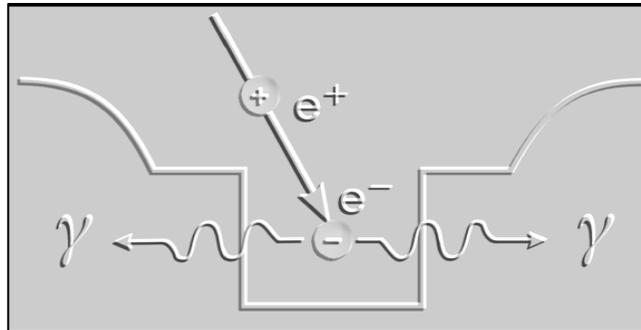
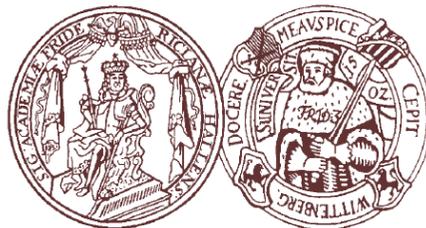


Positronium im 3D Potentialtopf - Nanoporöses Glas als Fallstudie



Stefan Thränert

Martin-Luther-Universität
Halle-Wittenberg

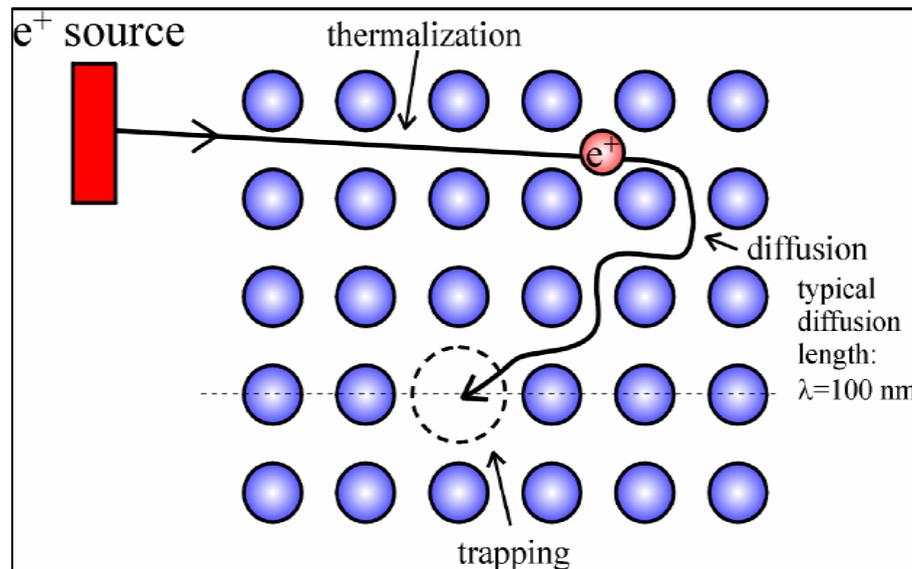
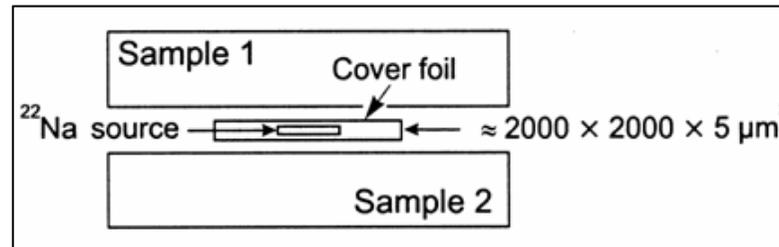
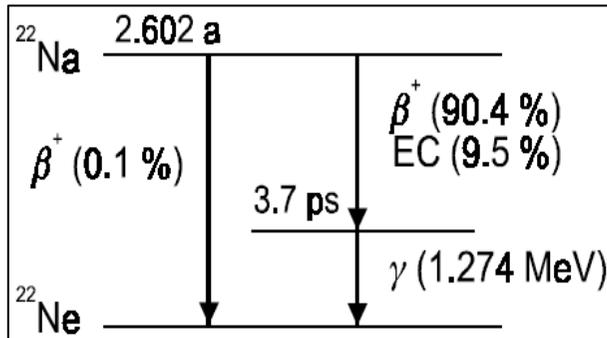


Ps im 3D Potentialtopf

- Grundlagen der PALS
- Nanoporöses Glas
- Der Hohlraum als th. Modell
- Aktuelle Ergebnisse / Probleme

Die Grundlagen der PALS

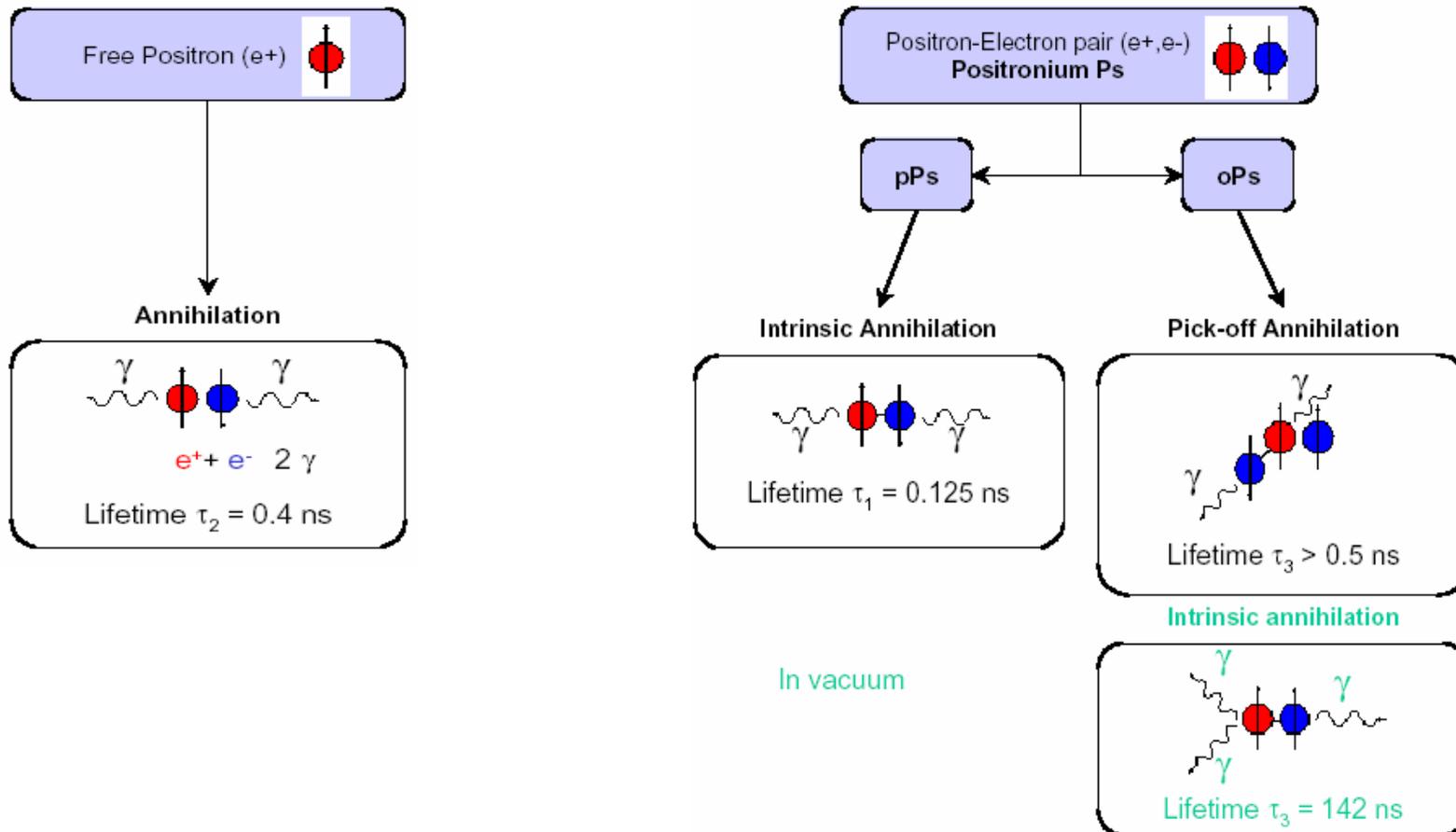
β^+ -Zerfall: $^{22}\text{Na} \rightarrow ^{22}\text{Ne} + \beta^+ + \nu_e + \gamma_{(1.27\text{MeV})}$
 (Laborquellen; Halbwertszeit: 2.6 Jahre; bis zu $10^6 \text{ e}^+/\text{s}$)



