

# Lebensdauer der Positronen in Silberbromid

Autor(en): **Surbeck, H.**

Objektyp: **Article**

Zeitschrift: **Helvetica Physica Acta**

Band (Jahr): **50 (1977)**

Heft 5

PDF erstellt am: **30.06.2024**

Persistenter Link: <https://doi.org/10.5169/seals-114883>

## **Nutzungsbedingungen**

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern. Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

## **Haftungsausschluss**

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

# Lebensdauer der Positronen in Silberbromid

von H. Surbeck

Laboratorium für Festkörperphysik ETH Zürich, Hönggerberg CH-8093 Zürich (Switzerland)

(13.V.1977)

*Abstract.* Measurements of positron lifetime in AgBr crystals grown by different techniques are presented. The time spectra for annealed samples are analyzed in the frame of a 'two-state' model which takes into account the polarization by the positron's charge and the contribution from the silver d-shell electrons. The annihilation rates from the two states turn out to be  $4.35 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$  and  $3.16 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$  respectively. The transition rate varies from  $10^9 \text{ s}^{-1}$  to  $5 \times 10^{10} \text{ s}^{-1}$  for the crystals investigated. From mass spectrographic analysis and from the influence of doping or illumination on the positron lifetime it is concluded that the transition rate cannot be attributed to trapping of positrons at cation vacancies. However, a systematic correlation between the mean lifetime and the occurrence of the molecular ions  $\text{AgBr}^+$  and  $\text{Br}_2^+$  was noted in the mass spectrographic studies.

## Einleitung

Die Methode der Positronenannihilation (Zweiquanten-Winkelkorrelation, Dopplerverbreiterung der Annihilationslinie und Lebensdauer) wurde in den letzten Jahren mit Erfolg zur Untersuchung von Defekten in Metallen eingesetzt. Dabei traten die Arbeiten an Ionenkristallen etwas in den Hintergrund, wohl nicht zuletzt deshalb, weil sich das Schicksal der Positronen in Nichtmetallen als wesentlich komplexer erwiesen hat als ursprünglich angenommen wurde. Während sich 1953 die Lebensdauermessungen von Bell und Graham [1] an NaCl noch mit einer einzigen Komponente anpassen ließen, führten die Verbesserung der Zeitauflösung und der Auswertmethoden dazu, daß heute bis zu 4 Lebensdauerkomponenten aus den Messungen an KCl separiert werden können [2]. Man ist aber noch weit davon entfernt, dieses komplexe Verhalten der Positronen zu verstehen, d.h. aus den mit andern Methoden bestimmten Kristalleigenschaften das Lebensdauerspektrum vorauszusagen oder aus Lebensdauermessungen exakte Aussagen über Kristalleigenschaften zu gewinnen. Dennoch hat sich das Positron als sehr empfindliche Sonde für Kristalldefekte erwiesen. So genügt beispielsweise in KCl eine F-Zentren-Konzentration von  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$ , um im Lebensdauerspektrum deutlich eine langlebige Komponente erscheinen zu lassen [36].

Bei den Silberhalogeniden sind die Verhältnisse insofern einfacher, als bei unbelichteten Proben bisher nur zwei Lebensdauerkomponenten beobachtet wurden [3–7]. Die Resultate der verschiedenen Autoren weichen aber stark voneinander ab. Zudem beobachten Bardyshev et al. [5] bei belichteten AgCl- und AgBr-Pulvern eine dritte Komponente, während Kelly und Quick [7] keinen Einfluß der Belichtung feststellen.

In der vorliegenden Arbeit wird am Beispiel von Silberbromid gezeigt, daß diese

widersprüchlichen Resultate nicht nur durch apparative Unterschiede oder Streuungen, sondern durch den Zustand der Probe bedingt sind. Zur Interpretation der für viele verschiedene Proben (verschieden in Zuchtmethode und Verunreinigungen) aufgenommenen Lebensdauerspektren wird ein Modell vorgeschlagen, das berücksichtigt, daß die Ladung des Positrons zu einer lokalen Polarisierung des Kristalles führt und daß auch Annihilationen mit den Silber-d-Elektronen möglich sind.

Mit diesem Modell wird versucht, eine Synthese zwischen den für Metalle und kovalente Halbleiter einerseits und für ionische Substanzen andererseits existierenden Modellvorstellungen zu erreichen.

Die Proben wurden zur Charakterisierung massenspektrographisch analysiert. Dabei konnte erstmals eine Korrelation zwischen der Positronenlebensdauer und der Bildung von Matrixmolekülonen ( $\text{AgBr}^+$  und  $\text{Br}_2^+$ ) im Funkenmassenplasma beobachtet werden.

Der Einfluss mechanischer oder thermischer Vorbehandlung der Kristalle auf das Lebensdauerspektrum ist in [62] beschrieben.

## 1. Grundlagen

Der über die Spinorientierungen gemittelte Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  ist bei kleinen Relativgeschwindigkeiten  $v$  zwischen Positron und Elektron:

$$\sigma = \pi r_0^2 c/v \quad (\pi r_0^2 c = 7.48 \times 10^{-15} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}) \quad (1)$$

mit  $r_0$  = klassischer Elektronenradius,  $c$  = Lichtgeschwindigkeit. Damit wird die Annihilationsrate  $\lambda$ :

$$\lambda = \sigma v n_e(e^+) = \pi r_0^2 c n_e(e^+) \quad (2)$$

mit  $n_e(e^+)$  = Elektronendichte am Ort des Positrons.

Obwohl sich diese Arbeit mit der Lebensdauer der Positronen in einer polaren Substanz befaßt, ist eine kurze Betrachtung der Modelle für die Annihilation in Metallen und Elementhalbleitern recht aufschlußreich; sie zeigt den Weg, kovalente Bindungsanteile in ionischen Substanzen zu berücksichtigen.

### 1.2. Annihilation in Metallen

Die Leitungselektronen in einem Metall können grob als freies Elektronengas beschrieben werden. Die Annihilationsrate wird damit:

$$\lambda = \pi r_0^2 c n \xi_l, \quad n = \frac{N\rho}{A} \quad (3)$$

$N$  = Avogadro'sche Zahl

$\rho$  = spezifische Dichte

$A$  = Atomgewicht

$\xi_l$  = Anzahl Leitungselektronen pro Atom.

In (3) wird die lokale Änderung der Elektronendichte durch die Ladung des Positrons (Enhancement) vernachlässigt, die Übereinstimmung mit experimentellen Werten ist auch entsprechend schlecht (Fig. 1).  $\lambda_{\text{exp}}$  ist durchwegs größer als mit (3)

berechnet und strebt für kleine Elektronendichten gegen  $2 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$ . Wesentlich besser paßt:

$$\lambda = \lambda_0 + \pi r_0^2 c n \xi_1 f_1 \quad (4)$$

$\lambda_0$  = spingemittelte Annihilationsrate des freien Positroniums  
 $= \pi r_0^2 c |\psi(0)|^2$  mit  $\psi(r) = (\pi a_{Ps}^3)^{1/2} \exp(-r/a_{Ps})$  und  
 $a_{Ps} = 2a_H = 2 \times 0.529 \text{ \AA}$   
 $f_1$  = Enhancementfaktor für die Leitungselektronendichte.

$\lambda_0$  kann so verstanden werden, daß ein positroniumähnlicher Zustand gebildet wird, an dem aber nicht ein einzelnes Elektron beteiligt ist. Ein rascher Austausch ( $t_{\text{Austausch}} < 1/\lambda_0$ ) mit den Elektronen der Umgebung führt zu einer Spinmittelung. Der zweite Term in (4) beschreibt einen «Pick-off»-Prozeß. Mit dem Enhancementfaktor  $f_1$  wird die Polarisierbarkeit des Elektronengases berücksichtigt [8, 9, 10].

Für einfache Metalle (Alkali- und Erdalkalimetalle) wird  $\lambda$  recht gut durch (4) mit  $f_1 = 2$  wiedergegeben. Bei den Übergangsmetallen müssen aber offensichtlich Annihilationen mit  $d$ -Elektronen mitberücksichtigt werden. Bei den Lebensdauer-messungen ist dieser «core»-Anteil nicht vom Anteil der  $s$ - und  $p$ -Elektronen zu trennen, da bei Metallen nur eine einzige Lebensdauer beobachtet wird.

