Robert Saporte D. Blanc J. Comby J. Cabé

Propriétés des compteurs de Geiger-Muller à parois de verre et graphitage externe contenant de la vapeur d'ammoniac

Annales de la faculté des sciences de Toulouse 4^e série, tome 25 (1961), p. 97-110 http://www.numdam.org/item?id=AFST_1961_4_25_97_0

© Université Paul Sabatier, 1961, tous droits réservés.

L'accès aux archives de la revue « Annales de la faculté des sciences de Toulouse » (http://picard.ups-tlse.fr/~annales/) implique l'accord avec les conditions générales d'utilisation (http://www.numdam.org/conditions). Toute utilisation commerciale ou impression systématique est constitutive d'une infraction pénale. Toute copie ou impression de ce fichier doit contenir la présente mention de copyright.

\mathcal{N} umdam

Article numérisé dans le cadre du programme Numérisation de documents anciens mathématiques http://www.numdam.org/

Propriétés des compteurs de Geiger-Muller à parois de verre et graphitage externe contenant de la vapeur d'ammoniac

Centre de Physique Nucléaire, M. Robert Saporte Service de Physique P.C.B.

Résumé. — On a introduit dans les compteurs à cylindre de verre et graphitage externe certains remplissages d'ammoniac expérimentés antérieurement dans des détecteurs classiques à cathodes métalliques. Les caractéristiques de palier et de bruit de fond, avan^{it} vieillissement, sont analogues à celles des détecteurs à parois métalliques.

Sous irradiation constante, le courant moyen qui traverse le détecteur est une fonction linéaire de la tension appliquée; la pente de la droite est indépendante de la pression de l'ammoniac, entre 2 et 10 cm de mercure, tout au moins. Cette pente ne varie que très peu avec la géométrie du compteur (diamètre du fil, diamètre et longueur de la cathode). Des résultats analogues ont été obtenus sur des remplissages d'acide sulfhydrique.

Une méthode mise au point par l'un des auteurs a permis de mesurer la mobilité des ions d'ammoniac dans la décharge. Rapportée à la pression atmosphérique, sa valeur est de 0,90 cm² sec⁻¹volt⁻¹.

La détérioration progressive du détecteur en fonction du nombre des impulsions subies a fait l'objet d'une étude détaillée, car les remplissages d'ammoniac doivent leur intérêt à leur longue durée de vie. Sur un compteur dont le volume sensible est terminé par deux lames à faces parallèles de fluorine, on a suivi, par spectrométrie infrarouge, la variation de la concentration de l'ammoniac dans le mélange gazeux en fonction du nombre des impulsions subies : il ne se forme aucun composé de la forme N_xH_y et les seuls produits de décomposition sont l'azote et l'hydrogène. Contrairement à ce qui est indiqué pour les compteurs à parois métalliques, l'équilibre entre l'ammoniac, l'azote et l'hydrogène n'est atteint qu'après 3.10^9 à 4.10^{10} impulsions, et toujours après que le palier de comptage ait disparu. Ce fait pourrait s'expliquer par l'élimination initiale, sur le fil et sur la paroi interne du cylindre de verre, de l'azote et de i'hydrogène contenus dans le mélange gazeux.

INTRODUCTION

Les compteurs de GEIGER-MULLER contenant un mélange de gaz rare et d'une vapeur organique ont le grave inconvénient de se détériorer progressivement, au fur et à mesure de leur utilisation. Ce phénomène est dû à une dissociation des molécules polyatomiques dans la décharge, qui a pour résultat l'altération des propriétés d'autocoupure : au bout de 10^9 à 10^{10} impulsions, le détecteur devient inutilisable [1].

On a cherché à éviter cette imperfection. La meilleure solution consiste à utiliser des remplissages constitués par un gaz rare mélangé à un halogène (chlore, brôme ou iode), en faibles proportions. Tout en demeurant autocoupeur, le détecteur a une durée de vie infinie, puisque les molécules d'halogène se reforment après les décharges [2]. Hélas, de tels remplissages ne sont pas applicables aux détecteurs à parois de verre et graphitage externe, car l'halogène attaquerait le verre sodique qui constitue nécessairement l'enveloppe et disparaîtrait du mélange gazeux; au bout de peu de temps, le compteur ne serait plus autocoupeur.

