



HAL
open science

Annihilation libre de l'ortho-positonium formé dans certaines poudres de grande surface spécifique

R. Paulin, G. Ambrosino

► **To cite this version:**

R. Paulin, G. Ambrosino. Annihilation libre de l'ortho-positonium formé dans certaines poudres de grande surface spécifique. *Journal de Physique*, 1968, 29 (4), pp.263-270. 10.1051/jphys:01968002904026300 . jpa-00206646

HAL Id: jpa-00206646

<https://hal.science/jpa-00206646>

Submitted on 4 Feb 2008

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

ANNIHILATION LIBRE DE L'ORTHO-POSITONIUM FORMÉ DANS CERTAINES POUDRES DE GRANDE SURFACE SPÉCIFIQUE

Par R. PAULIN et G. AMBROSINO,

Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires (Saclay)

et Laboratoire Maurice-de-Broglie (Brétigny).

(Reçu le 9 octobre 1967.)

Résumé. — Les deux longues vies moyennes d'annihilation du positon observées dans certaines poudres de grande surface spécifique (Al_2O_3 , MgO , SiO_2) résultent de la formation d'ortho-positonium. La plus longue de ces deux vies correspond à la fraction d'état triplet qui s'annihile entre les grains. Sous vide, ce processus d'annihilation s'effectue librement et l'on observe la vie moyenne de l'état triplet (14×10^{-8} s). Dans l'air, la présence d'oxygène réduit cette vie d'un facteur 2. L'autre vie du positon ($1,8 \times 10^{-9}$ s) correspond à l'ortho-positonium qui s'annihile par « pick-off » à l'intérieur des grains. Contrairement à l'hypothèse qui avait été avancée, la formation de positonium n'est pas une conséquence de l'adsorption superficielle de gaz. C'est une propriété de l'état amorphe de ces échantillons. La quantité formée reflète le degré de désordre de l'échantillon. L'abondance relative d'ortho-positonium libre dépend de la granulométrie de la poudre, c'est une fonction de la surface spécifique.

Abstract. — The two long mean-lives observed for positron annihilation in some powders (Al_2O_3 , MgO , SiO_2) result from ortho-positonium formation. The longest mean-life corresponds to the triplet-state part that annihilates between the powders grains. Under vacuum, this annihilation is free and one observes the free triplet mean-life (14×10^{-8} s). In air, oxygen quenching reduces this mean-life by a factor two. The other positron mean-life (1.8×10^{-9} s) corresponds to the ortho-positonium which annihilates by pick-off inside the grains. Contrary to the hypothesis that has been advanced, positonium presence is not due to adsorbed gases on area, but is a property of the amorphous state of these samples. The positonium abundance increases with the degree of disorder of the sample. The relative abundance of free ortho-positonium depends on the particle size of the powder; it is a function of specific area.

L'étude de l'annihilation du positon, si elle a permis une brillante confirmation de la théorie électromagnétique, ne s'est pas encore révélée très fructueuse comme source d'information sur la structure de la matière.

Les seuls paramètres accessibles à l'expérience sont la corrélation angulaire des γ d'annihilation, variable suivant l'énergie de l'électron qui provoque l'annihilation et le temps de vie du positon qui dépend en premier lieu de la densité électronique à la position du positon. Dans le cas de l'annihilation libre, l'interprétation des résultats expérimentaux tant de vie que de corrélation est relativement difficile, car il est nécessaire d'évaluer la polarisation induite dans le milieu par le positon. Les mesures de vie, par contre, permettent assez facilement de déterminer si le positon

forme un état lié avant de s'annihiler. Dans ce cas, en effet, le spectre du temps de vie du positon est complexe. Le seul état lié certain est le positonium où l'électron et le positon sont liés par la force coulombienne. Dans quelques cas, on a attribué au positon des liaisons plus complexes avec un atome ou un ion. Ces combinaisons théoriquement possibles sont encore mal connues. Le positonium est créé le plus souvent sous sa forme ortho où les spins des deux électrons sont parallèles. Cet état est instable et dans le vide les deux particules s'annihilent mutuellement en libérant trois γ avec une vie moyenne relativement longue de $1,38 \times 10^{-7}$ s. Dans un milieu condensé, cette vie n'est pas observée car le positon s'annihile avec un électron du milieu auquel il n'est pas lié (« pick-off »).