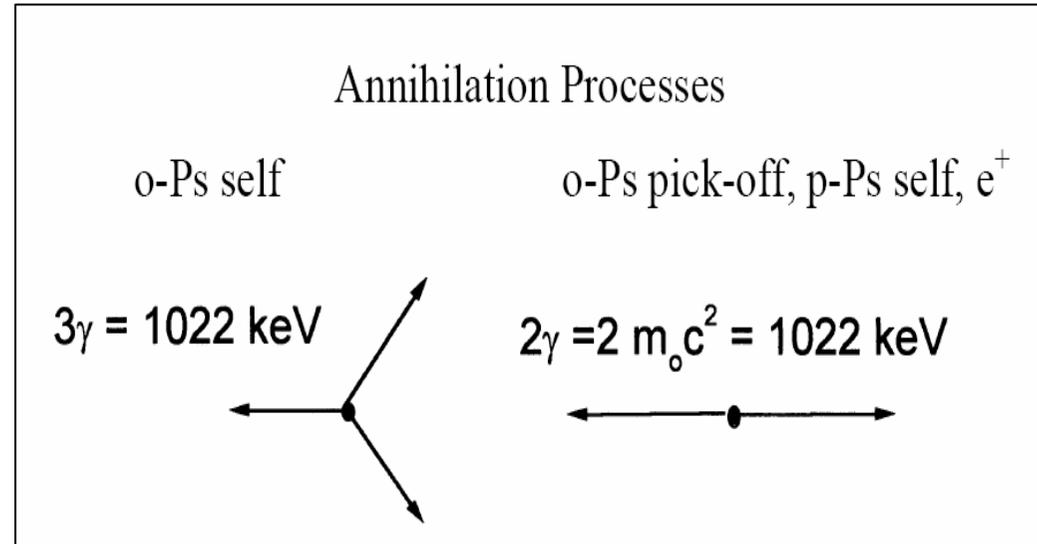
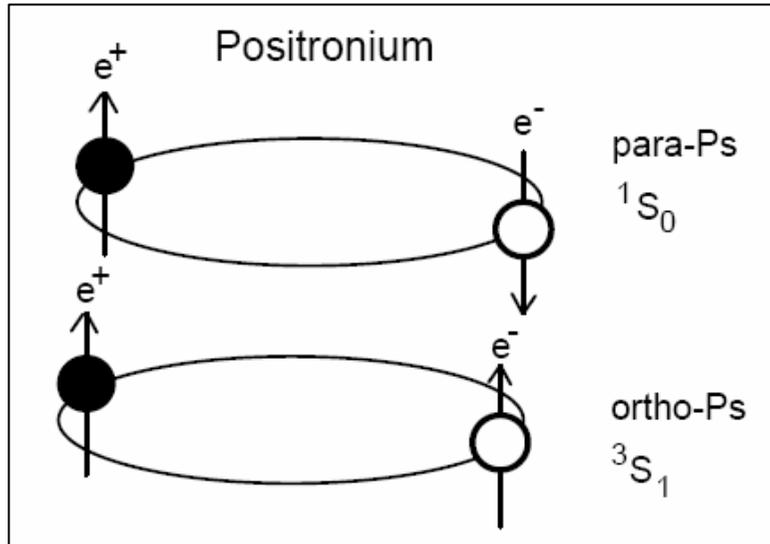
- Positronen thermalisieren
- Positronen diffundieren
- Positronen annihilieren
- Annihilationsparameter ändern sich bei
 Zerstrahlung in einem Defekt -> Nachweis und Charakterisierung

Positron und Positronium

- In Stoffen welche keine freien Elektronen besitzen kann es zur Bildung von Positronium kommen.

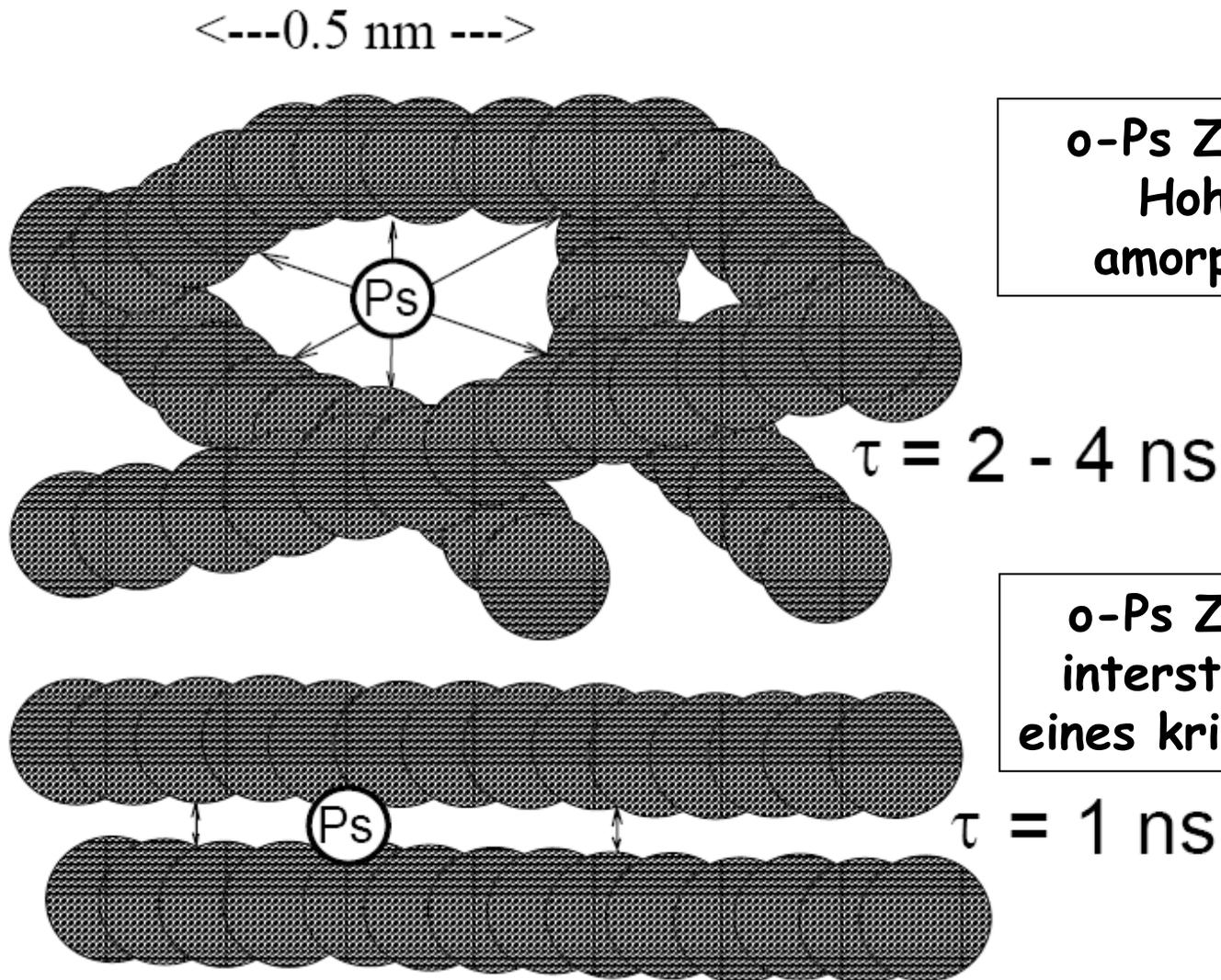


p-Ps und o-Ps



- o-Ps -> Gute Sonde wegen hoher Lebensdauer (142 ns im Vakuum)
- Durch Kollision mit Porenwand -> Pick Off Annihilation
- Aus o-Ps Lebensdauerspektrum lässt sich Porengröße ermitteln

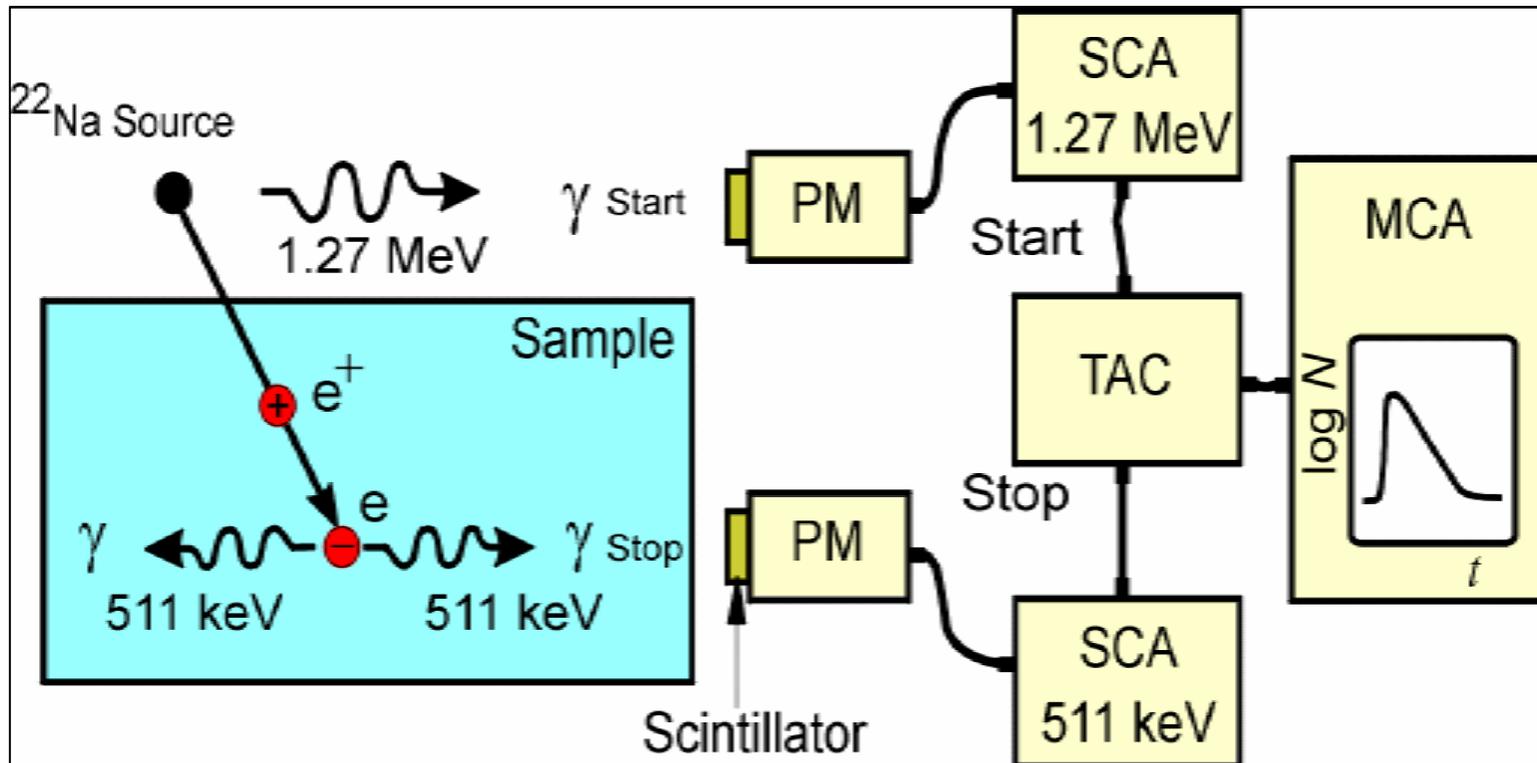
Pick off Annihilation



o-Ps Zerstrahlung im
Hohlraum eines
amorphen Stoffes.