Une seconde solution a été proposée par KORFF et KRUMBEIN [3] : elle consiste à employer des remplissages de vapeur d'ammoniac, soit pure, soit mélangée à de l'argon. En effet, le procédé de HABER-BOSH, de fabrication de l'ammoniac, consiste à faire passer dans une effluve électrique, des mélanges d'azote et d'hydrogène, placés dans des conditions convenables de température et de pression. On espère que la dissociation des molécules d'ammoniac dans la décharge électrique sera compensée par sa synthèse, et que l'on obtiendra globalement l'équilibre :

$$2 \text{ NH}_{s} \rightleftharpoons N_{s} + 3 \text{ H}_{s}$$

conduisant à une véritable auto-régénération du détecteur.

KORFF et KRUMBEIN [3] ont employé de la vapeur pure d'ammoniac, sous la pression de 10 cm de mercure (seuil du palier = 1 200 volts), ou de 5 cm de mercure (seuil = 900 volts). L'addition d'argon abaisse le seuil du palier, mais fait décroître la longueur du palier, qui est déjà très faible avec de l'ammoniac pur (70 à 100 volts); les auteurs emploient, sous 15 cm de mercure, un remplissage contenant 80 % d'ammoniac et 20 % d'argon. Au bout d'une utilisation prolongée du détecteur, le mouvement propre augmente très rapidement, pour revenir ensuite, peu à peu, à sa valeur normale. Les cathodes employées étaient en argent, en cuivre, en nickel ou en graphite. Jusqu'à 3.10^{10} impulsions, la caractéristique de comptage demeure stable, et l'on n'observe pas de détérioration progressive, comme cela est le cas pour les remplissages contenant une vapeur organique. Les auteurs concluent en faveur d'une autorégénération du remplissage, par synthèse de l'ammoniac à partir de ses produits de décomposition. NEUERT et GEERK [4] ont fait une étude plus détaillée de la détérioration des remplissages contenus dans des compteurs à parois de cuivre, de laiton ou de nickel, en effectuant des prélèvements et en les analysant par spectrométrie de masses. Leurs conclusions confirment le mécanisme proposé par KORFF et KRUMBEIN.

Malgré leur intérêt en ce qui concerne leur durée de vie, de tels remplissages sont médiocrement autocoupeurs : les paliers sont courts, leurs pentes sont considérables, le mouvement propre est important, et les détecteurs sont peu stables. Malgré tout, il nous a paru intéressant d'appliquer ces remplissages aux compteurs à parois de verre et graphitage externe, dont la construction est plus facile que celle des détecteurs à parois métalliques [5].

Description des compteurs utilisés.

Les premiers détecteurs à coque de verre ont été introduits par R. MAZE [5] : le fil anodique est tendu selon l'axe d'un cylindre de verre ordinaire, d'épaisseur comprise entre 0,6 et 0,8 mm, sans couche interne conductrice, la surface externe étant seulement recouverte de graphite colloïdal. Ces détecteurs sont stables et présentent un palier excellent et très long. La surface interne du verre joue le rôle de cathode et se charge de façon aussi uniforme que s'il existait une couche conductrice. Le détecteur se comporte comme un tube normal dont la cathode serait reliée à la masse par un système (résistance-capacité en parallèle) [6].

Nous avons employé le type de détecteur proposé par BLANC et SCHÉRER [7] (fig. 1) : les deux extrémités AB et EF du cylindre sont portées à la



FIG. 1. — Schéma des compteurs utilisés.

haute tension, la région intermédiaire CD restant à la masse. Les intervalles. BC et DE sont recouverts d'une couche d'isolant qui élimine la conductibilité de surface. Le compteur possède un volume sensible bien défini [8], et on améliore la longueur et la qualité du palier : cette amélioration est due à l'élimination totale d'impulsions parasites pouvant résulter des irrégularités de la surface du passage axial (copperclad) placé aux extrémités et de la jonction entre ce passage et l'anode du tungstène.

Afin de réaliser un centrage plus précis du fil anodique, nous avons également construit des compteurs du modèle représenté sur la figure 2 :



FIG. 2. — Modification du détecteur de la figure 1 permettant un centrage rigoureux du fil anodique.

l'extrémité AB qui assure le centrage de l'anode, est rendue étanche par un masticage à la picéine. Les anneaux isolants BC et DE qui séparent la cathode CD des deux régions maintenues à haute tension sont recouverts d'une couche de paraffine.

Pour appliquer la spectrométrie par absorption infrarouge à la mesure de la quantité d'ammoniac contenue dans le remplissage, nous avons construit plusieurs détecteurs dont le volume sensible est terminé par deux lames parallèles de fluorine, épaisses de 4 mm, selon le schéma de la figure 3.