Eine grobe Abschätzung des «core»-Anteils liefern Messungen der Impulsverteilung der an den Annihilationen beteiligten Elektronen. Bei der  $2\gamma$ -Winkelkorrelationsmessung führen Annihilationen mit «freien» Elektronen zu einem annähernd parabelförmigen Beitrag, die Annihilationen mit «core»-Elektronen dagegen zu einer breiten gaußförmigen Verteilung. Die gleiche Information, wenn auch mit wesentlich schlechterer Impulsauflösung, läßt sich auch aus der Messung der Dopplerverbreiterung der 511 keV Linie gewinnen. Bei Berücksichtigung des «core»-Anteils ergibt sich für die Annihilationsrate:

$$\lambda = \lambda_0 + \pi r_0^2 c n (\xi_1 f_1 + \xi_c f_c) = \lambda_0 + \pi r_0^2 c n \xi_1 f_1 \left( 1 + \frac{\xi_c f_c}{\xi_1 f_1} \right) \quad (5)$$

$\xi_c$  = «core»-Elektronen pro Atom

$f_c$  = Enhancementfaktor für die «core»-Elektronendichte.

Der Zusammenhang zwischen den Lebensdauer- und Winkelkorrelationsmessungen ist

$$\xi_1 f_1 \propto P, \quad \xi_c f_c \propto G: \quad \frac{\xi_c f_c}{\xi_1 f_1} \simeq \frac{G}{P} \quad (6)$$

$P$  = relative Fläche unter der Parabelverteilung

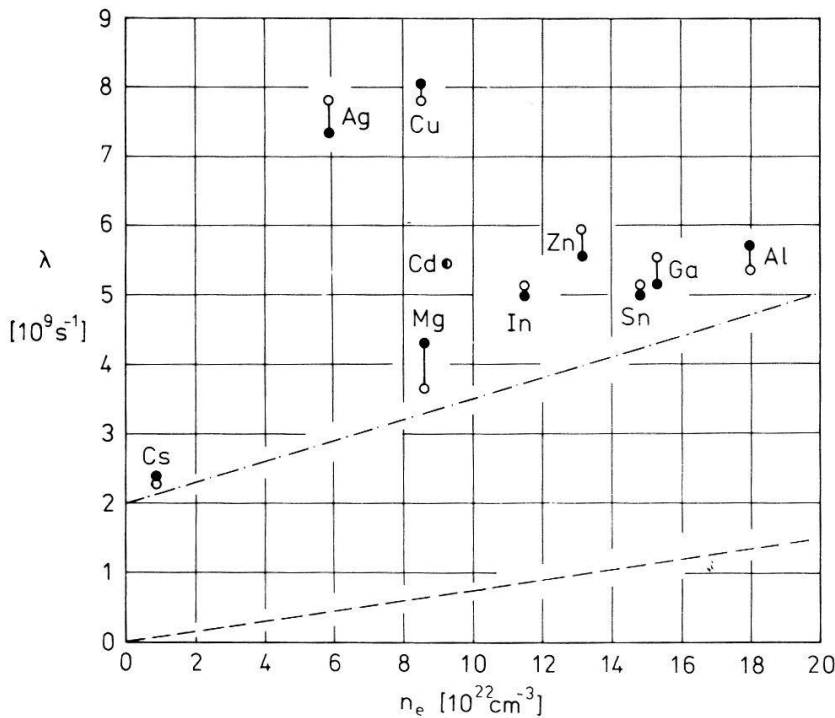
$G$  = relative Fläche unter der Gaußverteilung

Normierung:  $P + G = 1$

d.h.

$$\lambda = \lambda_0 + \pi r_0^2 c n \xi_1 f_1 \left( 1 + \frac{G}{P} \right) \quad (7)$$

Figur 1 zeigt einen Vergleich von (3), (4) und (7) mit neueren Lebensdauer- und Winkelkorrelationsmessungen (oder Dopplerverbreiterungsmessungen). Für die Berechnungen wurde  $f_1 = 2$  gesetzt, ein Wert der für Metalle gerechtfertigt scheint [11, 12] ( $\lambda_0$  und  $f_1$  stecken bei Brandt et al. im «Enhancementfaktor»  $h(r_s) = 1 + [(r_s^3 + 10)/6]$ ,  $r_s$  = Wigner-Seitz-Radius).



Figur 1

Vergleich der berechneten mit den experimentellen Annihilationsraten.  $n_e = n\xi_l$  = Leitungselektro-  
 nondichte, ●: Experiment [13, 14, 15]; -----: berechnet mit (3); -.-.-.-: berechnet mit (4),  $f_l = 2$ ;  
 ○: berechnet mit (7),  $f_l = 2$ , Ref. für G: [15–19].

## 1.2. Annihilation in Halbleitern und Isolatoren

Winkelkorrelationsmessungen an den Elementhalbleitern Si und Ge [20] zeigen, daß sich Valenzelektronen ähnlich wie freie Elektronen verhalten. Bei den Lebensdauermessungen wird wie bei den Metallen nur eine einzige Komponente beobachtet. Analog zu (7) läßt sich damit die Annihilationsrate als

$$\lambda = \lambda_0 + \pi r_0^2 c n \xi_v f_v \left( 1 + \frac{G}{P} \right) \quad (8)$$

schreiben. (Der Index  $v$  bedeutet, daß sich diese Größen auf die Valenzelektronen beziehen.) Mit den experimentellen Werten für  $\lambda$  und  $G$  [14, 20–25] ergibt sich  $f_v(\text{Ge}) = 1.4$  und  $f_v(\text{Si}) = 1.3$ . Nach Fieschi et al. [24] Brandt und Reinheimer [26] kann dieser Unterschied damit erklärt werden, daß  $f_v$  vom mittleren Abstand zwischen Valenz- und Leitungsband ( $E_{\text{gap}}$ ) abhängt, der für Si etwas größer ist als für Ge [ $E_{\text{gap}}(\text{Si}) = 5.0 \text{ eV}$ ,  $E_{\text{gap}}(\text{Ge}) = 4.0 \text{ eV}$ ].

$E_{\text{gap}}$  kann näherungsweise mit

$$\bar{\epsilon} - 1 \simeq \left( \frac{\hbar \omega_p}{E_{\text{gap}}} \right)^2 \quad (9)$$

berechnet werden. Dabei bedeuten:

$$\omega_p = \sqrt{\frac{4\pi}{m_e}} \xi_v n, \quad \bar{\epsilon} = \left( \frac{1}{\epsilon_\infty} - \frac{1}{\epsilon_0} \right)$$

mit  $\epsilon_\infty$  = optische Dielektrizitätskonstante  
 $\epsilon_0$  = statische Dielektrizitätskonstante.

Diese Rechnung führt für AgBr mit  $\xi_v = 8$  und  $\bar{\epsilon} = 8.19$  zu  $\overline{E_{\text{gap}}} = 5.7$  eV.

Bei polaren Halbleitern und Ionenkristallen sind die Verhältnisse wesentlich komplizierter, die Lebensdauerspektren lassen sich meistens in mehrere Komponenten zerlegen und diese Zerlegung ist außerdem in vielen Fällen nicht eindeutig. Erfreulicherweise konnten aber Bertolaccini et al. [27] für eine große Anzahl ionischer Substanzen zeigen, daß zwischen der mittleren Annihilationsrate ( $\bar{\lambda}^1$ ) und der molekularen Dichte  $n$  folgender Zusammenhang besteht:

$$\bar{\lambda} = \lambda_0 + \pi r_0^2 c n^* \xi, \quad n^* = n v_- / (1 - 4\pi/3 r_+^3 n v_+) \quad (10)$$

mit  $n = N\rho/M$ ,  $M =$  Molekulargewicht

$$\xi = 6.1$$

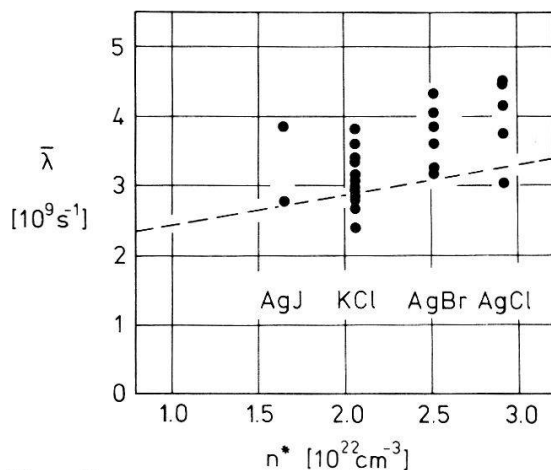
$r_+ =$  Kationradius

$v_- =$  Anionen/«Molekül»

$v_+ =$  Kationen/«Molekül»

Diese Beziehung wird damit erklärt, daß das Positron mit einem Elektronenpaar der Anionen korreliert ist, es kann dabei aus dem Singulettzustand mit einem Elektron des Paares oder mit einem der 6 verbleibenden Elektronen der äußeren Anionschale annihilieren.