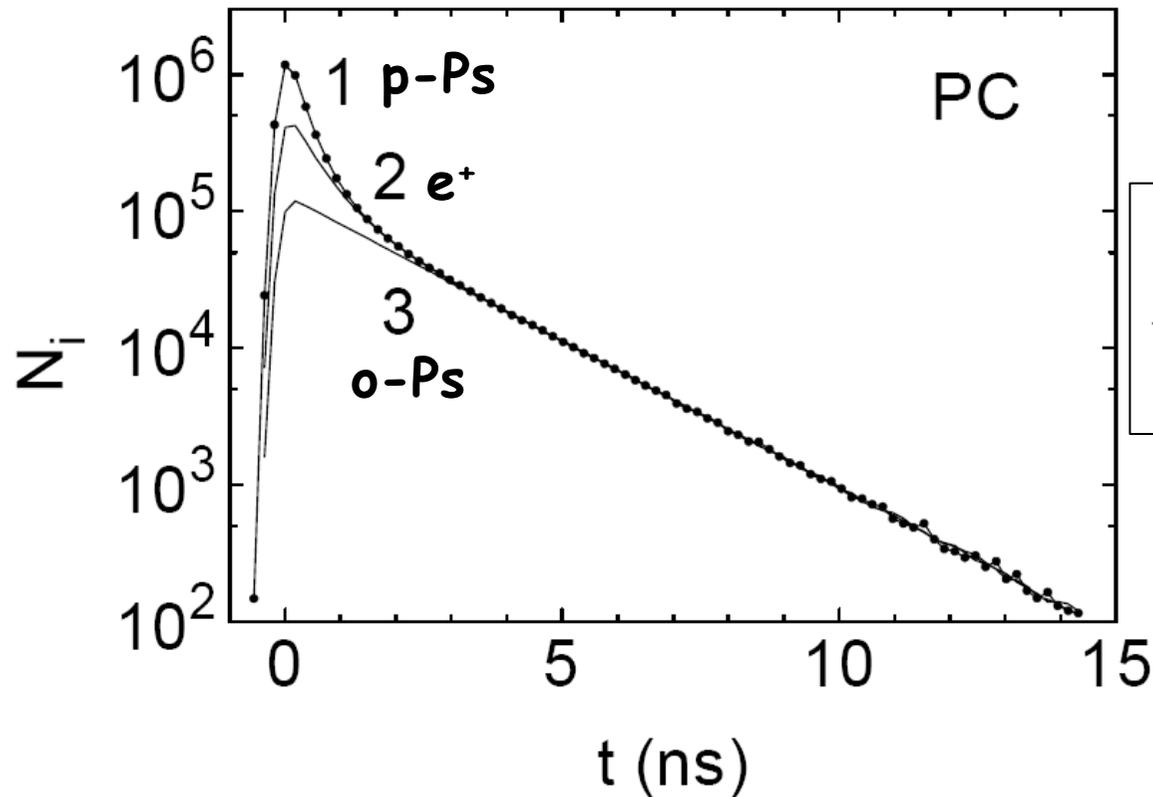
o-Ps Zerstrahlung im
interstitiellen Bereich
eines kristallinen Stoffes.

Positron-Lebensdauermessung



- Positronenlebensdauer = Zeitdifferenz zwischen Auftreten des 1,27 MeV Gammaquant (β^+ - Zerfall) und dem aus der Annihilation stammenden 0,511 MeV Gammaquant.

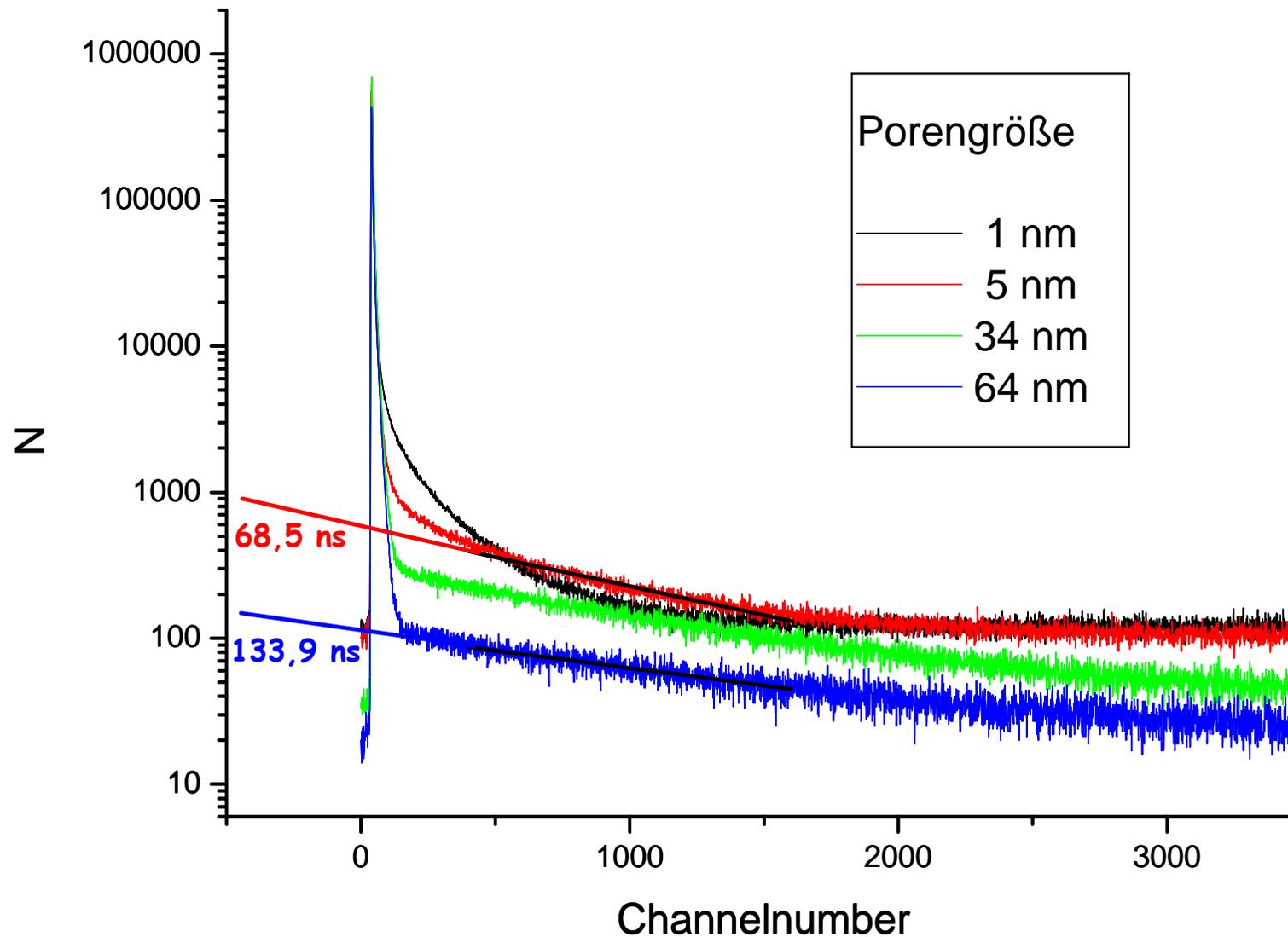
Typisches PAL-Spektrum



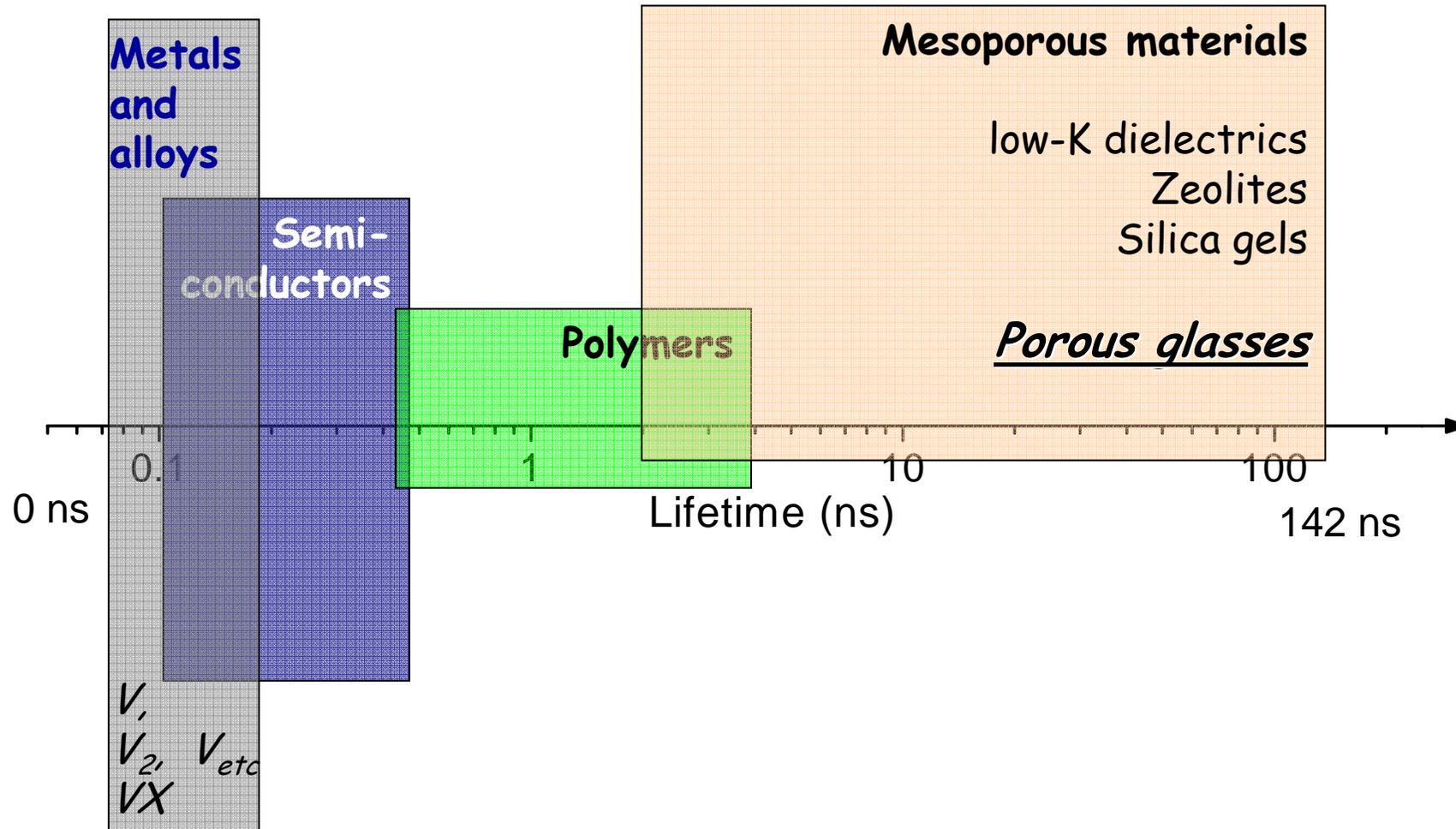
$$N(t) = \sum_{i=1}^{k+1} \frac{I_i}{\tau_i} \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right)$$

- Lebensdauerspektren bestehen aus exponentiellen Zerfallstermen.
- Spektrenanalyse mittels nichtlinearer Anpassroutinen nach Abzug von Untergrund und Quellanteil.

