - \nu_0\sqrt{3(4 - \nu_0^2)}}{6(1 - \nu_0^2)}$$

et  $\rho'$  a pour valeur :

$$\begin{aligned} & \frac{1}{4d^2} \left[ \int_0^{\nu_0} \frac{\nu d\nu}{\sqrt{\frac{\nu^3 - \nu_0^3}{3} - (\nu - \nu_0)}} \right]^2 \\ &= \left[ \sqrt{3(4 - \nu_0^2)} \left( 1 - \frac{E_\theta\left(\frac{\pi}{2}\right) - E_\theta(\varphi)}{F_\theta\left(\frac{\pi}{2}\right) - F_\theta(\varphi)} \right) - \frac{\nu_0 + \sqrt{3(4 - \nu_0^2)}}{2} \right]^2 \end{aligned}$$

Je remercie M. Moulin, mon préparateur, d'avoir bien voulu effectuer les calculs numériques consécutifs qui ont conduit à construire les courbes représentant  $\rho$  et  $\rho'$  en fonction de  $d$ . Aux valeurs de  $d$  notablement plus grandes



que celles indiquées sur les courbes, on peut sensiblement admettre l'exactitude des valeurs asymptotiques données plus haut.

8° Il est facile d'appliquer ces résultats aux expériences de M. Mc Clung. Des nombres qu'il donne dans son premier Mémoire, je déduis les valeurs suivantes pour les expériences faites à la pression atmosphérique :

$$a = 1 \text{ cm,}$$

$q = 0,8 \times 10^{-2}$  unités électrostatiques par centimètre cube et par seconde.

En adoptant pour  $\alpha$  la valeur 3 200 <sup>(1)</sup>, que j'ai donnée, et pour D la valeur 0,4 intermédiaire entre celles que M. Townsend a obtenues <sup>(2)</sup> pour les ions positifs et négatifs, on obtient pour la distance réduite :

$$d = 8 \text{ environ,}$$

et d'après la valeur asymptotique :

$$\rho = 0,9.$$

La valeur 3 384 obtenue par M. Mc Clung serait ainsi trop forte d'un dixième environ, et la correction faite donne environ 3 100, valeur très voisine de 3 200.

L'erreur ainsi commise, relativement peu importante à la pression atmosphérique, s'exagère énormément aux faibles pressions. Admettant en effet que l'ionisation  $q$ , pour le même rayonnement, soit proportionnelle à la pression, que  $\alpha$  varie aussi, comme je l'ai montré, dans le même rapport, D étant d'autre part, d'après les expériences de M. Townsend <sup>(3)</sup>, inversement proportionnel à la pression, il en résulte que  $d$  varie comme la pression, et que, pour 0,125 atmosphère, pression minimum employée par M. Mc Clung, on aura :

$$d = 1,$$

d'où, d'après la courbe :

$$\rho' = 0,2,$$

c'est-à-dire que le coefficient obtenu par M. Mc Clung serait *cinq fois trop grand*; si l'on tient compte d'ailleurs de la diffusion qui pouvait se produire non plus vers les lames, mais vers le gaz entourant le faisceau conique de rayons, source de l'ionisation, et qui agit dans le même sens que la diffusion vers les lames, si l'on tient compte de l'incertitude de corrections faites sur des données approximatives, on pourra considérer comme tout à fait vraisemblable, que le résultat soit huit fois trop grand au lieu de l'être cinq fois, et

(1) P. LANGEVIN, *Ann. Chim. Phys.*, 7<sup>e</sup> série, t. XXVIII, p. 437.

(2) J.-S. TOWNSEND, *Phil. Trans.*, A. 193, p. 129; 1900.

(3) J.-S. TOWNSEND, *Phil. Trans.*, A. 195, p. 219; 1900.



que le coefficient  $\alpha$ , au lieu de rester constant entre 1 atmosphère et  $\frac{1}{8}$ , varie en réalité, comme je l'ai indiqué, proportionnellement à la pression.

9° Les données numériques me manquent pour appliquer une correction analogue aux mesures relatives à la variation de  $\alpha$  avec la température; mais il est vraisemblable, étant donné que les mobilités des ions et par suite leurs coefficients de diffusion augmentent très vite avec la température, — au point que, dans les flammes, la mobilité des ions négatifs est au moins mille fois plus grande qu'à la température ordinaire, — que, toutes choses égales d'ailleurs, la distance réduite  $d$  diminue rapidement quand la température s'élève, en même temps que l'erreur commise sur  $\alpha$  augmente.

La forme des courbes montre nettement que, pour des valeurs de  $d$  qui ne sont pas beaucoup inférieures à l'unité,  $p'$  devient très petit, et par suite l'erreur sur  $\alpha$  devient énorme, la presque totalité de la disparition des charges libérées dans le gaz étant due à la diffusion.