Dabei wird angenommen, daß sich das Positron nicht beim Kation aufhalten kann und damit eine größere Dichte der Anionen «sieht», was durch die Verwendung von  $n^*$  anstelle von  $n$  berücksichtigt wird. Die Übereinstimmung von (10) mit experimentellen Werten ist im allgemeinen sehr gut. Es sind aber einige Lebensdauer-messungen bekannt, die große Abweichungen von (10) zeigen (Fig. 2).



Figur 2

$\bar{\lambda}$  für KCl [27–39]; AgJ [3, 4]; AgBr [3–7]; AgCl [3, 4, 5]. — — — berechnet mit (10).

Da  $\bar{\lambda}$  ( $\lambda_1$  in [27]) nach Bertolaccini et al. einer «bulk»-Annihilationsrate entspricht, sind diese Abweichungen nicht durch Unterschiede in der Reinheit oder der mechanischen Bearbeitung erklärbar. Daß hier wirklich ein Problem steckt, scheint bis jetzt nicht erkannt worden zu sein. Es fehlte auch eine systematische Untersuchung vieler Proben unterschiedlicher Zucht und Präparation der gleichen Substanz. Die mit der im folgenden Kapitel 2. beschriebenen Apparatur durchgeführten Messungen sollen diese Lücke zumindest für AgBr schließen.

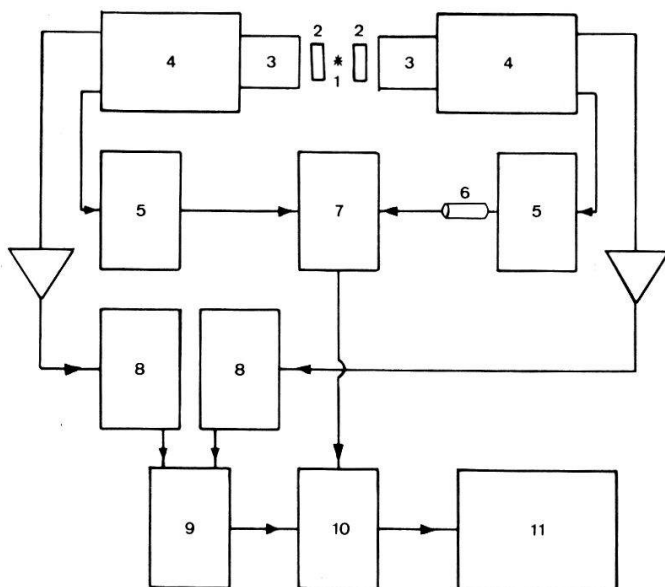
<sup>1)</sup> Def.  $\bar{\lambda} \equiv \sum_i \frac{I_i}{\tau_i}$ , mit  $\tau_i =$  Lebensdauer der Komponente  $i$ ;  $I_i =$  rel. Intensität der Komponente  $i$ , siehe auch Kap. 2.3.

## 2. Messapparatur

### 2.1. Aufbau

Die Positronen aus einer zwischen die Probenhälften geklemmten  $^{22}\text{Na}$ -Quelle werden in der Probe rasch auf thermische Geschwindigkeiten abgebremst und annihilieren mit den Elektronen unter Emission von zwei 511-keV-Gammaquanten. Praktisch gleichzeitig mit einem Positron emittiert die Quelle ein 1.27-MeV-Quant (die Lebensdauer des angeregten  $^{22}\text{Ne}$ -Kerns beträgt nur 3 ps). Dieses Quant dient als Startsignal für eine elektronische Uhr, die durch eines der Annihilationsquanten wieder gestoppt wird.

Die Apparatur ist nach der konventionellen «fast-slow»-Methode aufgebaut (Fig. 3). Die schnellen Signale werden an der Anode abgegriffen und auf Diskriminatoren des «constant-fraction»-Typs [40, 41] geführt, deren Ausgangspulse einen Zeit-Amplituden-Konverter (TAC) starten oder stoppen. Über die an der letzten Dynode angeschlossenen langsamen Kanäle ist eine Energieselektion möglich. Damit kann verhindert werden, daß Ausgangssignale des TAC, die von einem 511-keV–511-keV-Ereignis stammen, vom Vielkanalanalysator (MCA) verarbeitet werden.



Figur 3

Blockschema der Apparatur: (1) Quelle:  $\approx 3 \mu\text{Ci } ^{22}\text{Na}$  zwischen zwei 6- $\mu\text{m}$ -Melinexfolien; (2) Probenhälften:  $\varnothing$  5–10 mm, Dicke  $> 200 \text{ mgcm}^{-2}$  ( $\approx 0.3 \text{ mm AgBr}$ ); (3) Plastikszintillatoren NE 111, 1"  $\varnothing$   $\times$  1"; (4) Photomultiplier RCA 8575; (5) Constant Fraction Discriminator ORTEC 270 + Time Pick-off Control ORTEC 403A; (6) Verzögerungsleitung  $\approx 30 \text{ ns}$ , 6 m RG 174; (7) Time Amplitude Converter ORTEC 437A (TAC); (8) Einkanalanalysator ORTEC 486; (9) Koinzidenz ORTEC 418A; (10) Vielkanalanalysator mit linearem Gate, DIDAC 800; (11) Drucker und Lochstreifenstanzer, TELETYPE.

### 2.2. Zeitauflösung

Aus der Verteilung der für zwei gleichzeitig emittierte Gammaquanten gemessenen Zeitdifferenzen kann die Auflösung bestimmt werden. Dies ist mit einer  $^{60}\text{Co}$ -Quelle möglich, da die Lebensdauer des Zwischenniveaus der 1.17-MeV–

1.33-MeV-Kaskade nur 0.7 ps beträgt. Die Auflösungskurve der für diese Arbeit benützten Apparatur lässt sich bis hinunter zu einigen Prozent gut durch eine Gaußkurve  $G$  mit einer Halbwertsbreite (FWHM) von  $(335 \pm 5)$  ps beschreiben.

$$G(t, T_0) = \frac{1}{s\sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{(t - T_0)^2}{s^2}\right) \quad (11)$$

mit  $T_0 =$  Zeitnullpunkt und  $\text{FWHM} = 2\sqrt{\ln 2}s$

### 2.3. Auswertung

Für die Häufigkeitsverteilung  $P(t)$  der Zeitdifferenz zwischen der Emission und der Annihilation eines Positrons wird angenommen, daß sie sich als eine Summe von Exponentialfunktionen beschreiben läßt:

$$P(t) = \sum_i \frac{I_i}{\tau_i} \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right) \quad (12)$$

mit  $\tau_i =$  Lebensdauer der  $i$ -ten Komponente  
 $I_i =$  relative Intensität der  $i$ -ten Komponente  
 Normierung:  $\sum_i I_i = 1$ .

Die gemessene Verteilung  $N(j)$  ergibt sich durch Faltung von  $P$  mit der Auflösungs-funktion  $G$ , Integration über den Zeitbereich des Kanals  $j$  und Addition der zufälligen Koinzidenzen.

Mit dem von Kirkegaard und Eldrup entwickelten Computerprogramm POSITRONFIT [42, 43] kann die Verteilung  $N(j)$  nach den Komponenten  $\tau_i$  und  $I_i$  aufgelöst werden ( $i \leq 4$ ).

Zwei Beispiele für an AgBr gemessene Lebensdauerspektren sind in Figur 5 gezeigt. Die Angaben für  $\tau$  und  $I$  sind die Resultate der Auswertung mit POSITRONFIT, die eingezeichneten Geraden geben den ungefalteten Verlauf der Komponenten wieder.

Für die Auswertung werden jeweils 200 Kanäle benützt, die nach einer Meßzeit von 20 Stunden total  $5 \times 10^5 - 10^6$  Koinzidenzen enthalten. Die im folgenden angegebenen Resultate sind Mittelwerte aus mindestens 4 solchen «runs».

Leider ist die Zerlegung eines Spektrums in seine Komponenten nicht immer so eindeutig wie für die Beispiele in Figur 5.

Folgende Schwierigkeiten können auftreten:

- (1) Ein «best-fit» ist mit einer unterschiedlichen Anzahl von Komponenten möglich.
- (2) Bei kleiner Intensität einer kurzlebigen Komponente kann diese nicht mehr eindeutig aufgelöst werden. Der Grund dafür liegt sehr wahrscheinlich darin, daß die für die Auswertung benützte Faltungsfunktion nicht genau der wirklichen Auflösungs-funktion entspricht. Über ähnliche Schwierigkeiten berichten auch Petersen et al. [44].