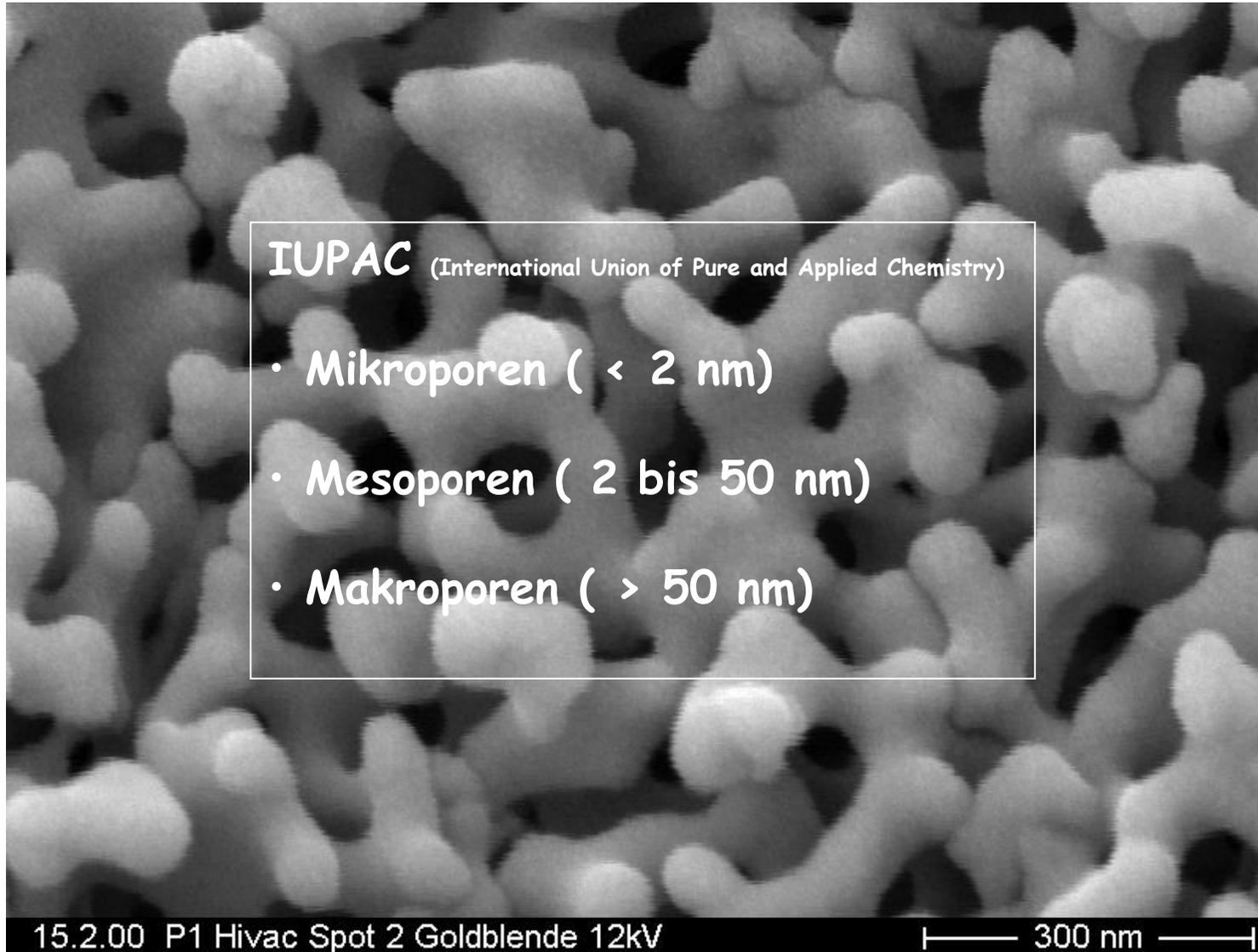
Typisches PAL-Spektrum



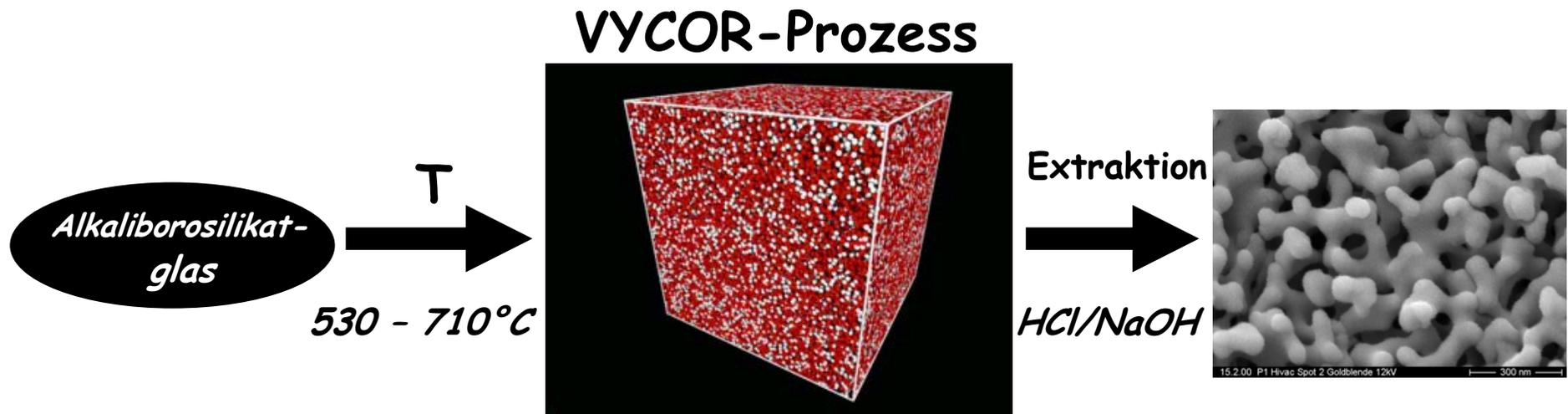
Typische Lebensdauern



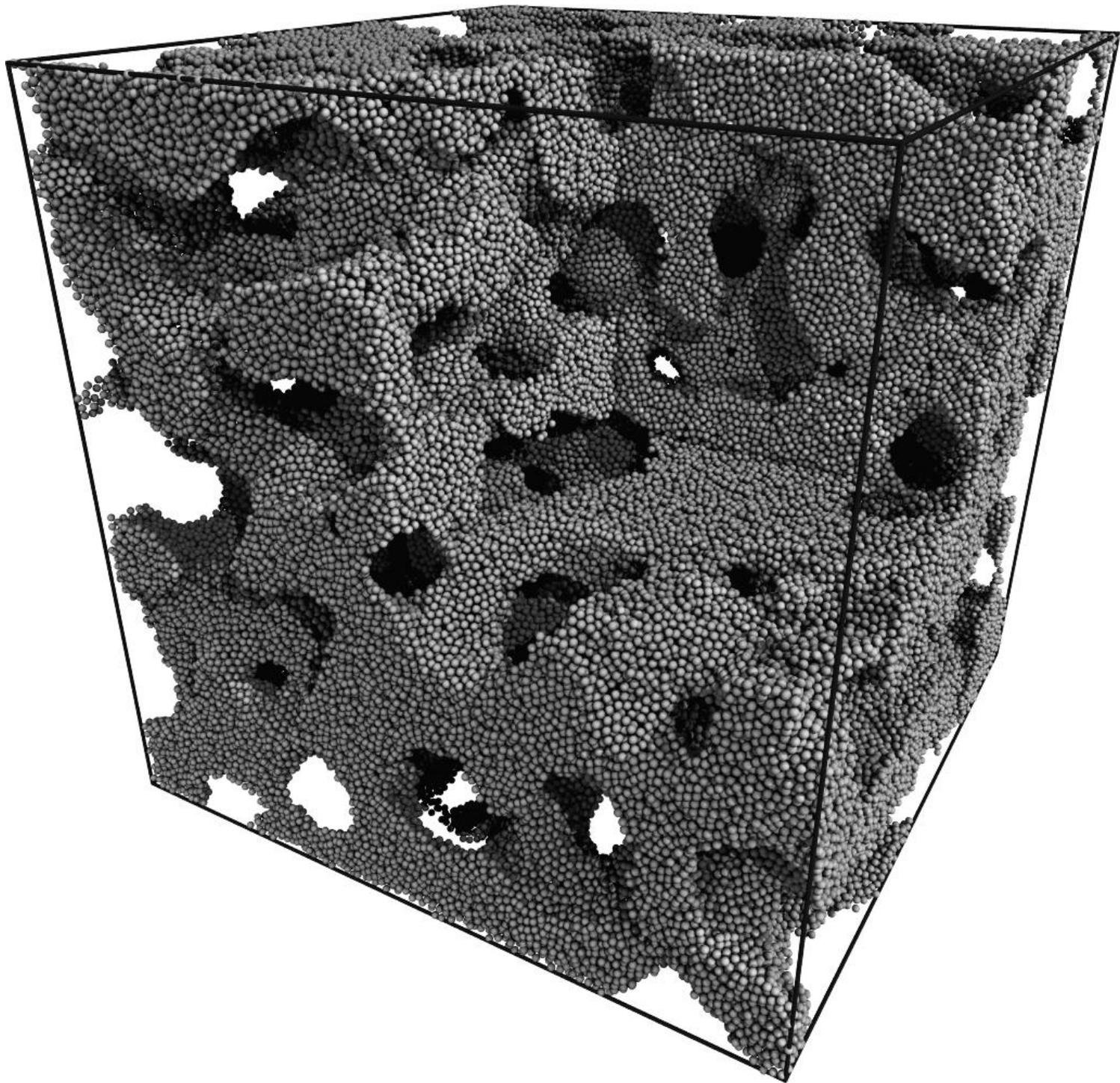
Nanoporöses Glas



Nanoporöses Glas



- Phasentrennung
 - spinodale Entmischung
 - Ausbildung Durchdringungsstruktur
 - schwammartige Mikrostruktur
 - Porengröße abh. von Ausgangsmaterial
 - Porenform abh. von Dauer und T der Thermobeh.
- d_p 1 bis 110 nm