10° Pour diminuer l'erreur, il importe d'augmenter  $p'$  en choisissant pour  $d$ , c'est-à-dire pour  $q$  et  $a$ , des valeurs aussi grandes que possible, l'accroissement de  $a$  étant le plus important, puisque  $q$  ne figure dans  $d$  que par sa racine quatrième. L'accroissement de  $a$  est limité par la difficulté de recueillir instantanément tous les ions présents dans le gaz, quand le régime permanent s'est établi, puisqu'un champ intense est nécessaire et que la différence de potentiel correspondante augmente rapidement avec  $a$ . J'ai montré en effet <sup>(1)</sup> que, si la quantité  $Q_0$  est présente dans le gaz au moment où l'on établit le champ  $X$  correspondant à une densité superficielle  $\sigma$ , la quantité  $Q$  recueillie par les lames est donnée par :

$$\frac{\varepsilon Q}{\sigma} = L \left( 1 + \frac{\varepsilon Q_0}{\sigma} \right),$$

$\varepsilon$  ayant la signification indiquée au début et représentant le rapport du nombre des recombinaisons entre des ions de signes contraires au nombre de leurs collisions. L'erreur relative commise sur  $Q_0$  est donc en première approximation  $\frac{\varepsilon Q_0}{\sigma}$ , ce qui conduit, si l'on consent une erreur donnée, à prendre  $\sigma$  proportionnel à  $Q_0$ . Or, si l'intensité  $q$  d'ionisation est constante,  $Q_0$  est proportionnel à  $a$ ,  $\alpha$  et  $X$  également; donc la différence de potentiel à employer est proportionnelle à  $a^2$ .

11° Un autre moyen de tourner la difficulté consiste à remarquer que le régime permanent correspondant à la recombinaison s'établit en général beaucoup plus vite que celui de diffusion. En effet, le régime permanent de recombinaison est déterminée par l'équation

$$(4) \quad \frac{dn}{dt} = q - \alpha n^2$$

(1) P. LANGEVIN, *Ann. Chim. Phys.*, 7<sup>e</sup> série, t. XXVIII, p. 437.



et l'intégrale de cette équation fait figurer l'exponentielle de  $2t\sqrt{qa}$ , de sorte que le temps nécessaire à l'établissement du régime permanent est de l'ordre de :

$$T = \frac{1}{2\sqrt{qa}}$$

Pour étudier le régime variable de diffusion, nous supposons que celle-ci agit seule. L'équation du régime variable, qui sera en général :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = q - an^2 + D \frac{\partial^2 n}{\partial x^2},$$

se réduit à l'équation aux dérivées partielles :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = q + D \frac{\partial^2 n}{\partial x^2},$$

la solution devant satisfaire aux conditions suivantes :

Pour  $t = 0$ ,  $n = 0$ , quel que soit  $x$ ,

Pour  $x = 0$ ,  $n = 0$ , quel que soit  $t$ ,

Pour  $x = a$ ,  $\frac{dn}{dx} = 0$ , quel que soit  $t$ .

Cette solution s'obtient par la méthode ordinaire, qui donne :

$$(5) \quad \sum_{K=0}^{\infty} A_K \left[ 1 - e^{-\frac{(2K+1)^2 D \pi^2}{4a^2} t} \right] \sin \frac{(2K+1)\pi}{2a} x$$

La constante  $A_K$  se détermine par le développement en série trigonométrique de la fonction :

$$\frac{q}{D} x \left( a - \frac{x}{2} \right) = \sum A_K \sin \frac{(2K+1)\pi}{2a} x.$$

L'établissement du régime permanent de diffusion correspond aux exponentielles qui figurent dans l'expression (5). Celle de ces exponentielles qui disparaît le plus lentement est la première, pour  $K = 0$ ; de sorte que la durée du régime variable de diffusion est de l'ordre de :

$$T' = \frac{4a^2}{\pi^2 D}$$

Le rapport des durées d'établissement des régimes permanents de recombinaison et de diffusion est donc :

$$\frac{T}{T'} = \frac{\pi^2 D}{8a^2 \sqrt{qa}} = \frac{\pi^2}{32d^2},$$



$d$  étant la *distance réduite* que l'on cherche à rendre aussi grande que possible pour rendre la recombinaison prédominante.

Ce rapport prendra donc des valeurs notablement inférieures à l'unité et l'on pourra gagner beaucoup, diminuer beaucoup la correction de diffusion, en ne laissant pas le régime permanent s'établir complètement. On laissera la radiation agir pendant un temps connu  $t$  de l'ordre de  $T$ , et par conséquent assez inférieur à  $T'$  pour que la diffusion ne joue pas encore de rôle appréciable, et on mesurera, comme dans la méthode de Rutherford, la densité  $n$  des ions accumulés au bout de ce temps  $t$ .  $\alpha$  se calculera par la relation suivante, déduite de l'équation (4) :

$$q = \alpha n^2 \left[ \frac{e^{2t} \sqrt{q\alpha + 1}}{e^{2t} \sqrt{q\alpha} - 1} \right]^2,$$

qui, pour  $t$  infini, prend la forme employée par M. Mc Clung :

$$q = \alpha n^2.$$

#### Conclusion.

12° L'indépendance, observée par M. Mc Clung, du coefficient de recombinaison des ions et de la pression du gaz, est certainement inexacte à cause d'une influence de la diffusion des ions, qui peut devenir prépondérante aux faibles pressions ou aux températures élevées.

Les corrections approximatives qu'on peut faire subir de ce chef aux résultats de M. Mc Clung les rapprochent beaucoup de ceux que j'ai déduits de mes expériences sur la mesure de  $\varepsilon$  et qui correspondent, au-dessous de la pression atmosphérique, à un coefficient de recombinaison proportionnel à la pression.

L'accroissement rapide de la recombinaison avec la température, obtenu également par M. Mc Clung, est entaché de la même cause d'erreur.

Enfin il est possible d'atténuer beaucoup l'influence perturbatrice de la diffusion en ne laissant pas le régime permanent s'établir et en profitant de ce fait qu'en général le régime variable de diffusion durera beaucoup plus longtemps que celui de recombinaison.