

Física de Materiales y Espectroscopía de Aniquilación de Positrones: Estudio de defectos usando técnicas experimentales y cálculos a primeros principios

C. Macchi^{1,2} y A. Somoza^{1,3}

1 Instituto de Física de Materiales Tandil, CIFICEN (CONICET-UNCPBA), Pinto 399, B7000GHG Tandil, Argentina.

2 Consejo Nacional de Investigaciones Científicas y Técnicas (CONICET), Argentina.

3 Comisión de Investigaciones Científicas de la Provincia de Buenos Aires (CICPBA), Argentina.

Grupo Radiaciones Nucleares Aplicadas
IFIMAT y CIFICEN
UNCPBA-CONICET

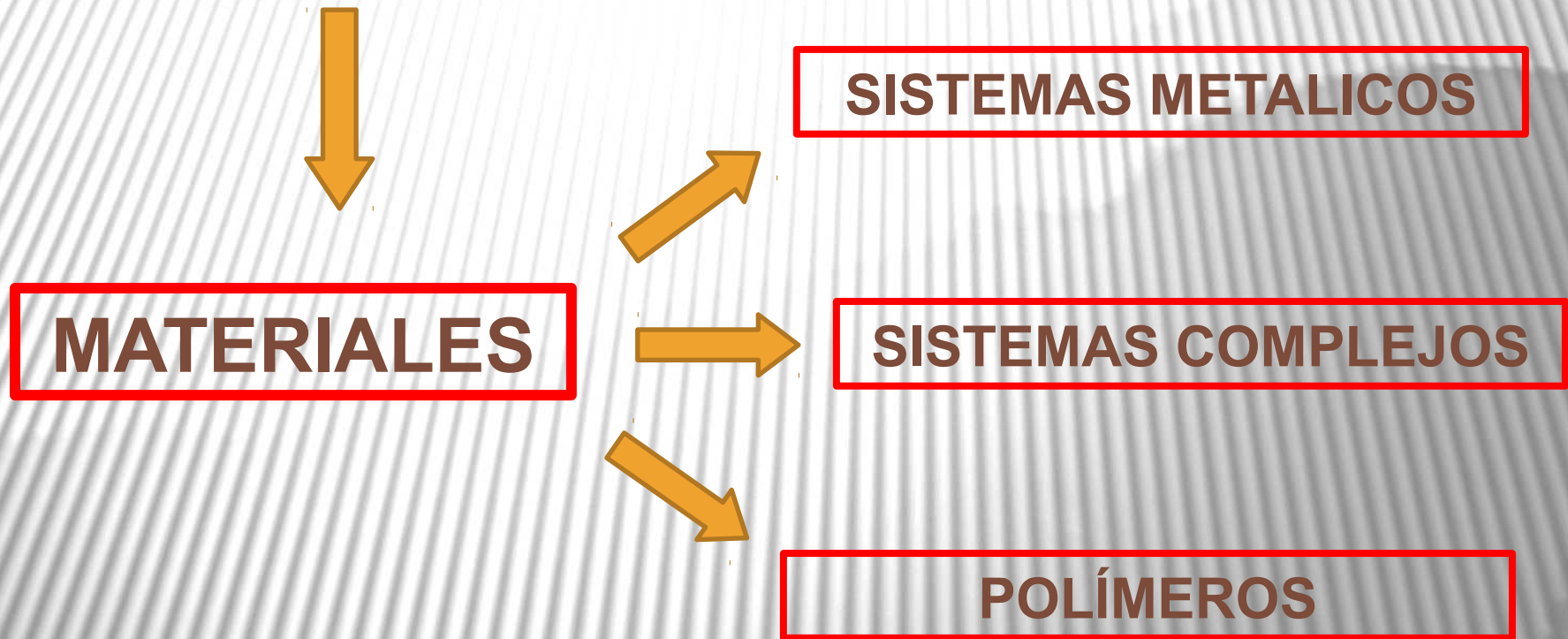
El Grupo Radiaciones Nucleares Aplicadas GRNA se ocupa:

estudio experimental de fenómenos físicos relacionados con la formación o presencia de **estructuras a escala atómica o nanométrica** presentes en materiales de interés tecnológico