Die o-Ps Annihilationsrate

Eigenzerstrahlung

Pick off

$$\lambda_{o-Ps} = 1 / \tau_{o-Ps} = \lambda_{3\gamma} + \lambda_{2\gamma} = \lambda_{3\gamma}^0 (1 - W) + \lambda_{2\gamma}^0 W$$

W - Wahrscheinlichkeit dafür, daß sich o-Ps im Molekülbereich aufhält

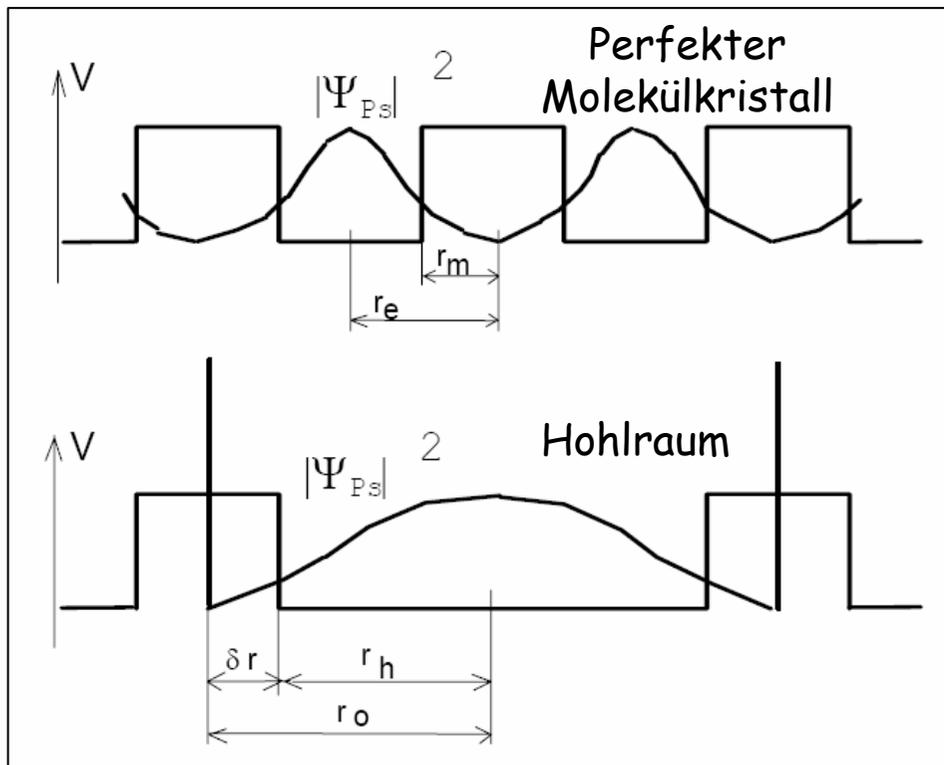
$\lambda_{2\gamma}^0$ Annihilationsrate in Elektronenwolken der Moleküle, entspricht spin-gemittelter Ps-Annihilationsrate von 2 ns^{-1}

$$\lambda_{3\gamma}^0 \ll \lambda_{2\gamma}^0$$

$1/142 \text{ ns}^{-1}$ 2 ns^{-1}

$$\lambda_{o-Ps} = 1 / \tau_{o-Ps} = \lambda_{2\gamma} = \lambda_{2\gamma}^0 W = 2 \text{ ns}^{-1} W$$

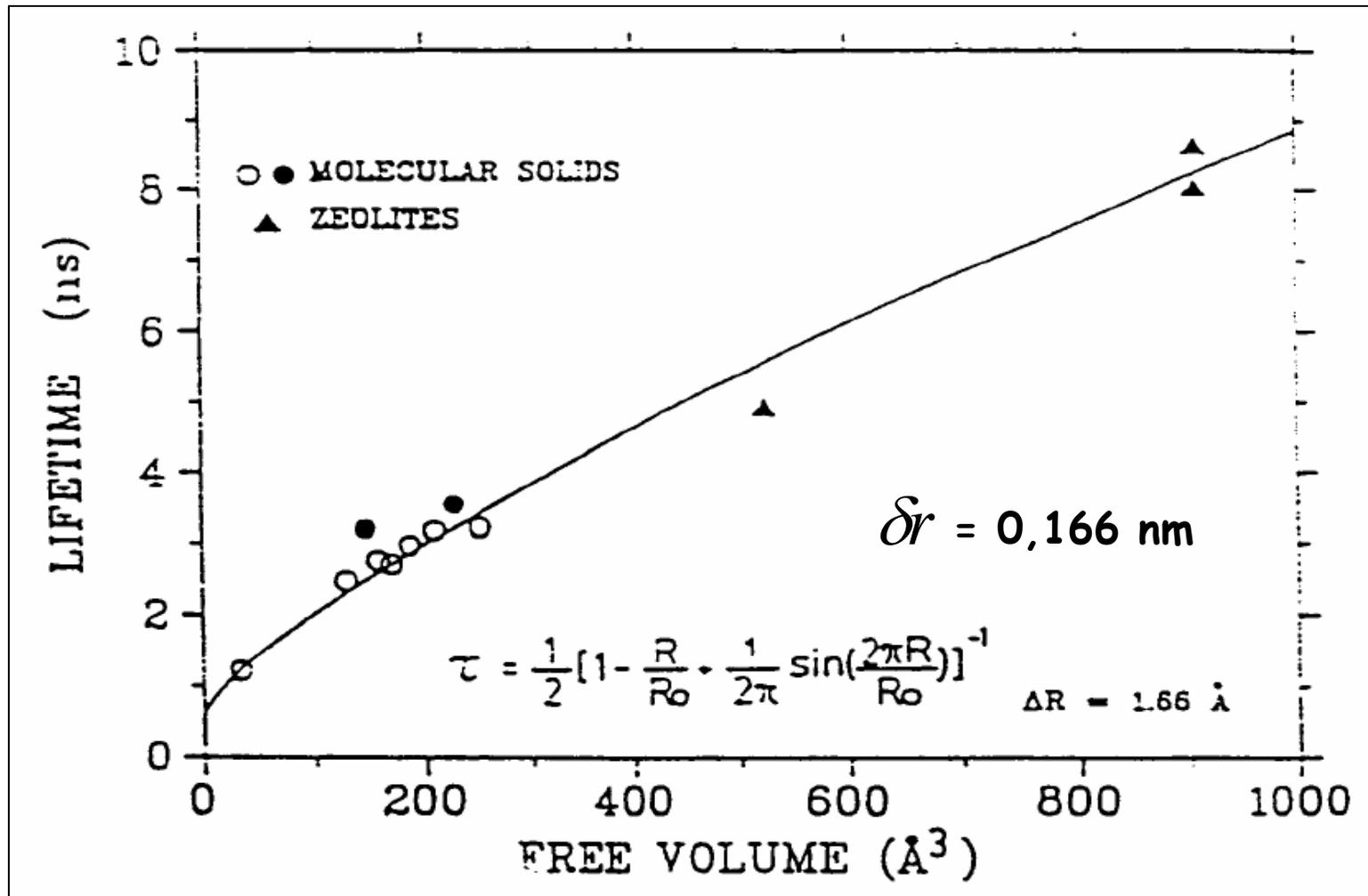
Das TE-Modell für Poren mit $r < 1$ nm



- QM -> stehende Welle im sphärischen Potentialtopf
- Kleiner Potentialtopf -> nur niedrigstes Energieniveau besetzt
- Tao -> unendlich hohe Wände und Eindringen des Ps in Molekül (Überlappung der Ps-Dichte mit Molekül)
- Eldrup -> $\delta r = 0,166$ nm

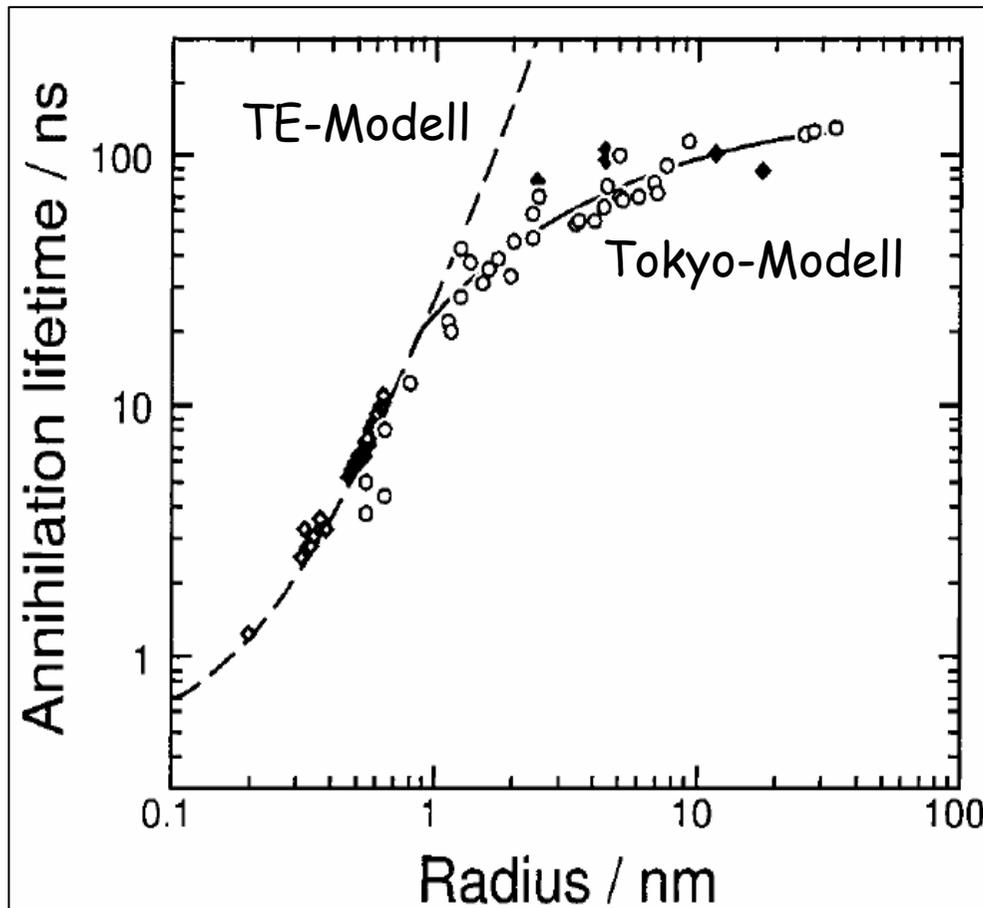
$$\lambda_{2\gamma} = 2ns^{-1}W = 2ns^{-1} \left[1 - \frac{r_h}{r_h + \delta r} + \frac{1}{2\pi} \sin\left(\frac{2\pi r_h}{r_h + \delta r}\right) \right]$$