FIG. 3. — Détecteur en forme de cuve à faces parallèles, permettant d'analyser la proportion d'ammoniac, par spectrométrie infra-rouge.

La distribution du potentiel électrique dans le volume du compteur reste la même que dans les deux modèles précédents. Le fil est tendu entre deux supports de nickel qui assurent également les connections électriques.

Les cylindres sont en verre B-24 (verreries de Choisy-le-Roi) dont la résistivité à 20° C est de 5,46.10¹¹ ohms. cm et le coefficient de dilatation $\alpha_{0}^{300} = 96,6.10^{-7}$. L'anode est un fil de tungstène dégraphité de diamètre égal à 0,05, 0,10, 0,16 ou 0,20 mm.

Dispositif expérimental associé.

Nous avons utilisé une rampe de pompage et de remplissage de volume aussi faible que possible, pour diminuer les possibilités de fuites et les dégazages, et obtenir rapidement le vide désiré. Une pompe à palettes et une pompe à diffusion assurent un vide limite de 10⁻⁵ mm de mercure dans les détecteurs. Une jauge de Pirani contrôle le vide primaire; une jauge Philips à cathode froide donne la valeur du vide secondaire. Les gaz et les vapeurs de remplissage sont contenus dans des ballons de verre ou des bouteilles métalliques qui communiquent avec l'installation à travers une micro-fuite.

Avant d'être disposés sur la rampe, les détecteurs sont rincés à l'acide nitrique dilué, puis à l'eau distillée, à l'éthanol et à l'éther. Ils ne sont soumis à aucun étuvage, cette opération risquant de détruire toutes leurs qualités.

La figure 4 représente le circuit électronique associé. Le galvanomètre A.O.I.P. possède une sensibilité de 10-⁹ A par division de l'échelle; il donne la valeur moyenne de l'intensité du courant qui traverse le détecteur. L'oscilloscope cathodique placé en parallèle permet d'obtenir la forme des impulsions électriques délivrées et d'étudier leur succession; il présente une résistance d'entrée de 10⁶ ohms et une capacité d'entrée de 50 picofarads.



FIG. 4. — Circuit électronique associé aux compteurs.

Le reste du montage est classique; il comporte une haute tension variable de 250 à 5 000 volts, stabilisée à 2 dix-millièmes pour une variation de 10 % de la tension efficace du secteur, un « cathode follower », une échelle de comptage.

Les études de spectroscopie infrarouge ont été faites à l'aide d'un appareil Perkin-Elmer modèle 21, à prisme de sel gemme; il comporte un double faisceau permettant d'opérer par compensation. Dans la région inférieure à 2000 cm⁻¹, la précision sur le nombre d'onde est de \pm 5 cm⁻¹, alors que, dans la région voisine de 4000 cm⁻¹, elle n'est plus que de \pm 20 cm⁻¹. A 1620 cm⁻¹, la précision sur les hauteurs de pics est de 4 %.

Palier de comptage, bruit de fond.

1) Nous avons réalisé des remplissages (ammoniac-argon) sous des pressions totales de 15 cm de mercure et de 10 cm de mercure; nos résultats s'accordent avec ceux de KORFF et KRUMBEIN [3]. On obtient les meilleures caractéristiques pour des pourcentages de l'ordre de 75 % d'ammoniac et 25 % d'argon lorsque la pression totale est de 15 cm de mercure, 90 % d'ammoniac et 10 % d'argon lorsque la pression totale est de 10 cm de mercure.

2) Nous avons surtout expérimenté des remplissages d'ammoniac pur, sous des pressions comprises entre 1 et 10 cm de mercure. Les performances ne sont pas très supérieures à celles notées sur des compteurs à parois métalliques [3, 4]; les paliers les plus longs (140 à 180 volts) correspondent à des pressions comprises entre 5 et 8 cm de mercure. La pente correspondant au mouvement propre est comprise entre 15 et 20 % par 100 volts.

La figure 5 présente la variation de la tension de démarrage (tension pour laquelle des impulsions commencent à être enregistrées) en fonction de la pression de l'ammoniac : la courbe est une droite au-dessus de 1 cm de mercure.