Ce processus est plus probable que le précédent et aboutit à une vie de l'ordre de la nanoseconde, facile à distinguer de la vie de l'annihilation libre qui est généralement de quelques dixièmes de nanoseconde. Lorsque le positonium est produit sous la forme para (spins antiparallèles), il se désintègre en deux γ et sa vie à l'état libre est de $1,25 \times 10^{-10}$ s. Dans un spectre en temps de l'annihilation du positon, la présence d'une composante lente (supérieure à 10^{-9} s) indique la formation d'ortho-positonium (ou d'une liaison plus complexe du positon) [1]. Or, parfois, on observe deux composantes lentes [2]. Dans certains oxydes alcalino-terreux en poudre, nous avons mis en évidence l'existence de deux composantes lentes qui correspondent à des vies moyennes de $\tau_2 \simeq 2$ à 5×10^{-9} s et $\tau_3 \simeq 5$ à 7×10^{-8} s respectivement. Ces deux vies sont aussi présentes dans d'autres oxydes, alumine et silice notamment, ainsi que dans certains fluorures (F_2Ca , F_2Mg). Après frittage à $1600^\circ C$ sous vide, les deux composantes lentes disparaissent irréversiblement et l'on n'observe plus qu'une seule vie moyenne beaucoup plus courte qu'on peut attribuer à l'annihilation libre. L'adsorption de divers liquides (H_2O ; C_2H_5OH ; C_6H_6) permet de diminuer progressivement la proportion de la vie longue τ_3 jusqu'à complète disparition; mais dans ce cas, la vie intermédiaire τ_2 subsiste et sa proportion augmente; en outre, le phénomène est réversible car la vie τ_3 réapparaît après chauffage [3], [4].

Ces résultats prouvent que le positon se lie avant de s'annihiler, mais ne permettent pas de dire si ces vies résultent de la formation de deux états liés distincts ou d'un seul état lié, le positonium, qui s'annihilerait dans des milieux de densités différentes. On pourrait imaginer, par exemple, que le positonium s'annihile soit au sein du milieu, soit à la surface. Le rôle de cette dernière est suggéré soit par l'action du frittage, soit par l'effet de mouillage. D'autre part, il a été suggéré aussi que la formation même du positonium se faisait, de préférence, à la surface des grains; toutefois, des corps ayant une grande surface spécifique comme le charbon animal ne présentent aucune vie longue. C'est pour éclaircir le rôle de la surface que nous avons entrepris, avec des échantillons de surface connue en grandeur et en nature, une nouvelle série d'expériences.

Nous décrivons la technique expérimentale et les échantillons utilisés dans les deux premiers paragraphes. Nous étudions l'action du gaz atmosphérique dans le paragraphe III, puis l'influence des gaz adsorbés, tour à tour, quand les échantillons sont désorbés sous vide ou, au contraire, quand des quantités croissantes de gaz sont adsorbées à la température de l'azote liquide (paragraphe IV). Dans le paragraphe V, nous examinons plus particulièrement le rôle de la surface. Dans le dernier paragraphe, nous proposons un modèle susceptible d'expliquer qualitativement nos résultats qui ne concernent que des matériaux non métalliques très divisés et peu ordonnés.

I. Procédure expérimentale. — Afin d'obtenir une surface propre, bien définie, un traitement thermique sous vide est nécessaire.

Le dispositif expérimental est schématisé figure 1. Il est constitué d'un groupe de pompage avec piège A,

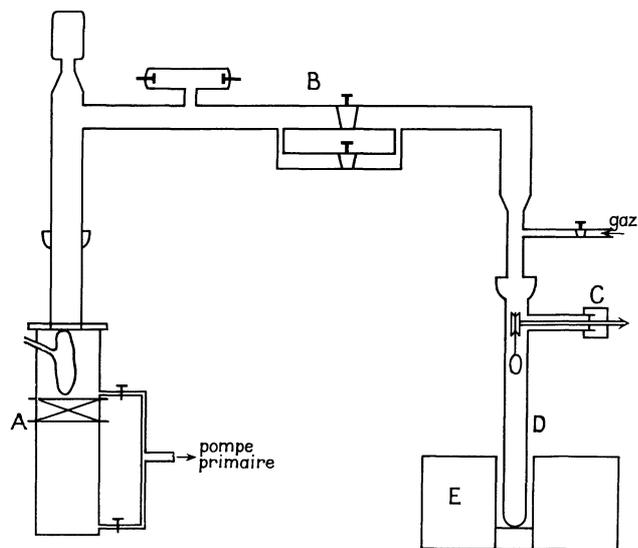


FIG. 1. — Schéma du banc de traitement thermique.

d'une enceinte à vide en pyrex avec jauge à ionisation et robinetterie B, d'un système à joint tournant C permettant de monter et descendre une source de Na^{22} dans un tube de quartz D ($\varnothing = 50$ mm) au fond duquel est placé l'échantillon de poudre à étudier. Ce tube de quartz peut être chauffé jusqu'à $1000^\circ C$ à l'aide d'un four mobile E.

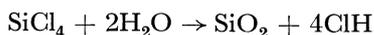
Pendant le traitement thermique, la source est maintenue en position haute et la température du four est mesurée à l'aide d'un thermocouple.

La jauge permet de contrôler l'importance des dégazages au cours du traitement. Quand la désorption est terminée, c'est-à-dire quand le vide dans l'enceinte est voisin de 10^{-6} mm de mercure, le four est enlevé et l'échantillon refroidi. La source est alors descendue et noyée dans la poudre et deux détecteurs à scintillation sont disposés de part et d'autre du tube de quartz.