Das TE-Modell für Poren mit $r < 1$ nm



• Abhängigkeit der o-Ps Pick-off Lebensdauer vom Volumen der Hohlräume

Poren mit $r > 1\text{nm}$



- TE-Modell verliert für Poren mit $r > 1\text{nm}$ Gültigkeit.
- a) Für $r > 1\text{nm}$ wird W kleiner, somit $\lambda_{3\gamma}$ nicht mehr vernachlässigbar.
- b) o-Ps als Wellenpaket, welches zwischen Energiewällen hin- und her gestreut wird.
- c) Energieniveaus in großen Hohlräumen liegen dicht beieinander \rightarrow o-Ps Lebensdauer wird von T abh.
- Gegenwärtig 2 Modelle, die diese Effekte unterschiedlich berücksichtigen.

Poren mit $r > 1\text{nm}$ - 2 Modelle

Tokyo-Modell

J. Phys. Chem. B **1999**, *103*, 4555–4558

4555

Extension of the Equation for the Annihilation Lifetime of *ortho*-Positronium at a Cavity Larger than 1 nm in Radius

Kenji Ito,^{*,†} Hiroshi Nakanishi,^{‡,§} and Yusuke Ujihira[†]

Research Center for Advanced Science and Technology, The University of Tokyo, 4-6-1 Komaba, Meguro-ku, Tokyo 153-8904, Japan, Department of Pathobiology, University of Washington, Seattle, Washington, and Molecumetics, Ltd., 2023 120th Ave. NE, Bellevue, Washington 98005

Received: September 11, 1998; In Final Form: December 1, 1998

RTE-Modell

J. Phys. Chem. B **2001**, *105*, 4657–4662

4657

Determination of Pore Size in Mesoporous Thin Films from the Annihilation Lifetime of Positronium

T. L. Dull, W. E. Frieze, and D. W. Gidley^{*}

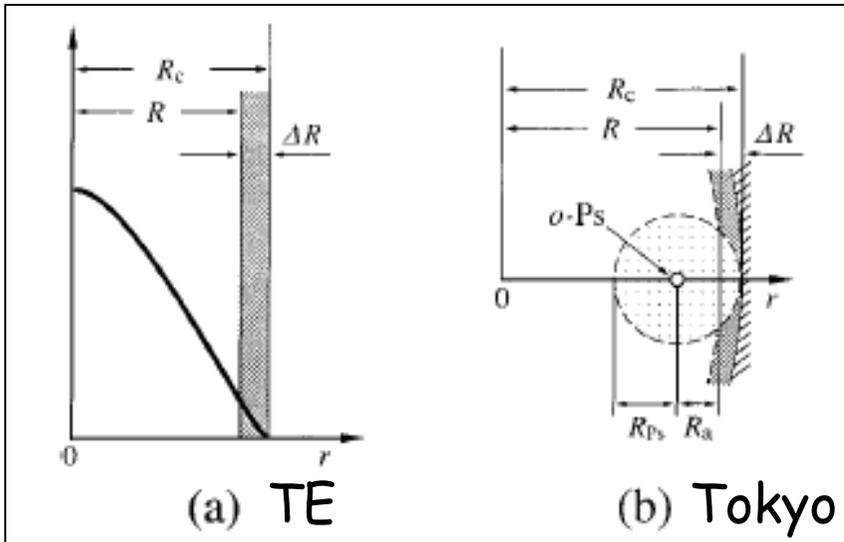
Department of Physics, University of Michigan, Ann Arbor, Michigan 48109

J. N. Sun and A. F. Yee

Department of Materials Science and Engineering, University of Michigan, Ann Arbor, Michigan 48109

Received: November 14, 2000; In Final Form: February 15, 2001

Das semi-phänomenologische Tokyo-Modell



- $\Delta R = \delta r = 0.166$ nm (analog TE-Modell)
- o-Ps wird effektiver Radius zugeschrieben.
- ABER: keine explizite Temperaturabhängigkeit.

$$\lambda = (\lambda_{TE} + \lambda_{3\gamma}^0)[1 - F(r)] + \lambda_{3\gamma}^0 F(r) = \lambda_{TE} [1 - F(r)] + \lambda_{3\gamma}^0$$

$$\lambda_{o-Ps} = \lambda_{TE} \left[1 - \left(\frac{r_p - r_a}{r_p + \delta r} \right)^b \right] + \lambda_{3\gamma} \quad r \geq r_a$$

$$\lambda_{o-Ps} = \lambda_{TE} + \lambda_{3\gamma} \quad r < r_a$$

Empirisch:
 $r_a = 0.8$ nm
 $b = 0.55$

Das RTE-Modell

- RTE = Rectangular Pore Extension of TE -> Kugelsymmetrie durch kubische Symm. ersetzt (Besselfktn. -> Sinusfkt.).
- Boltzmann-Verteilung der o- P_s Teilchen mit mittlerer Energie von kT .
- δ analog δr im TE Modell, $\delta = 0,18$.

Das RTE-Modell

Zur Berechnung des Erwartungswerts der Lebensdauer des o-Ps

- o-Ps Wellenfktn. als Eigenzustände der Impulse berechnet.
- Lösung der SG für ein Teilchen der Masse $2m_e$ im rechteckigen Potentialtopf:

$$\psi_{ijk} = \phi_i(x)\phi_j(y)\phi_k(z)$$

$$\phi_i(x) = \sqrt{\frac{2}{a}} \sin\left(\frac{i\pi x}{a}\right), \quad \phi_j(x) = \sqrt{\frac{2}{b}} \sin\left(\frac{j\pi x}{b}\right), \quad \phi_k(x) = \sqrt{\frac{2}{c}} \sin\left(\frac{k\pi x}{c}\right)$$

- Die Energie ergibt sich zu: $E_{ijk} = \beta \left(\frac{i^2}{a^2} + \frac{j^2}{b^2} + \frac{k^2}{c^2} \right)$ mit $\beta = h^2/16m = 0.188 \text{ eVnm}^2$
- Annihilationsrate: $\lambda(x,y,z) = \lambda_A - \Lambda(x,y,z)$ mit $\lambda_A = (\lambda_S + 3\lambda_T)/4$

$$\Lambda(x,y,z) = \left. \begin{array}{l} \frac{\lambda_S - \lambda_T}{4} \text{ for } \delta \leq x \leq a - \delta, \delta \leq y \leq b - \delta, \delta \leq z \leq c - \delta \\ 0 \text{ otherwise} \end{array} \right\}$$

Das RTE-Modell

- Erwartungswert der Annihilationsrate wird aus der Spur der Dichtematrix und der Annihilationsratenmatrix erhalten.
- Die Dichtematrix ist durch Boltzmann-Statistik gegeben (therm. Gleichgewicht):

$$\rho_{ijk,ijk} = \frac{\exp(-E_{ijk}/kT)}{\sum_{i,j,k=1}^{\infty} \exp(-E_{ijk}/kT)} = \frac{\exp\left[-\frac{\beta}{kT}\left(\frac{i^2}{a^2} + \frac{j^2}{b^2} + \frac{k^2}{c^2}\right)\right]}{\sum_{i,j,k=1}^{\infty} \exp\left[-\frac{\beta}{kT}\left(\frac{i^2}{a^2} + \frac{j^2}{b^2} + \frac{k^2}{c^2}\right)\right]}$$

- Therm. Gleichgewicht \rightarrow Dichtematrix ist diagonal.
Diagonalelemente der Annihilationsratenmatrix ausreichend:

$$\begin{aligned} \lambda_{ijk,ijk} &= \langle ijk | (\lambda_A - \Lambda(x,y,z)) | ijk \rangle \\ &= \lambda_A - \frac{\lambda_S - \lambda_T}{4} \int_{\delta}^{a-\delta} dx \int_{\delta}^{b-\delta} dy \int_{\delta}^{c-\delta} dz \phi_i^2(x) \phi_j^2(y) \phi_k^2(z) \\ &= \lambda_A - \frac{\lambda_S - \lambda_T}{4} G_i(a,\delta) G_j(b,\delta) G_k(c,\delta) \quad \text{mit} \quad G_n(x,\delta) = 1 - \frac{2\delta}{x} + \frac{1}{n\pi} \sin\left(\frac{2n\pi\delta}{x}\right) \end{aligned}$$