Le bruit de fond des compteurs venant d'être remplis possède une valeur normale; par contre, on constate une augmentation très importante du bruit de fond lorsque le détecteur vient d'être soumis, pendant un certain temps, à une irradiation intense. On trouvera ci-dessous les valeurs du mouvement propre, en nombre d'impulsions par minute, d'un compteur maintenu au repos durant une semaine, puis soumis à l'irradiation d'une source de ⁶⁰Co (30.000 impulsions par minute), durant des intervalles de temps *t* variables :

t (heures) :	0	0,5	1	1,5	7	14
Mouvement propre (/min.)	140	800	1350	1500	2450	4000

Si le compteur est ensuite maintenu au repos, le mouvement propre diminue lentement pour reprendre sa valeur normale au bout de quelques

jours. De tels phénomènes avaient été observés sur les détecteurs à parois métalliques [3].



F1G. 5. — Variation de la tension de démarrage en fonction de la pression de l'ammoniac (diamètre du fil : 0,1 mm — diamètre interne du cylindre : 2,7 cm).

Courant moyen traversant le détecteur.

Pour des pressions d'ammoniac comprises entre 2 et 10 cm de mercure, nous avons tracé, sous irradiation gamma constante, la courbe I = f(V)qui donne l'intensité moyenne du courant traversant le remplissage en fonction de la tension appliquée. La figure 6 présente une série de courbes obtenues de cette manière. On remarque que la partie rectiligne de la courbe présente une pente indépendante de la pression, dans le domaine étudié tout au moins, et variant très peu en fonction de la géométrie du détecteur. Seule l'intensité de l'irradiation modifie la valeur de cette pente.

Afin de contrôler ces résultats, nous avons réalisé des remplissages d'acide sulhydrique SH_2 , dont la molécule, comme celle d'ammoniac, possède un moment dipolaire important (1,1.10⁻¹⁸ u.e.s.). Nos mesures sont résumées sur la figure 7. Là encore, entre 2 et 10 cm de mercure, les courbes sont des droites parallèles dont la pente ne varie que très peu avec la géométrie du détecteur. Enfin, les paliers obtenus sont assez analogues à ceux qui correspondent aux remplissages d'ammoniac.



FIG. 6. — Courbes I = f (V) en fonction de la pression de l'ammoniac pour divers diamètres de cathode (diamètre du fil : 0,1 mm).

Mesure de la mobilité moyenne des ions d'ammoniac.

La méthode consiste à mesurer le temps de restitution du compteur, et d'en déduire les mobilités des ions moléculaires positifs de la vapeur, dans un mélange (gaz rare-vapeur).

Rappelons que le temps de restitution θ est le temps nécessaire pour que, après le déclenchement d'une impulsion, l'impulsion suivante reprenne son amplitude normale. θ est pratiquement égal au temps moyen mis par les ions positifs formés autour de l'anode pour atteindre la paroi interne du cylindre.



FIG. 7. — Courbes I = f(V) en fonction de la pression de l'acide sulfhydrique, pour deux valeurs du diamètre interne de la cathode (diamètre du fil : 0,1 mm).

Désignons par V la tension appliquée, a le diamètre du fil, b le diamètre interne du cylindre, P la pression totale du remplissage gazeux, P_0 la pression atmosphérique, k la mobilité ionique, sous la pression P_0 , du mélange utilisé. Les calculs de STEVER [9], de VAN GEMERT, DEN HARTOG et MULLER [10], donnent la valeur de θ :

$$\theta = \frac{(b^{*} - a^{*}) \operatorname{Log}_{e}(b/a) P}{8 \operatorname{k} VP_{a}}$$

La valeur de k se déduit de celle de θ obtenue expérimentalement.

Soient k_1 la mobilité ionique de la vapeur, k_2 celle de l'argon, p_1 et p_2 leurs pressions partielles respectives. k_1 est calculable par la formule simple :

$$\mathbf{k} = \frac{\mathbf{k}_{1} \, \mathbf{k}_{2}}{\mathbf{k}_{1} \, \mathbf{p}_{2} + \mathbf{k}_{2} \, \mathbf{p}_{4}}$$

Cependant, LOEB [11] a constaté que cette formule ne s'applique pas pour certains mélanges, pour lesquels il propose :

$$\mathbf{k} = \frac{\mathbf{k}_{i} \, \mathbf{k}_{2}}{(\mathbf{k}_{i}^{*} \, \mathbf{p}_{2} + \mathbf{k}_{2}^{*} \, \mathbf{p}_{i})^{\frac{1}{2}}}$$

L'argon utilisé est de qualité spectroscopiquement pure et nous avons pris $k_2 = 1,30$ cm² sec⁻¹ volt⁻¹, valeur qui correspond aux champs électriques régnant dans les compteurs employés [12].