A l'aide de l'appareillage électronique déjà décrit [3], le spectre en temps de l'annihilation du positon est alors déterminé. Pour chaque température, deux spectres sont enregistrés, l'un avec un étalonnage à $0,943$ ns/canal pour mesurer la plus longue des vies, l'autre avec un réglage plus dilaté à $0,175$ ns/canal pour déterminer la deuxième vie plus brève.

Notons enfin que le four peut être remplacé par un vase en Sipror qui reçoit divers fluides destinés à refroidir les échantillons. Sur les échantillons ainsi refroidis, différents gaz sont alors adsorbés en quantités variables.

II. **Choix des échantillons.** — Nous avons utilisé des poudres de silice ⁽¹⁾ préparées par hydrolyse, à 1 250 °C, du tétrachlorure de silicium :



qui ont les caractéristiques suivantes :

TABLEAU I

SiO ₂	SURFACE EN m ² /g (± 5 %)	DENSITÉ APPARENTE (g/cm ³)
—	50	0,3
Poudres hydrophiles	180	0,06
	300	0,05
	380	0,046
Poudres hydrofuges	180	0,1

La surface des poudres hydrophiles est essentiellement formée par des groupements OH, celle des poudres hydrofuges par des groupements OCH₃. Dans notre échantillon hydrofuge, 80 % des groupements superficiels sont des OCH₃.

Ces poudres ont une très faible porosité et se présentent sous forme de particules sphériques de diamètre compris entre 100 et 400 Å.

Les grains sont formés de tétraèdres SiO₄ liés par leurs sommets, dans la mesure où leur dimension leur permet d'être cohérents. En surface, certains tétraèdres possèdent un sommet libre qui est saturé par un hydrogène ou un radical méthyle.

⁽¹⁾ Ces poudres sont commercialisées sous le nom d'Aérosil par la firme De Gussa, Francfort.

L'étude de ces poudres par diverses techniques physiques ou chimiques (thermogravimétrie, spectrographie infrarouge, analyse au diborane) a permis de mettre en évidence différents types d'eau [5] :

a) De l'eau moléculaire faiblement liée qui est éliminée par chauffage sous vide à 150 °C (eau physisorbée);

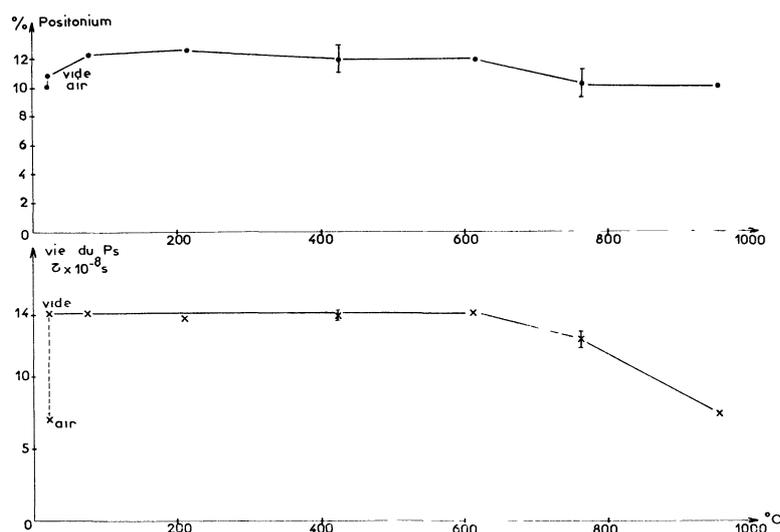
b) De l'eau moléculaire plus solidement liée qui ne subsiste pas au-delà de 600 °C (eau chimisorbée);

c) Au-delà de 600 °C, après un long chauffage, on recueille encore de l'eau : eau de constitution, qui est formée à partir des groupements OH. Cette disparition s'accompagne d'une réorganisation de la matière et d'une diminution de la surface.

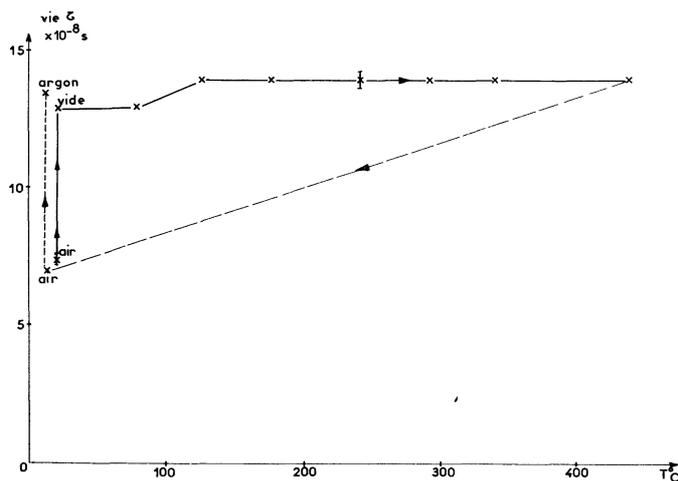
Pour nous assurer que certains phénomènes mis en évidence avec ces échantillons n'étaient pas spécifiques de la silice mais résultaient de propriétés communes aux oxydes à grande surface, nous avons contrôlé leur existence sur des échantillons de magnésie calcinée et d'alumine que nous avons utilisés lors de nos premières expériences.