Das RTE-Modell

$$\lambda_{\text{RTE}} = \text{Tr}\{\rho\lambda\}$$

$$\begin{aligned}\lambda_{\text{RTE}}(a,b,c,T) &= \sum_{i,j,k=1}^{\infty} \rho_{ijk,ijk} \lambda_{ijk,ijk} \\ &= \lambda_A - \frac{\lambda_S - \lambda_T}{4} F(a,\delta,T) F(b,\delta,T) F(c,\delta,T)\end{aligned}$$

mit

$$F(x,\delta,T) = \frac{\sum_{i=1}^{\infty} G_i(x,\delta) \exp(-\beta i^2/x^2 kT)}{\sum_{i=1}^{\infty} \exp(-\beta i^2/x^2 kT)} = 1 - \frac{2\delta}{x} + \frac{\sum_{i=1}^{\infty} \frac{1}{i\pi} \sin\left(\frac{2i\pi\delta}{x}\right) \exp(-\beta i^2/x^2 kT)}{\sum_{i=1}^{\infty} \exp(-\beta i^2/x^2 kT)}$$

Das RTE-Modell

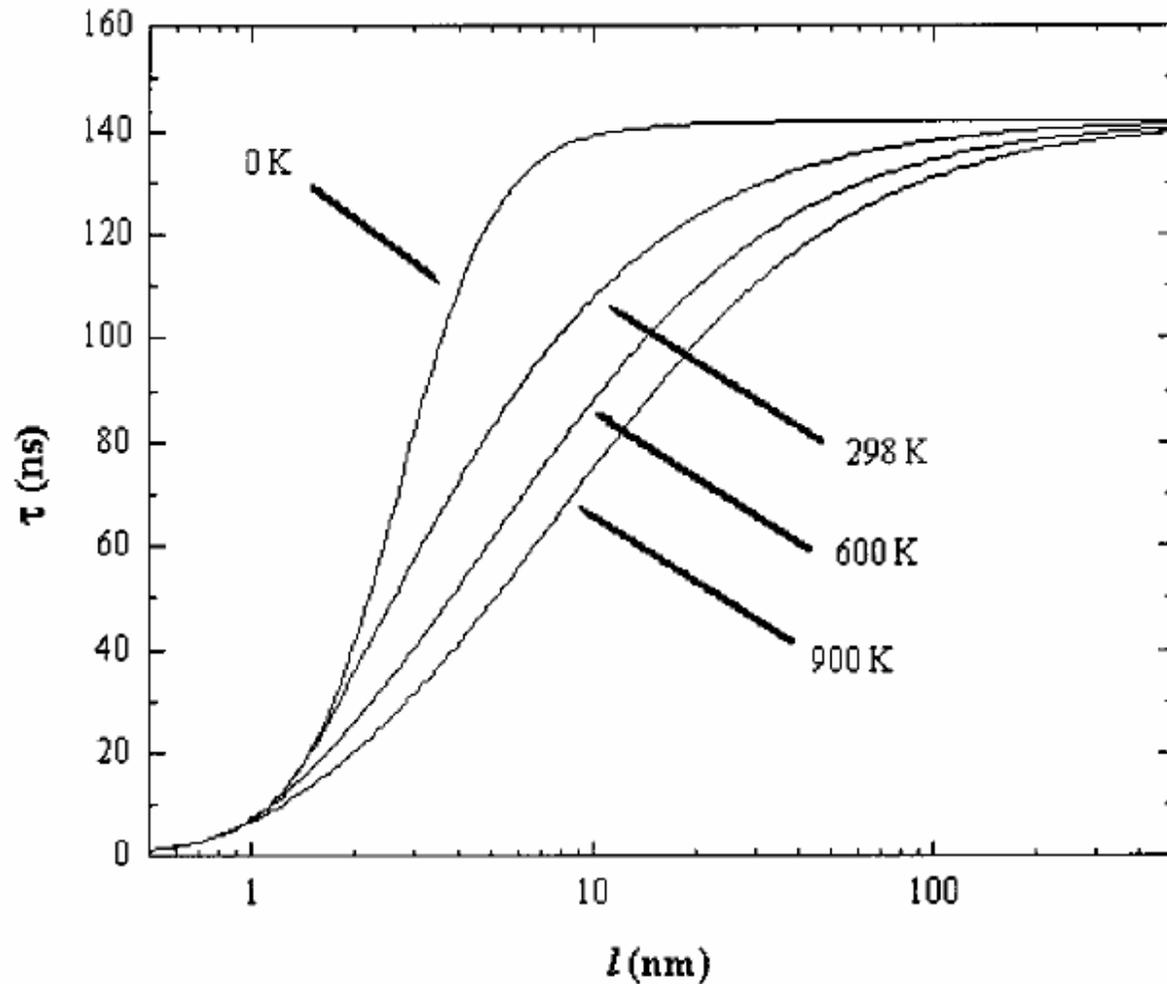
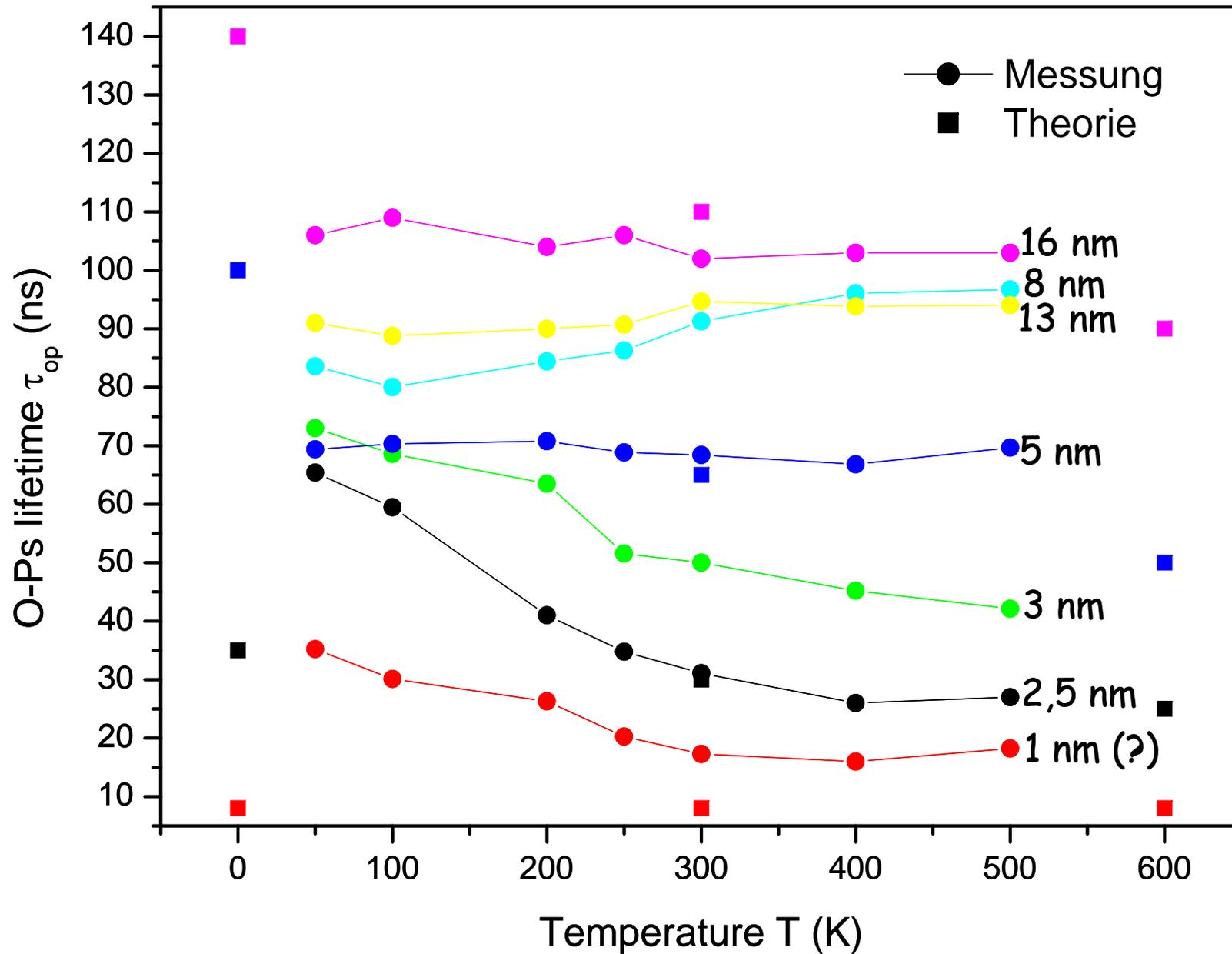
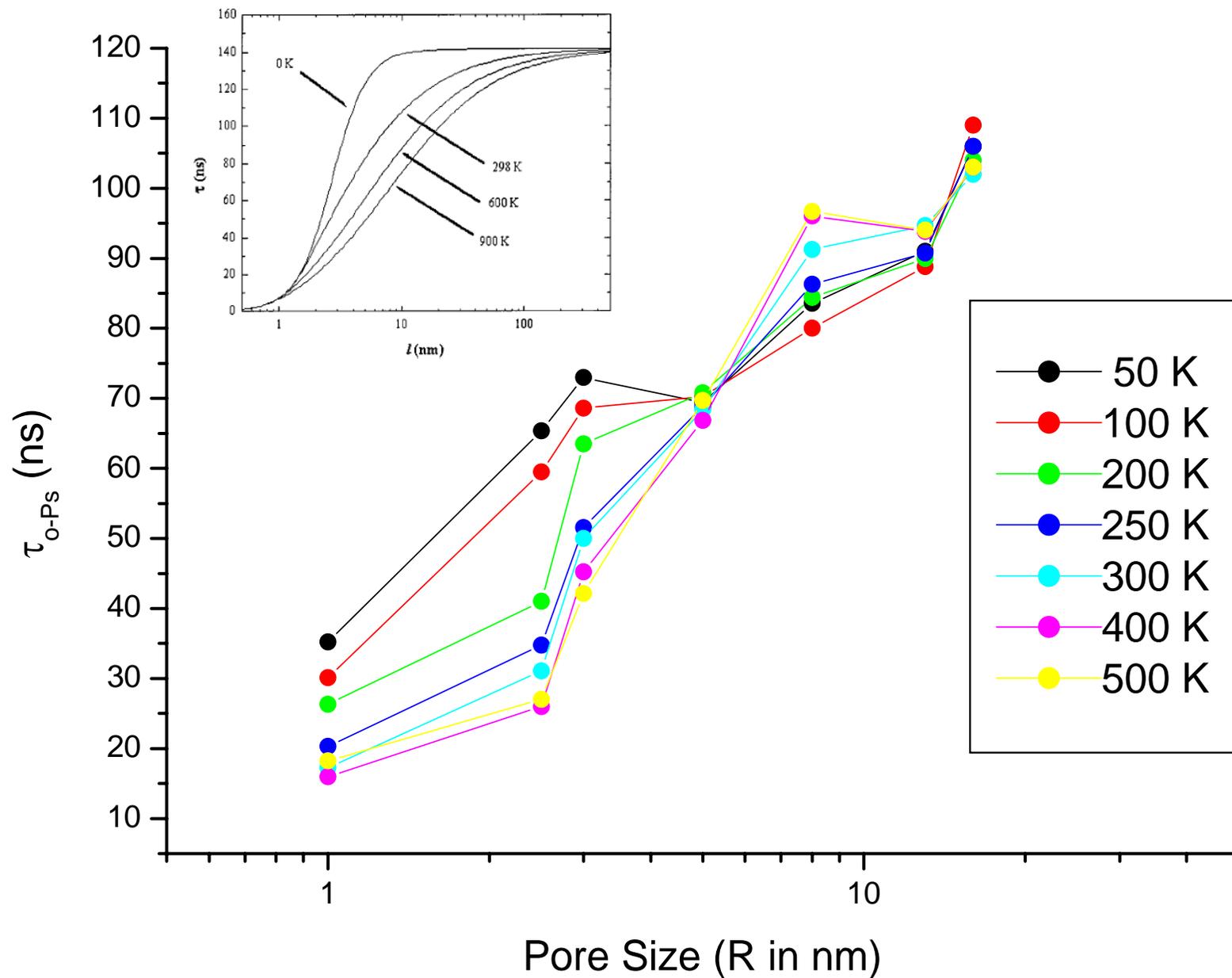