In solchen Fällen ist die beste Observable sicher die mittlere Lebensdauer  $\bar{\tau}$

$$\bar{\tau} \equiv \sum_i I_i \tau_i.$$

Sie hängt nur wenig von der Art der Zerlegung ab.



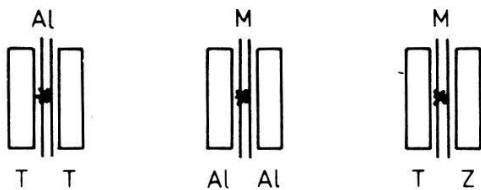
#### 2.4. Annihilationen in der Quelle

Das Quellmaterial ( $^{22}\text{NaCl}$ ) befindet sich zwischen zwei dünnen Kunststoff-Folien. Die Absorption der Positronen im Quellmaterial kann durch geeignete Präparation auf weniger als 1% reduziert werden. Der Anteil der Annihilationen in den Deckfolien ist jedoch nicht zu vernachlässigen. Dieser Anteil hängt nicht nur von der Dicke der Folien sondern auch vom Rückstreukoeffizienten der Probe ab.

Für Betastrahler mit einem kontinuierlichen Energiespektrum ist die Schwächung beim Durchgang durch den Absorber der Dicke  $d$  näherungsweise durch  $I/I_0 = \exp[-(\mu/\rho)d]$  gegeben [47]. ( $\mu/\rho$  = Massenabsorptionskoeffizient). Der Anteil der in den Folien annihilierenden Positronen  $P_f$  wird damit für dünne Folien und bei Berücksichtigung der Rückstreuung:

$$P_f = \alpha(1 + \beta)/[1 - \beta(1 - 2\alpha)]$$

mit  $\alpha = (\mu/\rho)d$  und  $\beta$  = Rückstreukoeffizient im Probenmaterial. Für  $\mu/\rho$  existieren recht unterschiedliche Angaben, die sich alle auf die Absorption von Elektronen beziehen [45, 46, 47].  $P_f$  wurde deshalb direkt aus Positronenlebensdauermessungen bestimmt, was nach Bisi und Braicovich [48] mit den folgenden Proben- und Quellenanordnungen möglich ist:



Al: Aluminium, M: Melinex, T: Teflon, Z: Material mit der Kernladung Z, \*Quellmaterial

Da sowohl für Teflon als auch für Melinex eine lange Lebensdauerkomponente beobachtet wird (3.7 ns für Teflon und 1.7 ns für Melinex), die in Metallen nicht auftritt, kann aus der Intensität dieser Komponente der Anteil der im Teflon oder Melinex annihilierenden Positronen bestimmt werden.

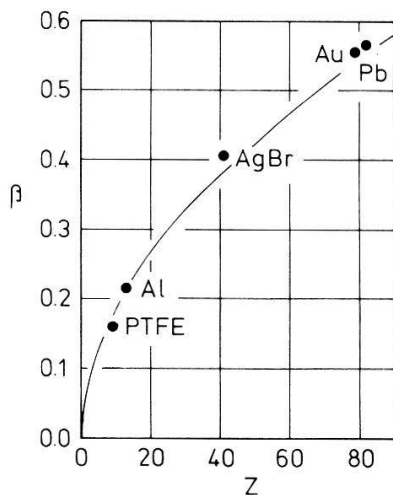
Aus diesen Messungen folgt  $\mu/\rho = (3.4 \pm 0.3) \times 10^{-2} \text{ mg}^{-1} \text{ cm}^2$  für die Positronen aus einer  $^{22}\text{Na}$ -Quelle. Zum gleichen Wert führt die Berechnung mit der von Evans [47] angegebenen Beziehung zwischen  $\mu/\rho$  und der maximalen Beta-Energie  $E_m$ :

$$\frac{\mu}{\rho} [\text{g}^{-1} \text{ cm}^2] = \frac{17}{E_m^{1.14} [\text{MeV}]} \quad (15)$$

Die ebenfalls aus diesen Messungen bestimmten Rückstreukoeffizienten werden mit der von Bisi und Braicovich angegebenen Beziehung

$$\beta(Z) = 6 \times 10^{-2} \sqrt{Z} \quad (16)$$

recht gut wiedergegeben (Fig. 4). Bertolaccini und Zappa [49] finden eine ähnliche Z-Abhängigkeit für den Anteil der in den Deckfolien annihilierenden Positronen. Die von Mackenzie et al. [50] ebenfalls aus Positronenexperimenten (Dopplerverbreiterung) bestimmten Werte weichen nicht wesentlich von (16) ab.



Figur 4

Rückstreuoeffizient als Funktion der Kernladungszahl  $Z$ . —  $\beta(Z) = 6 \times 10^{-2} \sqrt{Z}$ . Die mittlere Kernladungszahl für Verbindungen wurde mit berechnet.

$$Z_{AnBm} = \sqrt{\frac{nZ_A^2 + mZ_B^2}{n + m}} \quad (17)$$

Für AgBr-Proben ( $\beta = 0.41$ ) muß damit bei Verwendung von  $6\text{-}\mu\text{m}$ -Melinex-folien ( $\cong 0.83 \text{ mg cm}^{-2}$ ) folgender Anteil vom «rohen» Spektrum subtrahiert werden:

Anteil am gesamten Spektrum: 6.7%

Lebensdauerspektrum von Melinex (ICI):

$$\tau_1 = (400 \pm 20) \text{ ps}$$

$$\tau_2 = (1700 \pm 50) \text{ ps}$$

$$I_2 = (34 \pm 3)\%$$

Der Einfluß dieser Korrektur ist in Figur 5a zu sehen (zufällige Koinzidenzen  $\simeq 5/\text{Kanal}$ ).