III. **Influence de l'oxygène atmosphérique.** — Dans la glucine, l'alumine, la magnésie et la silice, une fraction importante des positons forme un état lié à longue vie avant de s'annihiler [2] à [4]. Dans l'air, les vies moyennes mesurées restent voisines de 7×10^{-8} s pour toutes ces poudres.

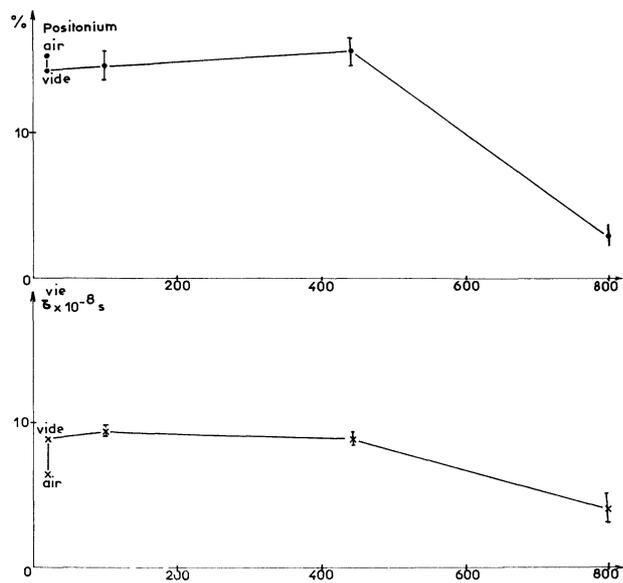
Pour les échantillons de silice, sous un vide de 10^{-6} mm de mercure, cette vie s'allonge jusqu'à 14×10^{-8} s, soit la vie de l'ortho-positonium qui s'annihile librement. La présence d'air ramène cette vie à 7×10^{-8} s. Si, par contre, l'air est remplacé par de l'argon, elle demeure voisine de 14×10^{-8} s (courbe 2). Pour éliminer l'hypothèse d'une action éventuelle de l'humidité atmosphérique, nous avons



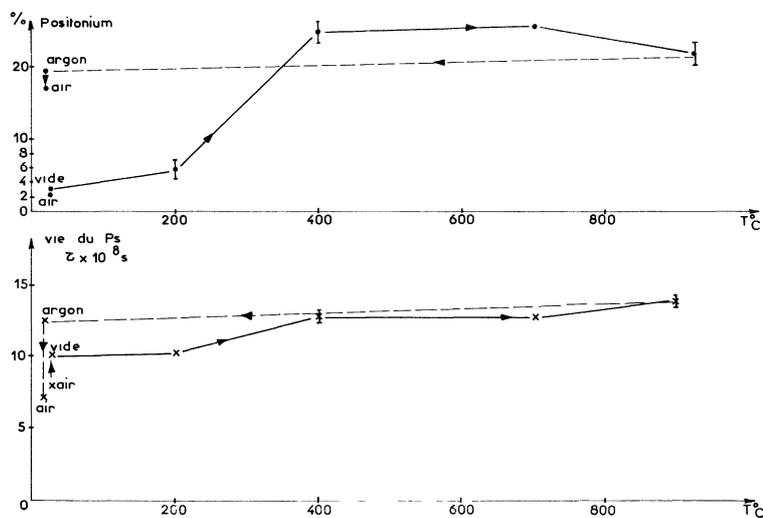
COURBE 1. — Variations de la vie et de la quantité de positonium à vie longue formé dans une poudre de silice hydrophile à 180 m²/g en fonction du traitement thermique.



COURBE 2. — Influence du gaz atmosphérique sur la vie longue du positonium dans une poudre de silice à $180 \text{ m}^2/\text{g}$.



COURBE 3. — Vie et pourcentage de positonium à vie longue formé dans Al_2O_3 en fonction du traitement thermique.



COURBE 4. — Évolution de la vie et de la quantité de positonium à vie longue formé dans un échantillon très hydraté de magnésie.

vérifié que l'air sec abrège la vie dans les mêmes proportions.

Dans la silice, l'ortho-positonium formé est donc sensible à l'action d'extinction (« quenching ») de l'oxygène de l'air.

En effet, le taux de « quenching » de l'oxygène pur est de $2,3 \pm 0,3 \times 10^7 \text{ s}^{-1} \text{ atm}^{-1}$ [6], d'où des vies moyennes de $8,6 \pm 0,3 \times 10^{-8} \text{ s}$ et de $3,3 \pm 0,3 \times 10^{-8} \text{ s}$ pour l'ortho-positonium respectivement dans l'air, si l'on néglige l'action de l'azote, et dans l'oxygène pur à une atmosphère.

Or, nous avons mesuré dans la poudre de silice $7 \pm 0,3 \times 10^{-8} \text{ s}$ en présence d'air à une atmosphère et $3,49 \pm 0,2 \times 10^{-8} \text{ s}$ en présence d'oxygène pur à une atmosphère.

