

**Diss. ETH**

Diss. ETH Nr. 8902

# Positronium-Bildung in Polyäthylen

ABHANDLUNG

zur Erlangung des Titels

DOKTOR DER NATURWISSENSCHAFTEN

der

EIDGENÖSSISCHEN TECHNISCHEN HOCHSCHULE  
ZÜRICH

vorgelegt von

ADRIEN GÉRARD CORNAZ

Dipl. Phys. ETH

geboren am 21. März 1958

von Faoug, Moudon, Cudrefin (VD)

Neuchâtel (NE)

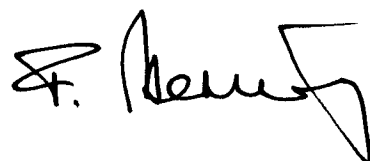
Winterthur (ZH)

angenommen auf Antrag von:

Prof. Dr. F. Heinrich, Referent

Dr. J. Brunner, Korreferent

Prof. Dr. J.L. Olsen, Korreferent



1989

ETHICS ETH-BIB



00100001495813

## Zusammenfassung

Die Bildungsmechanismen des Positroniums (Ps) im Festkörper werden durch verschiedene Modelle beschrieben. Da diese Modelle sich gegenseitig nicht ausschließen, blieb es bisher recht unklar, welche Mechanismen tatsächlich zur Ps-Bildung beitragen. Die Bildungswahrscheinlichkeit ist besonders hoch in Polymeren, daher sind sie für solche Untersuchungen sehr geeignet. Polyäthylen (PE) ist einer der einfachsten Vertreter der Polymere und wurde auch häufig zu Studien über die Ps-Bildung verwendet. Es ist jedoch sehr schwer, aus früheren Untersuchungen ein einheitliches Bild zu bekommen. Häufig wurde nicht einmal das untersuchte Material spezifiziert. Verschiedene Experimente wurden ohne Quervergleiche zwischen den verschiedenen Grössen, welche die Ps-Bildung beeinflussen, interpretiert.

Die Ps-Bildung in Polymeren hängt von der Struktur, von chemischen Zusätzen, von der Temperatur und von äusseren Einwirkungen, insbesondere vom Anlegen eines elektrischen Feldes, empfindlich ab. Auch die Bestrahlung mit hochenergetischen Elektronen oder Positronen hat einen Einfluss.

Das Ziel dieser Arbeit ist es, die Ps-Bildung als Funktion dieser Parameter in genau definierten PE-Proben zu untersuchen. Das elektrische Feld ändert nicht nur die Ps-Bildung, sondern beeinflusst auch den Abbremsvorgang des Positrons in der Materie. Dies hat eine Feldabhängigkeit des linearen Absorptionskoeffizienten  $\mu$  zur Folge. Die genaue Kenntnis dieser Abhängigkeit bis zu extrem hohen Feldstärken (2 MV/cm) ist für die Bestimmung der absoluten Ps-Ausbeute unerlässlich. Bei gleichbleibender Probendicke ändert sich  $\mu$  linear mit dem Feld. Die Abbremsung wird verstärkt oder abgeschwächt durch die Energie-Abgabe bzw. -Aufnahme des Positrons im Feld. Bei gleichbleibender Feldstärke und variabler Dicke wird für dünne Proben eine Abweichung der Linearität beobachtet. Dies ist auf eine geringe Dickenabhängigkeit der Energieaufnahme der Positronen im Feld oder des linearen Absorptionskoeffizienten zurückzuführen.

Die Ps-Ausbeute als Funktion des elektrischen Feldes wurde hier erstmals absolut bestimmt. Diese Bestimmung konnte mit zwei unabhängigen Messmethoden durchgeführt werden: Lebensdauer des Positrons und Winkelverteilung der Anihilationsstrahlung. Während durch die Lebensdauerermethode das ortho-Ps unmittelbar erfasst wird, gibt die Winkelverteilung über den Anteil des para-Ps Aufschluss. Mit beiden Methoden konnte ein konsistentes Bild der Ps-Bildung im elektrischen Feld erhalten werden. Die absolute Ps-Ausbeute nimmt bis 0.3 MV/cm mit dem Feld zuerst ab, steigt bei einer kritischen Feldstärke von 0.8 MV/cm stark