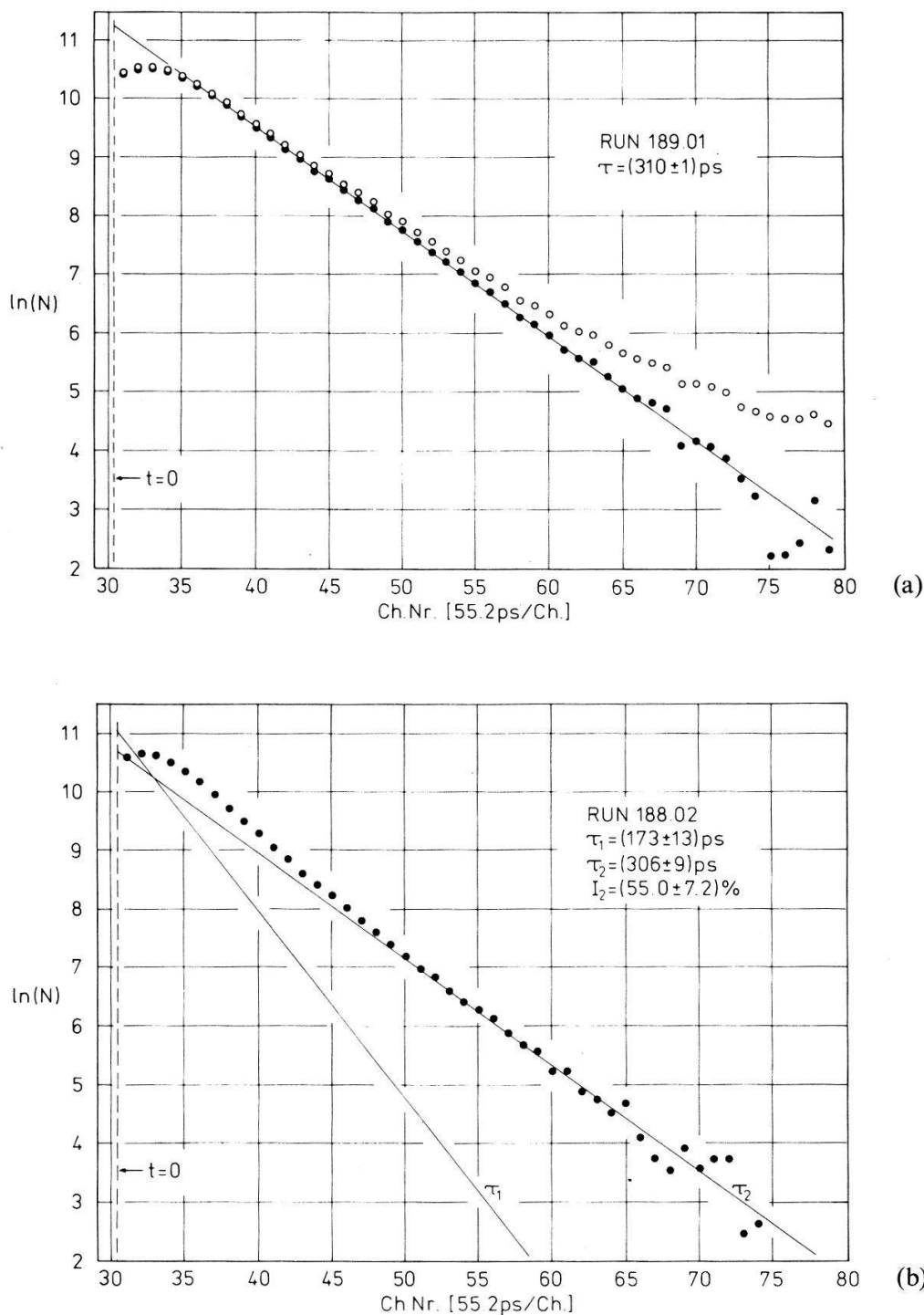
### 3. Messungen an Silberbromid

Für die in Tabelle 1 aufgeführten Proben wurde das Lebensdauerspektrum mit der beschriebenen Apparatur bei einer Zeitauflösung von 335 ps (FWHM) aufgenommen und mit POSITRONFIT ausgewertet. Proben temperatur während des Messungen:  $(293 \pm 3) \text{ K}$ .

#### 3.1. Resultate (Fig. 6)

Die stabilste Größe, die aus einem Lebensdauerspektrum gewonnen werden kann, ist sicher die mittlere Lebensdauer  $\bar{\tau}$ , deren Wert nur wenig von der Art der Zerlegung abhängt (siehe auch Kap. 2.3.).

Da zunächst nicht klar ist, nach welchen Kriterien die Messungen geordnet werden sollen, wird eine etwas unkonventionelle Datstellung der Resultate gewählt: als Abszisse dient die integrale Größe  $\bar{\tau}$ , in der Ordinate sind Lebensdauer und



Figur 5

Typische Lebensdauerspektren für AgBr-Proben, ausgewertet mit POSITRONFIT. ○: «rohes» Spektrum, ●: zufällige Koinzidenzen und Anteil der Annihilationen in den Deckfolien der Quelle subtrahiert. (a) AgBr (300 ppm Pb); (b) AgBr (100 ppm J).

Intensität der Komponenten aufgetragen, die zu diesem  $\bar{\tau}$ -Wert führen. Eine zweite integrale Größe, die mittlere Annihilationsrate  $\bar{\lambda}$ , ist ebenfalls als Funktion von  $\bar{\tau}$  dargestellt, da  $\bar{\lambda}$  im Gegensatz zu  $\bar{\tau}$  stark von der Art der Zerlegung des Lebensdauerpektrums abhängt. (Nicht, oder nicht richtig aufgelöste kurzlebige Komponenten können den Wert von  $\bar{\lambda}$  verfälschen.)

Tabelle 1  
Liste der AgBr-Proben. Die Probennummerierung entspricht den Zahlen in Figur 6

Abschnitte von selbstgezüchteten Kristallen:

- 1: gepreßt und getempertes AgBr-MERCK-LAB-Pulver.  
 2-5: gezüchtet mit der Stöber-Methode [51], Ausgangsmaterial AgBr MERCK LAB, getempert.  
 6-8: AgBr MERCK LAB, zonengeschmolzen, getempert.  
 6, 7: Anfang des Stabes, 8: Ende des Stabes.  
 9: AgBr MERCK LAB, zonengeschmolzen, im Bromdampf ( $\approx 100$  Torr) getempert.  
 10: AgBr-MERCK-SELECTIPUR-Pulver, gepreßt und getempert.  
 11: AgBr MERCK SELECTIPUR, zonengeschmolzen und getempert.

Abschnitte von einem am MAX-PLANCK-Institut für Festkörperforschung in Stuttgart mit der Bridgman-Methode gezüchteten Kristall. Ausgangsmaterial AgBr MERCK LAB:

- 12, 13: getempert.  
 14: im Bromdampf ( $\approx 500$  Torr) getempert.  
 15: im Bromdampf ( $\approx 100$  Torr) aufgeschmolzen, unter Argon getempert.

Proben von der CIBA-GEIGY Photochemie A.G. in Fribourg:

- 16, 17: nach der «Tropfenmethode» [52] aus den Elementen hergestellt.  
 18, 19: aus der Schmelze gezogen, enthalten 300 molppm Pb.  
 20-27: nach der Bridgman-Methode gezüchtet, das Ausgangsmaterial wurde nach der Tropfenmethode hergestellt und die Dotierungen der Schmelze beigegeben (in der Form von AgJ, CdBr<sub>2</sub> oder CuBr)

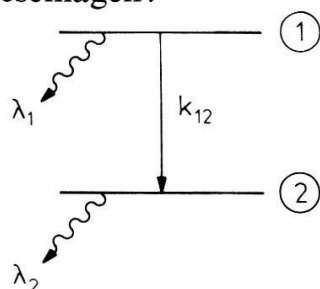
Nominelle Dotierungskonzentration in molppm

- |               |                              |                             |
|---------------|------------------------------|-----------------------------|
| 20: 10 ppm J  | 22: 1 ppm Cd <sup>++</sup>   | 25: 1 ppm Cu <sup>+</sup>   |
| 21: 100 ppm J | 23: 10 ppm Cd <sup>++</sup>  | 26: 10 ppm Cu <sup>+</sup>  |
|               | 24: 100 ppm Cd <sup>++</sup> | 27: 100 ppm Cu <sup>+</sup> |

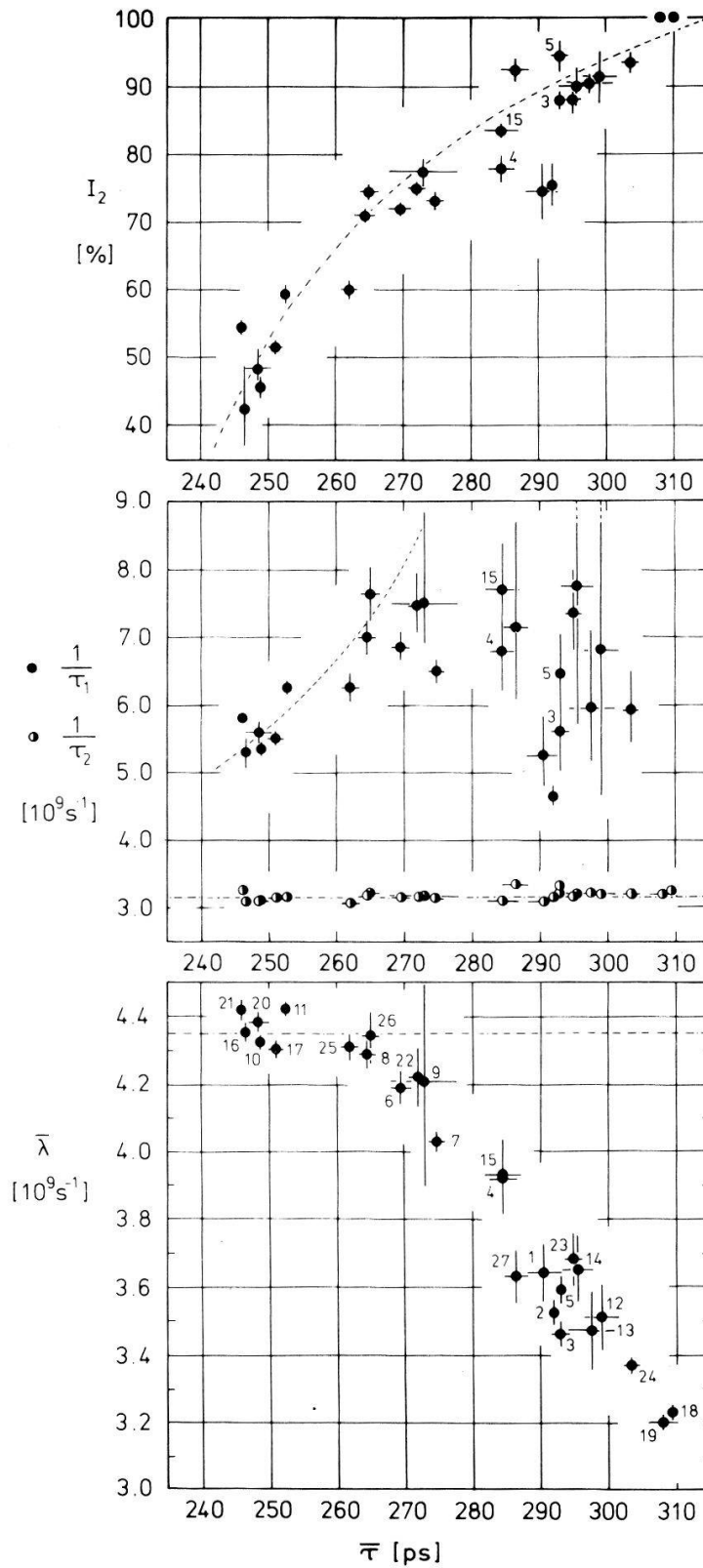
### 3.2. Diskussion

Falls  $1/\tau_1$  und  $1/\tau_2$  direkt den Annihilationsraten aus Zuständen unterschiedlicher Elektronendichte zugeordnet werden, d.h. daß keine Übergänge zwischen diesen Zuständen möglich sind, dann sind die höchsten  $1/\tau_1$ -Werte nur durch die Anwesenheit großer Silbercluster metallischer Dichte zu erklären. Kleine Silberkolloide können in geringer Konzentration durchaus auch in gut getemperten unbelichteten Proben vorhanden sein. Das Lebensdauerspektrum ändert sich aber nicht, wenn durch Blichtung Silberkolloide in großer Zahl erzeugt werden (Fig. 7).