Cette action de l'oxygène se manifeste aussi dans la magnésie (courbe 4). Dans cet échantillon, toutefois, il est nécessaire de chauffer sous vide au-dessus de $800 \text{ }^\circ\text{C}$ pour atteindre la vie de l'état triplet.

Dans le cas de l'alumine (courbe 3), on n'atteint jamais la vie libre de l'état triplet, ce qui pourrait résulter, par exemple, de la présence d'oxygène situé

à l'intérieur de porosités fermées ou très faiblement ouvertes qu'il est impossible d'éliminer par traitement thermique.

Nous constatons donc que la vie la plus longue correspond à la vie de l'ortho-positonium dans le milieu qui entoure les grains (vide, air, argon).

IV. Influence des gaz adsorbés. — a) Désorption.

— Pour vérifier l'influence des gaz adsorbés sur la formation de positonium, nous avons cherché à les éliminer en faisant subir à nos échantillons des traitements thermiques sous vide, par paliers, jusqu'à 950 °C. Dans le cas de la silice (cf. *courbe 1*), un tel traitement ne permet pas de supprimer ni de fortement réduire la quantité de positonium formé.

A faible température (200 °C), le départ du gaz physisorbé s'accompagne d'un léger accroissement de la proportion de positonium formé qui est ensuite très peu influencée par la désorption du gaz chimisorbé (200 °C à 600 °C). Au-delà de 600 °C, Fraissard [5] a montré par spectrométrie infrarouge et analyse au diborane que ne subsistait plus, en surface, d'eau de type moléculaire.

Il faut donc conclure que le gaz adsorbé sous forme moléculaire n'est pas responsable du positonium formé. A partir de 600 °C ne demeure plus en surface que de l'eau de constitution sous forme de groupements OH

qui sont lentement éliminés quand on élève la température.

Bien que l'on constate une décroissance de la proportion de positonium formé entre 600 °C et 950 °C, on ne peut conclure que les groupements OH superficiels sont responsables de la formation de positonium, car la disparition des OH s'accompagne d'une diminution de la surface, conséquence d'un début de frittage.

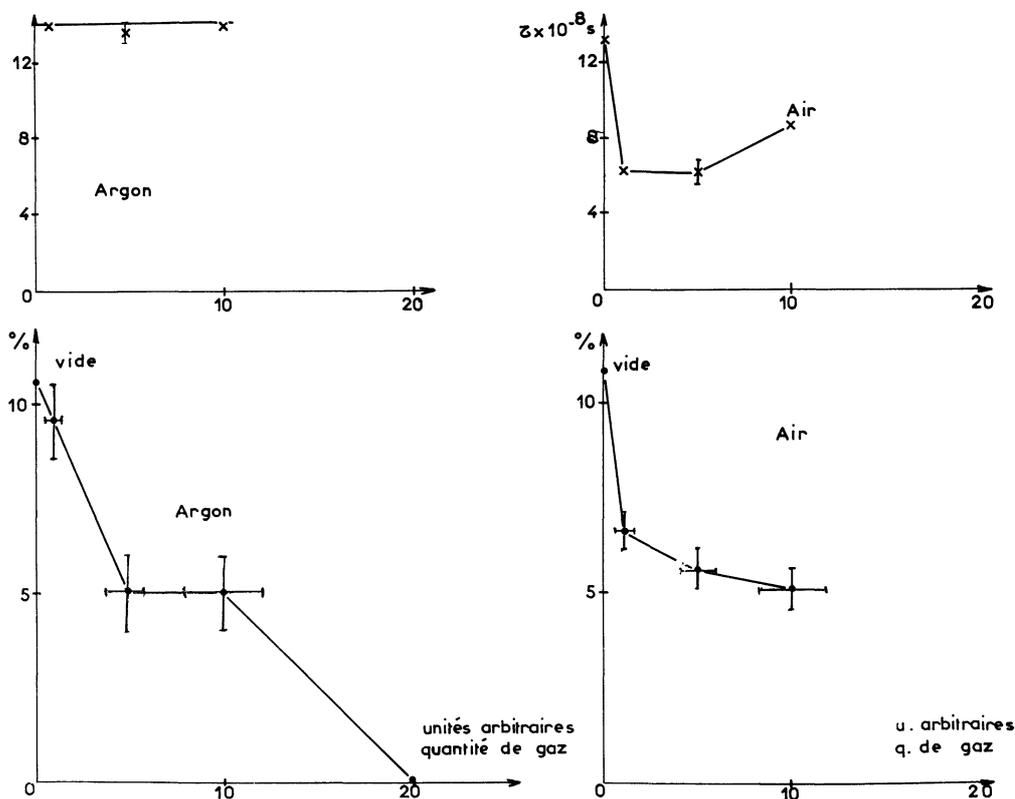
L'évolution de la magnésie (*courbe 4*) paraît *a priori* différente, mais le faible pourcentage de positonium formé en l'absence de traitement thermique et à basse température s'explique par le fait que l'échantillon utilisé, demeuré longtemps à l'air, était très hydraté.