an, und erreicht bei Feldern höher als 1 MV/cm den Wert 1, d.h. *alle* Positronen bilden Positronium. Durch die Messung der absoluten Ps-Ausbeute bis 0.3 MV/cm bei verschiedener Kristallinität bei 20°C und Messungen der Feldabhängigkeit der Winkelkorrelationsfunktion bei verschiedenen Temperaturen konnte gezeigt werden, dass die Ps-Bildung zwischen 0 und 0.3 MV/cm nur durch die Kombination zweier Bildungsmechanismen, des Ore gap- und des Spur-Modells erklärt werden kann. Andererseits kann die Ps-Bildung oberhalb von 0.3 MV/cm nur noch mit dem Ore gap-Modell erklärt werden; die Positronen werden im elektrischen Feld aufgeheizt, ihre Energieverteilung erreicht das Ore gap, was zur Ps-Bildung führt. Die Analogie mit 'heissen' Elektronen ist naheliegend. Bekanntlich ist die Elektron-Phonon-Wechselwirkung in Quarz viel stärker als in PE. Daraus wäre zu erwarten, dass in Quarz die kritische Feldstärke, ab welcher die Ps-Bildung wegen der Aufheizung im elektrischen Feld zunimmt, um einiges höher liegt als in PE. Quarz konnte bis 1.5 MV/cm gemessen werden. Bis zu dieser Feldstärke konnte jedoch nur eine Abnahme der Ps-Bildung beobachtet werden. Diese Beobachtung ist im Einklang mit dem Spur- und Ore gap-Modell. Vergleiche mit Literaturwerten für die Energieverteilung der Elektronen im elektrischen Feld zeigen, dass diese bis 1.5 MV/cm in Quarz thermalisiert bleiben. Diese Messung bestätigt die bei PE gemachten Aussagen.

Die hier erstmals beobachteten strahlungsabhängigen Relaxationseffekte der Ps-Bildung bei tiefen Temperaturen ( $-160^{\circ}\text{C}$ ) werden auf 'getrappten' Elektronen in Donatoren-ähnlichen Niveaus in der Energielücke zurückgeführt. Diese Elektronen stammen aus der Spur, gebildet durch Ionisation beim Abbremsen der Positronen. Dieser Effekt tritt nur bei tiefen Temperaturen auf, denn bei höheren Temperaturen werden die 'getrappten' Elektronen durch thermische Stimulation wieder frei, bzw. rekombinieren bevor sie in diesen Fehlstellen eingefangen werden.

Durch Messungen mit verschiedenen Methoden der Positronenannihilation als Funktion der elektrischen Feldstärke, der Temperatur, der Kristallinität und der Bestrahlung, konnte ein einheitliches Bild der Ps-Bildung in molekularer Materie erhalten werden.

## Abstract

The formation of positronium (Ps) in polyethylene (PE) depends strongly on structure, temperature, electric field and irradiation with high energy electrons or positrons.

The purpose of this work is to study the Ps formation under the influence of all these parameters in well defined PE samples. The electric field influences the stopping of the positrons in solids too. This gives rise to a field dependence of the linear absorption coefficient, which was measured up to 2 MV/cm.

The absolute Ps-yield as a function of the electric field up to 1.75 MV/cm was determined here for the first time. This determination was made with two independent measurements: lifetime of positrons and angular correlation of annihilation radiation. The absolute Ps-yield decreases at first with the electric field, passes through a minimum, then suddenly increases and approaches 1 for a field higher than 1 MV/cm, i.e. *all* positrons form Ps at high field. Between 0 and 0.3 MV/cm the Ps formation is controlled by two mechanisms described by the Ore gap model and the spur model. Above 0.3 MV/cm the Ps formation can only be explained by the Ore gap model; the positrons are heated up in the electric field, their energy distribution reaches the Ore gap, where they can form Ps. The analogy with hot electrons is obvious. It is well known that the electron-phonon interaction is stronger in quartz than in PE. We have measured the field-dependence of Ps formation in fused quartz as high as 1.5 MV/cm. Only a decrease of the Ps-yield was observed. Like electrons the positrons remain thermalized in quartz for field as high as 1.5 MV/cm.

For the first time we observed an irradiation dependent relaxation of the Ps formation in PE at low temperature ( $-160^{\circ}\text{C}$ ), attributed to electrons trapped in levels inside the energy gap. These electrons are produced by ionisation during the slowing down of the high energy positrons or electrons.

A consistent picture of Ps formation in molecular solids was obtained from measurements of PE and fused quartz with different methods of positron annihilation as a function of the electric field, the temperature, the cristallinity and the irradiation.