Gegen die Interpretation von  $1/\tau_1$  als Annihilationsrate in Silberclustern sprechen auch die Lebensdaueremessungen von Kelly und Quick [7] an AgBr-Mikrokristallen, bei denen durch die Wahl der Ag-Konzentration bei der Fällung ein Silberüberschuß eingebaut wurde. Diese Messungen zeigen nur eine schwach Abhängigkeit von der Ag-Konzentration und die kürzeste beobachtete Lebensdauer ist zudem  $\approx 300$  ps, also überhaupt nicht vergleichbar mit  $\tau_1$  in Figur 6. Daher wird das folgende Modell vorgeschlagen:



① entspricht den freien, thermalisierten Positronen, die mit der Rate  $\lambda_1$  aus diesem «Zustand» annihilieren können oder mit der Rate  $k_{12}$  in den Zustand ② übergehen und dort mit der Rate  $\lambda_2$  annihilieren. Für dieses Modell muß vorausgesetzt werden, daß die Positronen in ② stärker an den Kristall gebunden sind als die freien Positronen.



Figur 6  
 Resultate der Auswertung mit POSITRONFIT für die Proben nach Tabelle 1. — — —: mit (18) berechneter Verlauf von  $1/\tau_1$  und  $I_2$ . — — — —: für diese Rechnung benützte Werte für  $\lambda_1$  und  $\lambda_2$ .

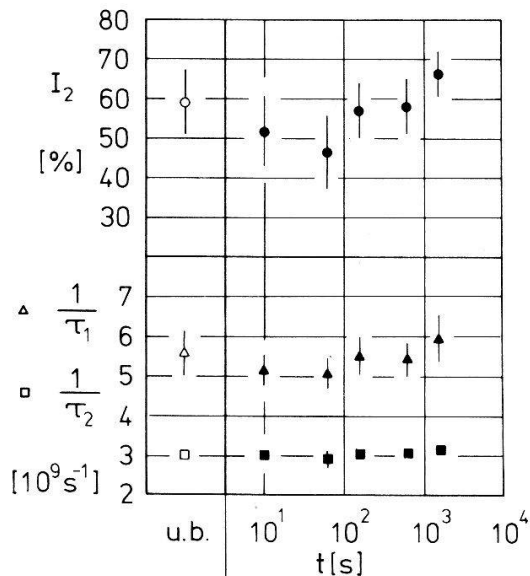
Mit den Anfangsbedingungen  $N_1(t = 0) = 1$  und  $N_2(t = 0) = 0$  ( $N_i =$  Besetzungszahl des Zustandes  $i$ ) ergibt sich folgendes Lebensdauerspektrum:

$$P(t) = J_1 \mu_1 \exp(-\mu_1 t) + J_2 \mu_2 \exp(-\mu_2 t) \tag{18}$$

mit  $\mu_1 = \lambda_1 + k_{12}$

$$\mu_2 = \lambda_2$$

$$J_2 = k_{12}/(\mu_1 - \mu_2), J_1 + J_2 = 1$$



Figur 7

Einfluß der Belichtung auf das Lebensdauerspektrum der Positronen in nominell reinem polykristallinem AgBr. u.b.: unbelichtet. Daneben die gleiche Probe nach verschiedenen Belichtungszeiten  $t$ . Lichtquelle: Hg-Dampf-Lampe mit 436-nm-Filter (Filtraflex K2). Intensität auf der Probe:  $\approx 0.3 \text{ mWcm}^{-2}$ .

Die Bezeichnungen  $J$  and  $\mu$  werden hier gebraucht um diese Modellgrößen von den gemessenen Größen  $I$  und  $\tau$  zu unterscheiden.

Beim Vergleich dieses Modells mit den Messungen in Figur 6 muß berücksichtigt werden, daß sehr kurzlebige, schwache Lebensdauerkomponenten nicht notwendigerweise richtig aufgelöst werden. Bei der Auswertung der Spektren zeigte sich, daß für  $\tau_1 \lesssim 130 \text{ ps}$  und  $I_1 \lesssim 25\%$  (was  $\bar{\tau} \lesssim 265 \text{ ps}$  entspricht) die numerische Korrelation zwischen  $\tau_1$  und  $I_2$  sehr stark wird. Daher soll die Zuordnung von  $\tau_1, \tau_2$  und  $I_2$  zu den Modellparametern für die Messungen mit  $\bar{\tau} \leq 265 \text{ ps}$  und für die mit  $\bar{\tau} > 265 \text{ ps}$  separat ausgeführt werden:

$\bar{\tau} \leq 265 \text{ ps}$ :  $\tau_1$  wird ohne Schwierigkeiten aufgelöst, also:  $1/\tau_1 = \lambda_1 + k_{12}$ ,  $1/\tau_2 = \lambda_2$ ,  $I_2 = J_2$ . Die mittlere Annihilationsrate  $\bar{\lambda}$  ist damit gleich  $\lambda_1$ .

$\bar{\tau} > 265 \text{ ps}$ :  $\tau_1$  wird nicht richtig aufgelöst, also:  $1/\tau_1 < \lambda_1 + k_{12}$ ,  $1/\tau_2 = \lambda_2$ ,  $I_2 \neq J_2$  und damit:  $\bar{\lambda} < \lambda_1$ .

Im folgenden wird angenommen, daß  $\lambda_1$  für alle Proben konstant ist und aus den Messungen mit  $\bar{\tau} \leq 265 \text{ ps}$  entnommen werden kann. Diese Annahme kann nicht bewiesen werden, es ist aber sehr unwahrscheinlich, daß sich  $\lambda_1$  gerade dort ändern sollte, wo die Schwierigkeiten mit der Auflösung von  $\tau_1$  beginnen.

### 3.3. Die Interpretation von $\lambda_1$ , $\lambda_2$ und $k_{12}$

Die Winkelkorrelationsmessungen von Herlach und Oggenfuss an AgBr [53] zeigen eine breite gaußförmige Verteilung, die der Annihilation mit core-Elektronen zugeordnet werden kann und eine annähernd parabelförmige Verteilung, die damit erklärt wird, daß pro AgBr-«Molekül»  $\simeq 8$  Elektronen ins Valenzband abgegeben werden. Es liegt daher nahe, die Beziehung (8) auch auf polare Substanzen auszuweiten, d.h. das ionische Modell von Bertolaccini et al. durch die Berücksichtigung der core-Annihilationen zu erweitern. Die Annihilationsrate der freien Positronen aus dem Zustand ① wird damit:

$$\lambda_1 = \lambda_0 + \pi r_0^2 c n (\xi_v f_v + \xi_c f_c). \quad (19)$$

Eine Abschätzung von  $f_c/f_v$  liefert der entsprechende Wert für metallisches Silber, da die Abstände des d-Bandes vom Leitungsband im Metall und in AgBr vergleichbar sind [54, 55]. Mit (6) folgt aus den Messungen von Mackenzie et al. [15]  $f_c/f_v = 0.57$ . Wird dieser Wert zusammen mit  $\xi_v = 8$ ,  $\xi_c = 10$ ,  $\lambda_1 = 4.35 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$  in (19) eingesetzt, ergibt sich  $f_v = 1.1$ , was gut zu  $f_v$  für Si oder Ge paßt, wenn man den etwas größeren mittleren Bandabstand in AgBr berücksichtigt (Siehe dazu auch Kap. 1.2.).