Remarquez le très fort pourcentage de positonium mesuré après traitement à 600 °C et la décroissance qui se manifeste encore entre 600 °C et 950 °C (frittage).

Pour l'alumine (*courbe 3*), le traitement thermique a été quelque peu différent. L'échantillon, après avoir été désorbé à 450 °C, a été ensuite chauffé pendant 3 jours à 800 °C. La diminution de la formation d'ortho-positonium peut être attribuée à un frittage important.

b) ADSORPTION. — Nous avons ensuite refroidi nos échantillons à la température de l'azote liquide et adsorbé des quantités croissantes de gaz (air ou argon).

Sur la *courbe 5*, nous constatons que le gaz adsorbé,

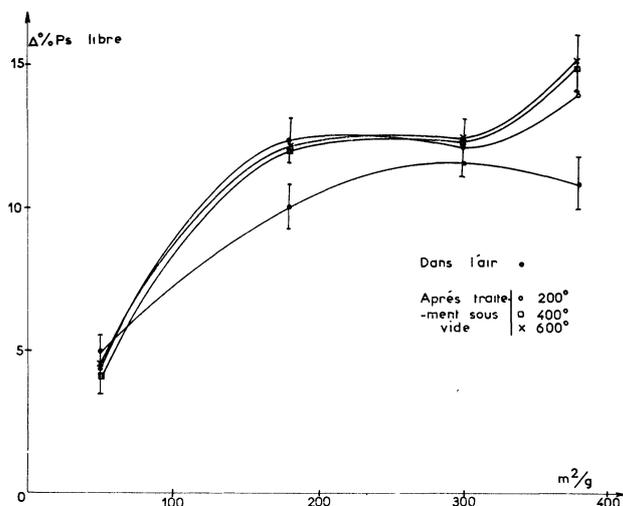


COURBE 5. — Influence des gaz adsorbés dans une poudre de silice à 180 m²/g sur la vie et la quantité de positonium à longue vie.

même en faible quantité, tend à diminuer la quantité de positonium formé sans que la plus longue des vies moyennes soit affectée. On confirme ainsi le résultat obtenu par désorption, à savoir que le positonium mesuré n'est pas formé à partir des gaz adsorbés.

Il faut préciser que l'adsorption de gaz tend à combler les vides interstitiels, ce qui explique, à la limite, pour de grandes quantités de gaz adsorbé, que la composante lente disparaît complètement. Le gaz adsorbé agit simplement comme un écran et la vie moyenne du positonium dans cet écran est très différente de la vie dans le gaz libre, comme on pouvait le prévoir. En désorbant à nouveau le gaz, on retrouve les résultats du paragraphe *a*). Ces résultats, s'ils ne permettent pas d'écarter de manière décisive l'hypothèse de formation du positonium à partir des OH superficiels, autorisent cependant à la mettre en doute, et, pour estimer leur contribution, nous avons comparé des poudres de surface croissante.

V. Influence de la surface. — Dans l'hypothèse où le positonium est formé à partir de la surface, le pourcentage de positonium formé doit varier linéairement en fonction de celle-ci. Afin de comparer des surfaces relativement propres, nous avons effectué nos mesures après différents traitements thermiques des poudres à 200, 400 et 600 °C sous vide, de manière à éliminer l'influence des gaz adsorbés qui pourraient fausser la comparaison.



COURBE 6. — Variations de la quantité de positonium libre formé dans la silice en fonction de la surface.

Il ressort de nos expériences (*courbe 6*) que cette variation n'est jamais linéaire, même à 600 °C, quand la surface est propre. Cette non-linéarité est trop importante pour pouvoir s'expliquer par une sous-estimation de la quantité de positonium formé aux grandes surfaces. On peut en effet estimer à 3 % au maximum la fraction des positons qui, traversant les poudres les moins denses, s'annihilent dans la paroi du tube de quartz. En admettant même que cette fraction soit plus importante, elle est semblable pour les poudres de 180 m²/g et 300 m²/g qui ont des densités apparentes très voisines (0,06 g/cm³). On devrait donc obtenir un pourcentage de positonium qui varie d'un facteur 2 entre ces deux échantillons; or, dans le meilleur des cas, il est seulement de 15/12 = 1,25.

En outre, nous avons vérifié l'absence de formation de positonium dans une poudre d'aluminium de grande surface. Or, dans l'hypothèse d'une formation purement superficielle, une telle poudre dont la surface est recouverte d'une fine couche d'alumine devrait se comporter comme une poudre d'alumine de même surface, et la présence d'une certaine quantité de positonium devrait être constatée.

Enfin, la substitution de 80 % des groupements OH par des groupements CH₃ à la surface d'une poudre de silice à 180 m²/g ne diminue pas la quantité de positonium mesurée (cf. tableau II), ce qui prouve que la formation de positonium n'est pas une propriété spécifique des groupements hydroxyles.

Sans écarter la possibilité de formation du positonium par capture d'un électron de la surface du grain, il semble donc que la surface ne joue pas le rôle déterminant que nous avons tenté de lui attribuer.