Figure 3. Temperature dependence of the Ps lifetime for cubical pores in the RTE calculation. The mean free path, l , is related to the cube side length by $l = \sqrt[2]{3}a$.

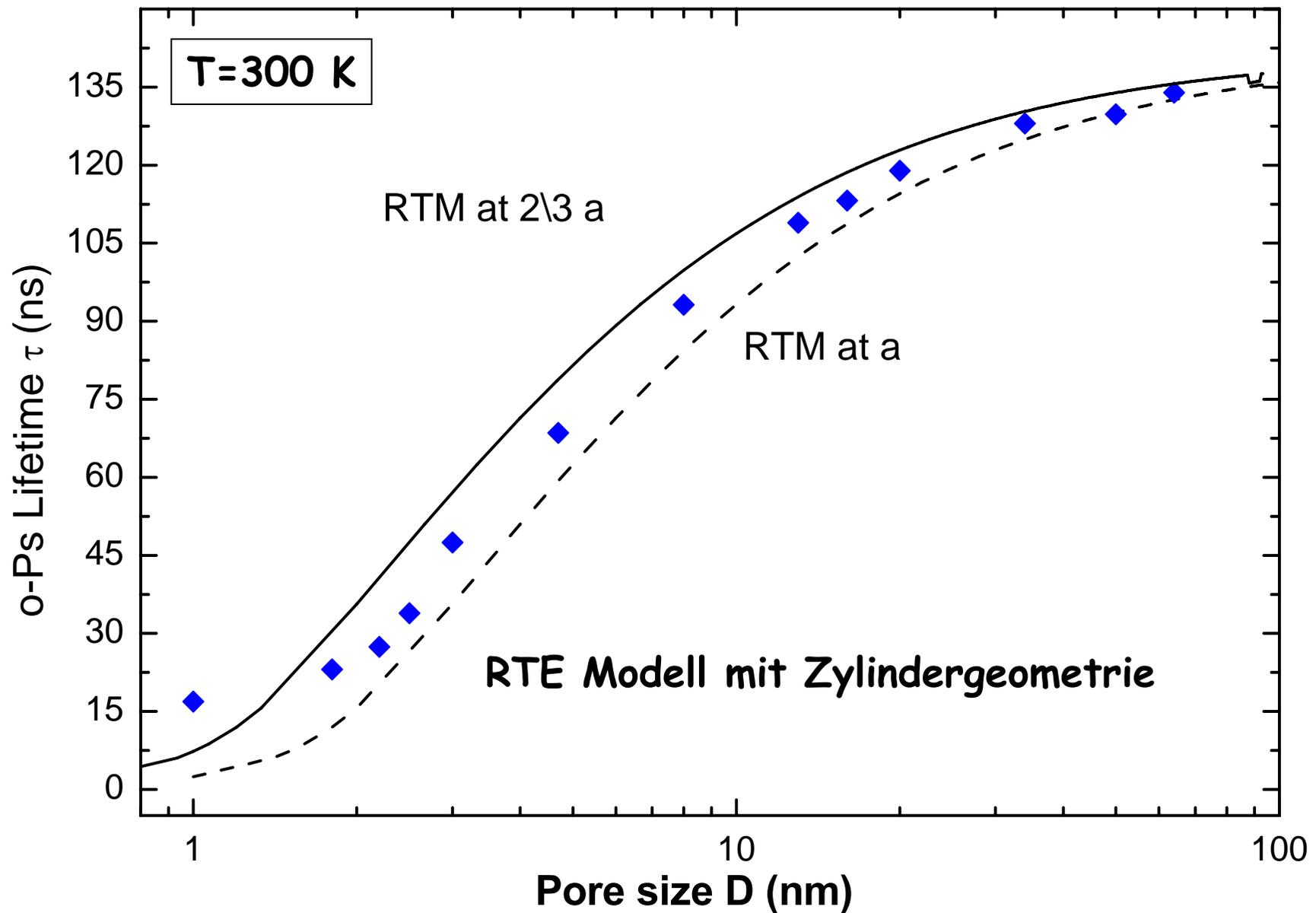
Aktuelle Ergebnisse



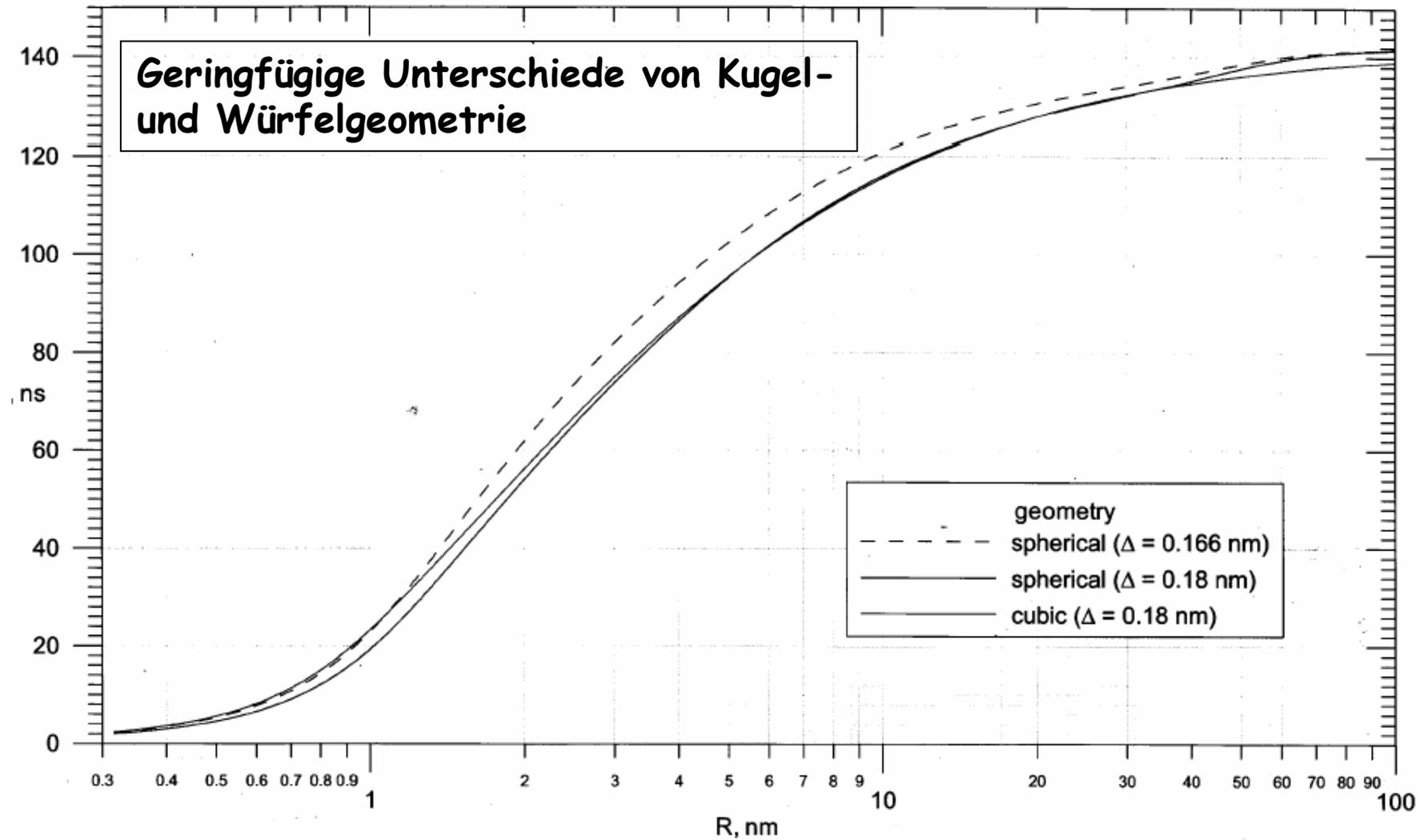
Aktuelle Ergebnisse



Aktuelle Ergebnisse



Unterschiedliche Porengeometrie



Probleme

- Modelle entsprechen nicht der Realität, liefern aber dennoch brauchbare Ergebnisse.
- Temperaturabhängigkeit der Lebensdauer konnte nur für kleine Poren gezeigt werden.
- Einfluss der Porengeometrie gering, aber dennoch vorhanden -> Modellierung???

Aufgaben

- Nicht abgeschlossenen Potentialtopf endlicher Höhe wählen.
- „Reale“ Geometrie verwenden (z.Bsp. eine Kette von Kugeln, Quadern o.ä.)
- ?