FIG. 8. — (1/k) en fonction de la pression partielle p_1 de l'ammoniac.

Sur la figure 8 est porté (1/k) en fonction de la pression partielle p_1 du constituant polyatomique. Les mélanges suivants ont été étudiés :

Ammoniac (cm de Hg)	3	3	4	4	7
Argon (cm de Hg)	7	12	6	11	7

La courbe est une droite, ce qui montre que la formule de STEVER est

valable. L'intersection de la droite avec la parallèle $p_1 = 1$ à l'axe des ordonnées donne la valeur cherchée de k_1 . Nous avons obtenu :

$$k_1 = 0.90 \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1} \text{ volt}^{-1}$$

Cette valeur suggère que les ions moléculaires peuvent exister partiellement sous la forme $(NH_3)_2$.

Vieillissement des détecteurs. Mesure de leurs durées de vie.

Le temps de vie est le nombre total d'impulsion au-delà duquel le taux de comptage ne correspond plus à l'irradiation subie, et devient nettement supérieur à la normale, compte tenu des fluctuations statistiques. Il est défini pour une surtension donnée, et le vieillissement doit être fait à un taux de comptage suffisamment faible pour qu'il n'y ait que peu d'influence du temps mort sur les hauteurs d'impulsions. Les compteurs ont été soumis aux rayons gamma venant d'une source de ⁶⁰Co; à intervalles réguliers, la tension d'alimentation était modifiée pour que la surtension demeure bien constante.

On trouvera sur la figure 9 les courbes de vieillissement d'un compteur



FIG. 9. — Courbes de vieillissement d'un remplissage d'ammoniac sous 8 cm de mercure. Diamètre interne du cylindre : 2,7 cm; diamètre du fil : 0,1 mm.

à extrémités de fluorine (*fig.* 3), dont le diamètre interne était de 2,7 cm; le diamètre de l'anode était de 0,1 mm. Les courbes qui correspondent aux autres modèles de détecteurs sont analogues. Les faits suivants sont à retenir :

a) La tension de démarrage reste pratiquement constante. Les fluctuations de 10 à 20 volts observées sont attribuables aux variations de la température du remplissage.

b) Le seuil de GEIGER reste toujours inférieur à sa valeur initiale, comme dans le cas du méthylal pur [6].

c) Le détecteur devient inutilisable au bout d'un nombre total d'impulsions qui varie considérablement d'un échantillon à un autre. Le temps de vie, de 3.10^9 dans l'exemple choisi [13], peut atteindre 4.10^{10} dans certains cas [14].

Mécanisme de la détérioration.

1° Variation de la composition du mélange. — La spectroscopie infrarouge nous a permis de suivre la destruction progressive des molécules d'ammoniac, en fonction du nombre total des impulsions subies. Dans ce but, nous avons utilisé les compteurs à fenêtres terminales de fluorine (fig. 3), dont la transparence est bonne entre le visible et 1200 cm⁻¹ environ. Nous avons effectué nos observations autour de la bande dont le maximum se situe à 1626 cm⁻¹, et qui est entourée des raies correspondant aux transitions entre les niveaux d'énergie de (vibration-rotation) $v_4 = 1$ (0, 0, 0, 1) et $v_4 = 0$ (0, 0, 0, 0).

Nous admettons que, dans la vapeur d'ammoniac, l'absorption suit la loi de BEER-LAMBERT, ce qui permet de poser que le coefficient d'extinction moléculaire ε est de la forme :

$$\varepsilon = \frac{1}{C.l} \log \left(I_{o}/I \right)$$

- I_0 = intensité du rayonnement incident,
- I = intensité du rayonnement transmis,
- C = concentration moléculaire de l'ammoniac,
- l =épaisseur du milieu traversé.

Sur le spectre enregistré, la lecture de log (I_0/I) donne la valeur relative de ε , donc la variation de la teneur du remplissage en ammoniac.

Le résultat est porté sur la figure 9 : après la détérioration du détecteur (ici après 3.10^9 impulsions), la concentration en ammoniac demeure constante même si l'on continue à soumettre le compteur à une série ininterrompue de décharges. Quel que soit le compteur étudié, la concentration en ammoniac ne demeure constante qu'après un nombre d'impulsions supérieur à celui pour lequel on peut considérer le détecteur comme devenu inutilisable. Autrement dit, l'équilibre prévu par KORFF et KRUMBEIN a lieu trop tard pour présenter un intérêt pratique.