VI. Discussion. — Si la formation du positonium n'est pas un phénomène de surface, nous allons rapidement examiner deux autres types d'hypothèses qui permettraient d'expliquer l'existence de positonium entre les grains :

- 1) Le positonium est formé entre les grains;
- 2) Le positonium est formé à l'intérieur des grains mais possède une probabilité notable d'échapper sans être détruit.

La première de ces hypothèses peut être facilement écartée, d'après nos expériences. Elle suppose, en effet, la présence entre les grains d'électrons libres en quantité suffisante pour justifier la forte proportion de positonium mesurée qui atteint 15 et parfois même 25 %.

TABLEAU II

	$\tau_2 \times 10^{-9}$ s	%	$\tau_3 \times 10^{-8}$ s	%
Silice hydrophile 180 m ² /g	1,7 ± 0,3	9,8 ± 0,8	6,58 ± 0,2	12,5 ± 1
Silice hydrofuge	1,7 ± 0,3	7,2 ± 0,7	6,93 ± 0,2	15,5 ± 1

TABLEAU III

	$\tau_2 \times 10^{-9}$ s	%	$\tau_3 \times 10^{-8}$ s	%
SiO ₂ : 50 m ² /g d = 0,3 g/cm ³	1,77 ± 0,2	28 ± 2	14 ± 0,4	4 ± 0,5
SiO ₂ : 180 m ² /g d = 0,06 g/cm ³	1,89 ± 0,2	10,7 ± 0,8	14,2 ± 0,3	11,6 ± 1
SiO ₂ : 300 m ² /g d = 0,05 g/cm ³	2,1 ± 0,2	4,5 ± 1	13,2 ± 0,3	12 ± 1
SiO ₂ : 380 m ² /g d = 0,05 g/cm ³	3,4 ± 0,4	4 ± 1	13,7 ± 0,3	15 ± 1
Al ₂ O ₃ : d = 1 g/cm ³	3,6 ± 0,4	2,5 ± 1,5	8,7 ± 0,3	15,7 ± 1
MgO : d = 0,35 g/cm ³	2,9 ± 0,3	1,8 ± 1,5	12,6 ± 0,3	25,6 ± 2

Mais si la densité électronique entre les grains est élevée, le positonium ne pourra vivre librement sans subir de « pick-off » et sa vie moyenne n'atteindra jamais 14×10^{-8} s, ce qui est en formelle contradiction avec nos mesures.

La deuxième hypothèse au contraire semble en très bon accord avec la plupart de nos résultats. Celle-ci suppose deux conditions qui se trouvent remplies dans nos échantillons :

1) La poudre doit être amorphe pour que la formation de positonium soit possible;

2) Elle doit en outre présenter une grande surface spécifique afin que le positonium ait une probabilité non négligeable de s'échapper du grain où il a été formé.

La première condition s'appuie sur les expériences de Bisi et coll. [7], Page et coll. [8] qui ont montré qu'il ne se formait pas de positonium dans des monocristaux de glucine et de quartz. Elle est en outre confirmée par l'expérience de Lovseth [9] qui a observé par corrélation angulaire une très nette diminution du para-positonium formé dans l'alumine après 24 heures de traitement à 950 °C et vérifié, par analyse aux rayons X, que cette variation résultait d'une cristallisation partielle de l'échantillon. Dans l'analyse de Ferrel [10] qui explique l'absence de positonium dans les cristaux ioniques, il apparaît que l'inexistence d'une cavité de Ore est due aux fortes énergies de liaison du positon et des électrons au cristal $\left(\frac{1}{2} Ry + \gamma P_s - \gamma_p - \gamma_e \leq 0\right)$. Cet obstacle peut être levé pour l'état amorphe dans certaines régions où

ces énergies de liaisons sont faibles; donc le désordre favorise la formation de positonium.

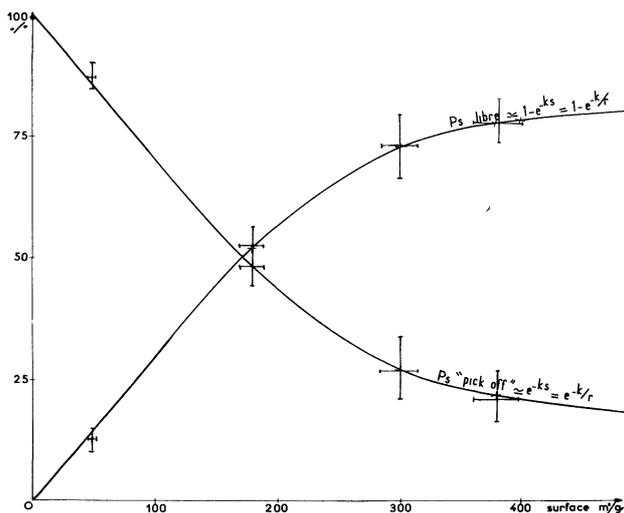
Cette relation entre la quantité de positonium et le degré de cristallinité permet l'interprétation de nos résultats. Ainsi, l'absence de positonium constatée dans nos échantillons fortement frittés s'expliquera par le très faible désordre de ces substances; de même, dans les nombreux oxydes et métaux en poudre, seule apparaît l'annihilation libre du positon.