Falls der Zustand ② Positronen zugeordnet wird, die vorwiegend bei den Anionen lokalisiert sind, folgt  $\lambda_2$  aus  $\lambda_1$  durch Vernachlässigung des core-Anteils:

$$\lambda_2 = \lambda_0 + \pi r_0^2 c n \xi_A f_A \quad (\text{A: Anion}). \quad (20)$$

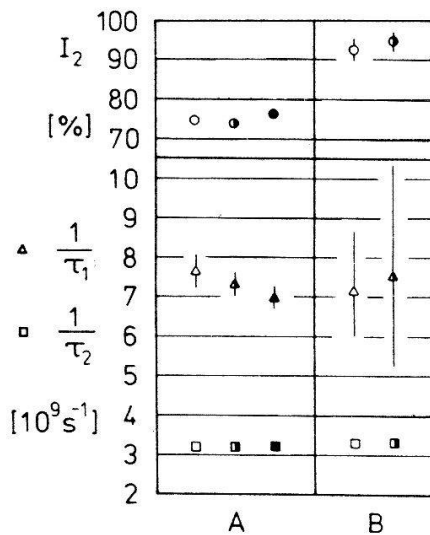
Mit  $\xi_A = \xi_v = 8$  und  $f_A = f_v = 1.1$  wird  $\lambda_2$  mit  $3.34 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$  etwas größer als der experimentelle Wert von  $3.16 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$ . Es ist aber nicht möglich, daraus auf  $\xi_A < \xi_v$  oder  $f_A < f_v$  zu schließen; dazu ist der Ansatz (19) zu grob und die Bestimmung von  $f_c/f_v$  aus den Metallmessungen zu unsicher. Eine Verbesserung von (19) und (20) ließe sich sicher dadurch erreichen, daß der Beitrag der Br-4s-Elektronen separat behandelt wird, da das s-Band energetisch wesentlich unter dem p-Band liegt. Der Zusammenhang zwischen der Bandstruktur und dem Enhancementfaktor ist dazu aber zu wenig bekannt. Weitere Lebensdauermessungen an polaren Substanzen mit stark kovalentem Bindungsanteil könnten hier mehr Klarheit schaffen.

Falls  $k_{12}$  als Einfangrate in Kationleerstellen interpretiert wird, wie dies von Brandt et al. [56, 57, 58] für Alkalihalogenide vorgeschlagen wurde, entspricht  $\lambda_2$  der Annihilationsrate mit den Elektronen der die Leerstelle umgebenden Anionen. Nach Kelly [4] verhindert aber die große Dielektrizitätskonstante des Silberbromids eine Lokalisierung des Positrons in der unmittelbaren Umgebung des Defektes,  $\lambda_2$  sollte sich daher nur um  $\simeq 1\%$  von der «bulk»-Annihilationsrate  $\lambda_1$  unterscheiden. Auch die folgenden, experimentellen Tatsachen sprechen gegen diese Interpretation:

- (1)  $k_{12}$  nimmt zwar mit zunehmender  $\text{Cd}^{++}$ -Konzentration zu (Proben 22, 23 und 24 in Fig. 6), steigt aber auch bei einer Dotierung mit  $\text{Cu}^+$  (25, 26 und 27 in Fig. 6). Da  $\text{Cu}^+$  nach Müller [59] bei Raumtemperatur auf regulären Gitterplätzen eingebaut ist, sollte diese Dotierung mit einem einwertigen Kation nicht zu einer Erhöhung der Silberleerstellenkonzentration führen. Aus den Photolumineszenzmessungen von Hediger [60] an gleich hergestellten Proben kann geschlossen werden, daß das Kupfer mindestens zum größten Teil als  $\text{Cu}^+$  eingebaut ist.
- (2) Die funkenmassenspektrographischen Analysen zeigen, daß auch in Proben

mit kleinem  $k_{12}$  große Verunreinigungskonzentrationen auftreten können [61].

- (3)  $\text{Cu}^{++}$ -Zentren, die durch die Belichtung  $\text{Cu}^+$  haltiger AgBr-Kristalle erzeugt wurden, haben keinen Einfluß auf das Lebensdauerspektrum (Fig. 8).
- (4) Die Dotierung mit Jod ergibt ebenfalls keine Änderung von  $k_{12}$  (Proben 20 und 21 in Fig. 6), obwohl der erhöhte Raumbedarf des  $\text{J}^-$  zu einer bevorzugten Lückenanhäufung in der unmittelbaren Nachbarschaft der Fremationen und damit zu einer Störung des Frenkelgleichgewichts führt.
- (5) Die großen Positronenlebensdauern die Kelly [4] in sehr reinen AgBr-Kristallen ( $< 1$  mol ppm mehrwertige Metallverunreinigungen) findet, lassen sich nur mit einem Einfang der Positronen in Kationleerstellen erklären, falls diese Kristalle mindestens 100 ppm mehrwertige Metalle enthalten.



Figur 8

Einfluß der Belichtung  $\text{Cu}^+$  haltiger AgBr-Kristalle auf das Lebensdauerspektrum der Positronen. A: AgBr (10 ppm  $\text{Cu}^+$ ); B: AgBr (100 ppm  $\text{Cu}^+$ );  $\square$   $\Delta$   $\circ$ : unbelichtet;  $\blacksquare$   $\blacktriangle$   $\bullet$ : 200 s mit  $0.3 \text{ mWcm}^{-2}$  (436 nm) belichtet;  $\blacksquare$   $\blacktriangle$   $\bullet$ : 500 s belichtet.

Einen möglichen Weg zum Verständnis der Übergangsrate zeigt aber der Zusammenhang zwischen der mittleren Positronenlebensdauer und der Häufigkeit von Molekülionen im Funkenmassenplasma. Für Proben mit kleinem  $\bar{\tau}$  (entsprechend kleinem  $k_{12}$ ) wurden im Massenspektrum große Konzentrationen von  $\text{AgBr}^+$  und  $\text{Br}_2^+$  beobachtet [61].

Für das Auftreten von Matrixmolekülionen ist sehr wahrscheinlich eine Störung der Bindungsverhältnisse verantwortlich. Durch eine Verkleinerung der Ladungssymmetrie zwischen Kation und Anion, d.h. einer lokalen Bevorzugung kovalenter Bindung, könnte die Wahrscheinlichkeit für die Bildung von Molekülionen erhöht werden.  $\lambda_1$  wäre damit die Annihilationsrate in solchen «gestörten» Gebieten. Die Tatsache, daß der große Wert, der für  $\lambda_1$  gefunden wurde, durch die Berücksichtigung von Annihilationen mit Silber-d-Elektronen erklärt werden kann, paßt sehr gut in dieses Bild.  $k_{12}$  entspricht danach der Übergangsrate der Positronen in ungestörte Kristallgebiete, in denen sie mit der «ionischen» Rate  $\lambda_2$  annihilieren.

Ein Modell mit einer mit  $k_{12}$  vergleichbaren «detrapping» Rate  $k_{21}$  kann die



beobachtete Konstanz von  $\tau_2$  nicht erklären. Das Positron muß daher im Zustand ② stärker an den Kristall gebunden sein als im Zustand ①. Diese Energiedifferenz kann neben der Anregung von Schwingungen des ungestörten Gitters auch durch die Streuung der Positronen an Verunreinigungen abgegeben werden.  $k_{12}$  wird damit einerseits durch das Ausmaß der «Störung» und andererseits durch die Konzentration der Streuzentren bestimmt.

Mit dieser Vorstellung einer Störung der Bindungsverhältnisse in Richtung eines stärker kovalenten Anteils kann zwar der Zusammenhang zwischen den Lebensdauermessungen und dem Auftreten von Matrixmolekülonen im Funkenmassenplasma plausibel gemacht werden, die Ursache und die Natur dieser Störung bleiben aber unklar. Einen Hinweis für die Lösung dieses Problems könnte die beobachtete Abhängigkeit von der Zuchtmethode geben: Die Molekülkonzentration ist für Kristalle, die mit der Stöber- oder Bridgman-Methode gezüchtet wurden, durchwegs kleiner als für Kristalle vergleichbarer Reinheit die durch Elementarsynthese hergestellt wurden.

Herrn Prof. Dr. F. Heinrich möchte ich für die Anregung zu dieser Arbeit und deren Förderung herzlich danken.

Mein Dank gilt auch Herrn Dr. J. T. Muheim für die massenspektrographischen Analysen und für klärende Diskussionen.