Des mesures d'absorption infrarouge, on peut tirer deux conséquences :

a) Durant l'ensemble du vieillissement, la structure globale du spectre d'absorption ne subit pas de modification. Or, aucun groupe atomique du type N_xH_y n'est transparent à l'infrarouge entre 3800 cm⁻¹ et 1400 cm⁻¹ [15]. Il en résulte qu'aucun composé de formule N_xH_y ne s'est formé; le remplissage contient uniquement de l'ammoniac, de l'azote et de l'hydrogène.

b) On enregistre le même spectre d'absorption, que le compteur soit au repos ou qu'il soit soumis à des impulsions; cela confirme que la gaîne ionique positive entourant le fil ne présente qu'une épaisseur très faible.

 2° Rôle joué par les électrodes. — Après le vieillissement complet du détecteur cité plus haut (*fig.* 9), rempli initialement d'ammoniac pur sous la pression de 8 cm de mercure, la pression résiduelle est de 8,25 cm de mercure, valeur très voisine de la pression initiale. Cependant, la spectrométrie infrarouge indique qu'il subsiste 53 % d'ammoniac : la destruction de 47 % de l'ammoniac aurait dû avoir pour résultat d'augmenter de 25 % environ la pression du mélange, c'est-à-dire de la porter à une valeur très voisine de 10 cm de mercure.

Ce phénomène peut s'expliquer par des effets superficiels sur les électrodes; en effet, nous avons constaté qu'après le vieillissement du compteur, l'anode est recouverte d'un dépôt noir, très abondant, sur toute sa longueur située en regard de la zone du cylindre de verre placée à la masse. Il a pu se produire une nitruration sous l'effet des décharges, qui éliminerait l'azote du remplissage gazeux. Cette nitruration cesserait lorsque toute la surface du fil serait attaquée.

D'autre part, l'étude des compteurs à graphitage externe contenant de l'hydrogène a montré que ce gaz est absorbé fortement par la paroi de verre [1]. Ainsi pourrait s'expliquer l'élimination de l'hydrogène depuis le gaz, jusqu'à saturation de la paroi de verre.

Enfin, de tels phénomènes superficiels expliqueraient pourquoi l'équilibre entre l'ammoniac et ses produits de décomposition ne s'établit qu'après un très grand nombre d'impulsions, et après que le compteur soit devenu inutilisable.

Conclusion.

Cette étude nous a permis de préciser certains points du mécanisme de la détérioration de l'ammoniac dans les compteurs de Geiger-Müller. Dans le cas actuel, les détecteurs à parois de verre et graphitage externe s'avèrent moins intéressants que les compteurs classiques à parois métalliques.

Nous remercions très vivement M. le Professeur MATHIS et ses collaborateurs, qui nous ont permis d'employer leur spectromètre infrarouge et nous ont donné de nombreux conseils pour l'interprétation des données enregistrées.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] BLANC (D.), Détecteurs de particules. Compteurs et scintillateurs. Masson, Paris (1959).
- [2] VAN ZOONEN (D.), Thèse, Delft, 12 mai 1954.
- [3] KORFF (S. A.) et KRUMBEIN (A. D.), Phys. Rev. (1949), 76, 1412.
- [4] NEUERT (H.) et GEERK (J.), Ann. der Physik (1950), 8, 93.
- [5] MAZE (R.), Journ. Phys. Radium (1946), 7, 164.
- [6] BLANC (D.), Doctorat ès Sciences, nº 3763, Paris (1956).
- [7] BLANC (D.) et SCHERER (M.), C.R. Acad. Sc. (1949), 228, 2018.
- [8] BIROT (A.) et BLANC (D.), C.R. Acad. Sci. (1962), 254, 1978.
- [9] STEVER (H. G.), Phys. Rev. (1942), 61, 38.
- [10] VAN GEMERT (A. G. M.), DEN HARTOG (H.) et MULLER (F. A.), Physica, (1942), 9, 658.
- [11] LOEB (L. B.), The kinetic theory of gases, 2^e édition, Mac Graw Mill, New York (1934).
- [12] BIONDI (M. A.) et CHANIN (L. M.), Phys. Rev. (1954), 94, 910.
- [13] COMBY (G.), Doctorat de spécialité (Physique nucléaire), n° 175, Toulouse (1962).
- [14] CABÉ (J.), Doctorat de spécialité (Physique nucléaire), n° 49, Toulouse (1960).
- [15] BELLAMY (J. L.), The infrared spectra of complex molecules, Methuen, Londres (1960).