En outre, si le degré de cristallinité d'une poudre est suffisamment faible, on conçoit que les proportions de positonium formées puissent atteindre 15 et 25 %.

La deuxième condition est nécessaire pour expliquer la présence de deux longues vies moyennes. La plus brève de ces deux vies ($1,77 \times 10^{-9}$ s ± 0,3) correspond, alors, à une fraction de l'ortho-positonium qui n'a pas réussi à s'échapper du grain et qui s'annihile par « pick-off ». Elle est, en effet, très voisine de la vie du positonium mesurée dans le quartz fondu ($1,8 \times 10^{-9}$ s).

La plus longue (14×10^{-8} s) résulte, au contraire, de positonium qui est parvenu à sortir du grain sans subir de « pick-off » et qui vivrait librement entre les grains. Si cette hypothèse est exacte, la probabilité d'échappement du positonium doit augmenter en fonction de la surface spécifique et, en conséquence, la proportion de positonium qui s'annihile par « pick-off » doit diminuer.

C'est afin de vérifier comment les probabilités d'échappement et de « pick-off » varient en fonction de la surface spécifique que nous avons calculé les proportions de positonium respectivement libre et « quenché » par rapport à la quantité totale de posi-



COURBE 7. — Variations des quantités relatives de positonium libre et « pick-off » dans la silice en fonction de la surface.

tonium mesuré (courbe 7). En procédant ainsi, on élimine les disparités qui pourraient résulter de degrés de cristallinités très différents pour les divers échantillons. Il apparaît alors que la probabilité d'échappement croît grossièrement comme $1 - e^{-ks}$, tandis que la probabilité de « pick-off » décroît comme e^{-ks} quand s croît.

A noter que, dans cette analyse, la surface ne joue pas un rôle spécifique, elle n'est que le reflet de l'état de division de la poudre.

Elle permet aussi d'expliquer par une simple décroissance de la probabilité d'échappement, qui résulte d'une diminution de la surface, l'affaiblissement du pourcentage de positonium libre, constaté quand des gaz ou des liquides sont adsorbés sur la surface. La même explication s'applique à la diminution de la quantité de positonium libre constatée entre 600 et 900 °C et qui résulte d'un début de frittage dans nos échantillons, particulièrement important pour l'alumine.

Conclusion. — En résumé, le dernier modèle proposé semble en bon accord qualitatif avec tous nos résultats. Sous réserve de la justesse de cette analyse, il semble donc que l'annihilation du positon permette d'évaluer un certain nombre de caractéristiques d'une poudre :

- Degré de cristallinité dont dépend la quantité totale de positonium formé;
- Surface spécifique qui est en relation avec l'abondance relative du positonium libre.

Il est en outre possible de suivre l'évolution de l'adsorption d'un gaz ou d'un liquide.

Néanmoins, en vue de rendre ce modèle plus réaliste, il est encore nécessaire d'analyser le processus de diffusion qui conduit le positonium à vivre librement entre les grains.

Remarquons, enfin, que rien dans nos hypothèses ne s'oppose à la généralisation de ces phénomènes à tout corps solide de grande surface spécifique dans lequel un désordre suffisant favorise la formation de positonium.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] DE BENEDETTI (S.) et CORBEN (H. C.), *Ann. Rev. Nuclear Science*, **4**, 191.
- DE BENEDETTI (S.), BELL (R. E.) et DEUTSCH (M.), *Beta and Gamma Ray Spectroscopy*, pp. 672, 680 et 689, édit. K. Siegbahn, North Holland Company, 1955.
- BERKO (S.) et HEREFORD (F. L.), *Rev. Modern Physics*, 1956, **28**, 299.
- GREEN (J.) et LEE (J.), *Positronium Chemistry*, édit. Acad. Press, 1964.
- [2] PAULIN (R.) et AMBROSINO (G.), *C. R. Acad. Sc. Paris*, 1965, **260**, 6591.
- [3] PAULIN (R.) et AMBROSINO (G.), *Proceedings of positron-annihilation conference*, 1965, Acad. Press (à paraître).
- [4] PAULIN (R.) et AMBROSINO (G.), *C. R. Acad. Sc. Paris*, 1966, **263**, 207.
- [5] FRAISSARD (J.), Thèse rapport CEA 2129, 1962.
- [6] CELTANS (G. J.), TAO (S. J.) et GREEN (J. H.), *Proc. Phys. Soc.*, 1964, **83**, 823.
- [7] BISI (A.), BUSSOLATI (C.), COVA (S.) et ZAPPA (L.), *Phys. Rev.*, 1966, **141**, 348.
- [8] PAGE (L. A.), HEINBERG (M.), WALLACE (P. R.) et TROUT, *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 206.
- [9] LOVESTH (J.), *Physica Norvegica*, 1963, **1**, 145.
- [10] FERRELL (R. A.), *Rev. Modern Physics*, 1956, **28**, 308.