Den Herren Dr. P. Junod und H. Walliser von der CIBA-GEIGY Photochemie AG in Fribourg, Herrn Dr. E. Schönherr und Fräulein G. Müller vom Max-Planck-Institut für Festkörperforschung in Stuttgart danke ich für die Kristalle die sie mir zur Verfügung stellten.

Herrn M. Racheter und Herrn R. Spring bin ich für die Ausführung der mechanischen Arbeiten und meinen Kollegen für kritische Diskussionen dankbar.

Der Schweizerische Nationalfonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung hat diese Arbeit finanziell unterstützt.

## LITERATUR

Einen Überblick über die Methode der Positronenannihilation gibt West in: R. N. West, *Advances in Physics* 22, 263 (1973).

- [1] R. E. BELL und R. L. GRAHAM, *Phys. Rev.* 90, 644 (1953).
- [2] S. DANNEFAER, G. W. DEAN und B. G. HOGG, *Phys. Rev.* 13B, 3715 (1976).
- [3] S. COVA, A. DUPASQUIER und M. MANFREDI, *Nuovo Cimento* B47, 263 (1967).
- [4] T. M. KELLY, *Phot. Sc. E.* 17, 201 (1973).
- [5] I. I. BARDYSHEV, V. I. GOLDANSKII und A. D. MOKRUSHIN, *Sov. Phys. Sol. St.* 14/3, 803 (1972).
- [6] A. GAINOTTI, *Phys. Lett.* 43A, 405 (1973).
- [7] T. M. KELLY und N. R. QUICK, *J. Appl. Phys.* 46, 3278 (1975).
- [8] J. C. GARG und B. L. SARAF, *J. Phys. Soc. Jap.* 27, 1695 (1969).
- [9] J. C. GARG und B. L. SARAF, *J. Phys. Soc. Jap.* 27, 1697 (1969).
- [10] J. C. GARG und B. L. SARAF, *Phys. Lett.* 30A, 369 (1969).
- [11] W. BRANDT und J. REINHEIMER, *Phys. Lett.* 35A, 109 (1971).
- [12] W. BRANDT, *Appl. Phys.* 5, 1 (1974).
- [13] H. WEISBERG und S. BERKO, *Phys. Rev.* 154, 249 (1967).
- [14] I. K. MACKENZIE, T. E. JACKMAN und N. THRANE, *Phys. Rev. Lett.* 34, 512 (1975).
- [15] I. K. MACKENZIE, T. E. JACKMAN und P. C. LICHTENBERGER, *Appl. Phys.* 9, 259 (1976).
- [16] P. HAUTOJÄRVI, *Sol. St. Comm.* 11, 1049 (1972).
- [17] P. KUBICA und A. T. STEWART, *Phys. Rev. Lett.* 34, 852 (1975).
- [18] W. TRIFTSHÄUSER, *Phys. Rev.* 12B, 4634 (1975).

- [19] S. M. KIM und A. T. STEWART, *Phys. Rev.* *11B*, 2490 (1975).
- [20] P. COLOMBINO, B. FISCELLA und L. TROSSI, *Nuovo Cimento* *31*, 950 (1964).
- [21] E. KURAMOTO, S. TAKEUCHI, N. NOGUCHI, T. CHIBA und N. TSUDA, *Appl. Phys.* *4*, 41 (1974).
- [22] M. DORIKENS, C. DAUWE und L. DORIKENS-VAUPRAET, *Appl. Phys.* *4*, 271 (1974).
- [23] P. SEN und C. SEN, *J. Phys.* *C7*, 2776 (1974).
- [24] R. FIESCHI, A. GAINOTTI, C. GHEZZI und M. MANFREDI, *Phys. Rev.* *175*, 383 (1968).
- [25] M. NOGUCHI, T. CHIBA, T. MITSUHASHI und N. TSUDA, *J. Phys. Soc. Jap.* *33*, 572 (1972).
- [26] W. BRANDT und J. REINHEIMER, *Phys. Rev.* *2B*, 3104 (1970).
- [27] M. BERTOLACCINI, A. BISI, G. GAMBARINI und L. ZAPPA, *J. Phys.* *4C*, 734 (1971).
- [28] A. BISI, A. FIORENTINI und L. ZAPPA, *Phys. Rev.* *131*, 1023 (1963).
- [29] C. BUSSOLATI, A. DUPASQUIER und L. ZAPPA, *Nuovo Cimento* *52B*, 529 (1967).
- [30] M. BERTOLACCINI und A. DUPASQUIER, *Phys. Rev.* *1B*, 2896 (1970).
- [31] P. HAUTOJÄRVI und P. JAUHO, *Physics of Impurity Centres in Crystals (Academy of Science of the Estonian SSR, Tallin)* p. 645 (1972).
- [32] K. P. SINGH, R. M. SINGRU, M. S. TOMAR und C. N. RAO, *Phys. Lett.* *32A*, 10 (1970).
- [33] W. BRANDT und H. F. WAUNG, *Phys. Rev.* *3B*, 3432 (1971).
- [34] W. C. MALLARD und F. H. HSU, *Phys. Lett.* *38A*, 164 (1972).
- [35] P. HAUTOJÄRVI, R. NIEMINEN, *Phys. St. Sol.* *56B*, 421 (1973).
- [36] A. DUPASQUIER, *Nuovo Cimento Lett.* *4*, 13 (1970).
- [37] S. DANNEFAER, G. TRUMPY und R. M. J. COTTERILL, *J. Phys.* *7C*, 1261 (1974).
- [38] F. H. HSU, W. C. MALLARD und J. H. HADLEY Jr., *Appl. Phys.* *4*, 83 (1974).
- [39] R. NIEMINEN, P. HAUTOJÄRVI und P. JAUHO, *Appl. Phys.* *5*, 41 (1974).
- [40] D. A. GEDCKE und W. J. McDONALD, *Nucl. Instr. Meth.* *55*, 377 (1967).
- [41] D. A. GEDCKE und W. J. McDONALD, *Nucl. Instr. Meth.* *58*, 253 (1968).
- [42] P. KIRKEGAARD und M. ELDRUP, *2nd Int. Conf. Pos. Ann.* (1971).
- [43] P. KIRKEGAARD und M. ELDRUP, *Comp. Phys. Comm.* *3*, 240 (1972).
- [44] K. PETERSEN, N. THRANE, G. TRUMPY und R. W. HENDRICKS, *Appl. Phys.* *10*, 85 (1976).
- [45] G. I. GLEASON, J. D. TAYLOR und D. L. TABERN, *Nucleonics* *8/5* (May), 12 (1951).
- [46] L. KATZ und A. S. PENFOLD, *Rev. Mod. Phys.* *24*, 28 (1952).
- [47] R. D. EVANS, *The Atomic Nucleus*, McGraw-Hill, New York (1955).
- [48] A. BISI und L. BRAICOVICH, *Nucl. Phys.* *58*, 171 (1964).
- [49] M. BERTOLACCINI und L. ZAPPA, *Nuovo Cimento* *52B*, 487 (1967).
- [50] I. K. MACKENZIE, C. W. SHULTE, T. JACKMAN und J. L. CAMPBELL, *Phys. Rev.* *7A*, 135 (1973).
- [51] F. STÖBER, *Z. Krist.* *61*, 299 (1925).
- [52] P. JUNOD, B. KILCHÖR und H. WALLISER, *J. Cryst. Growth*, *10*, 144 (1971).
- [53] D. HERLACH und A. OGGENFUß, nicht veröffentlicht.
- [54] Y. BAER, P. F. HEDÉN, J. HEDMAN, M. KLASSON, C. NORDLING und K. SIEGBAHN, *Sol. St. Comm.* *8*, 517 (1970).
- [55] M. G. MASON, *Phys. Rev.* *11B*, 5094 (1975).
- [56] W. BRANDT in 'Positron Annihilation', A. T. Stewart und L. O. Roellig (Editors), Academic Press, New York (1967) p. 178.
- [57] W. BRANDT, H. F. WAUNG und P. LEVY in 'Proceeding of an International Symposium on Color Centers in Alkali Halides' Rom, 1968 (Consiglio Nazionale delle Ricerche, Rom, Italien, 1968) p. 48.
- [58] W. BRANDT, H. F. WAUNG und P. W. LEVY, *Phys. Lett.* *26*, 496 (1971).
- [59] P. MÜLLER, *Phys. St. Sol.* *12*, 775 (1965).
- [60] H. HEDIGER, Dissertation, Univ. Freiburg (Schweiz) 1975.
- [61] J. T. MUHEIM, H. SURBECK, *Helv. Phys. Acta* *48*, 446 (1975).
- [62] H. SURBECK, *Helv. Phys. Acta* *49*, 736 (1976).