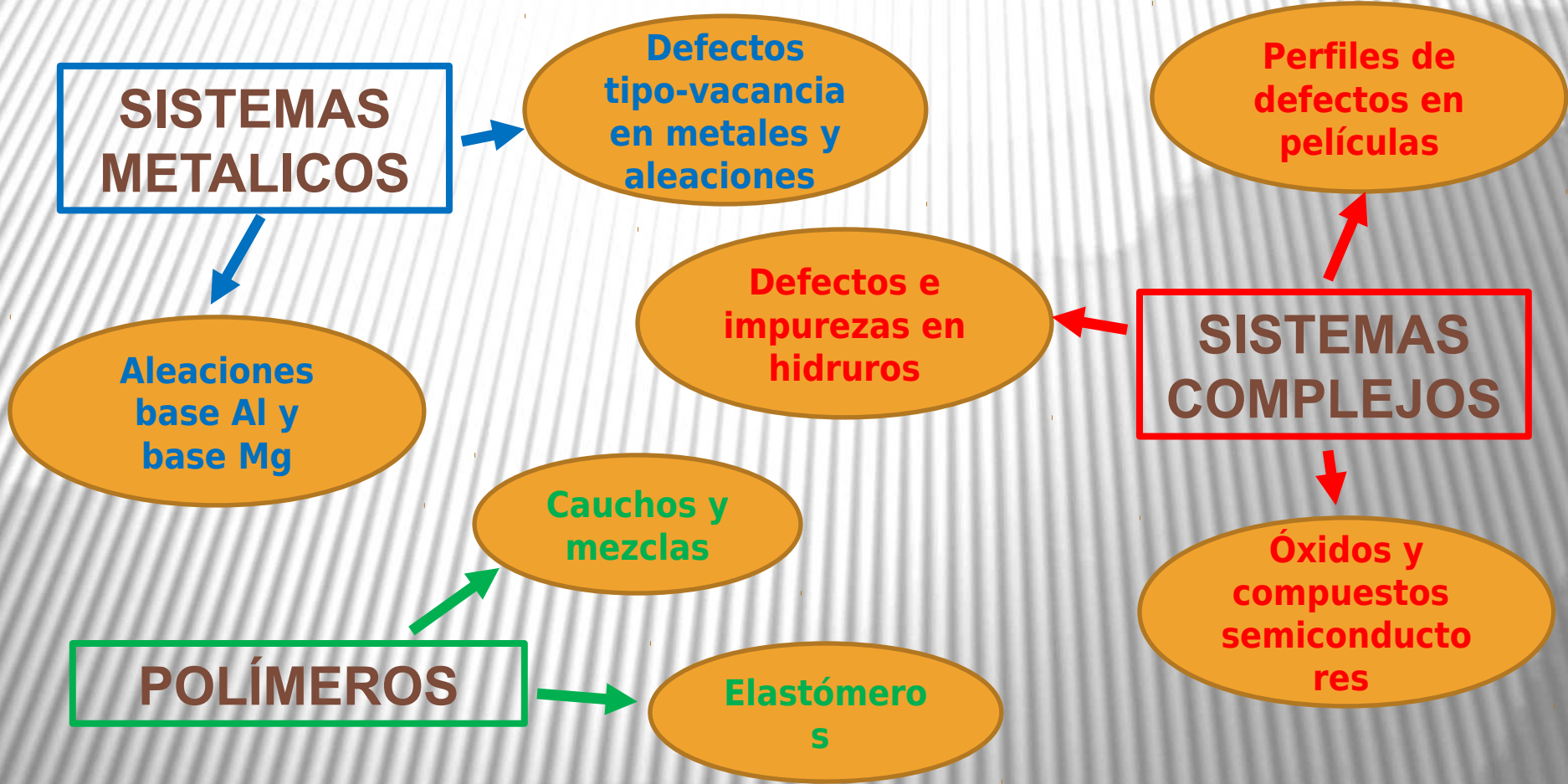
sub-
superficial
volumétrico

defectos
nanohuecos
nanoprecipitados
volúmenes libres

LINEAS DE TRABAJO



LINEAS DE TRABAJO



HERRAMIENTAS

Espectroscopía
de Aniquilación
de Positrones

tiempo de vida
ensanchamiento Doppler simple
ensanchamiento Doppler en coincidencia
haces de positrones lentos

para **ahondar en la interpretación** de los resultados experimentales u **obtener información de carácter predictivo**

se realizan **cálculos a primeros principios** que permiten **modelar el proceso de aniquilación del par electrón-positrón**

no
autoconsistentes

autoconsistentes

ESPECTROSCOPIA DE ANIQUILACION DE POSITRONES

INVESTIGANDO LA MATERIA CON ANTIMATERIA

**una herramienta para caracterizar
defectos en sólidos**

DEFECTOS

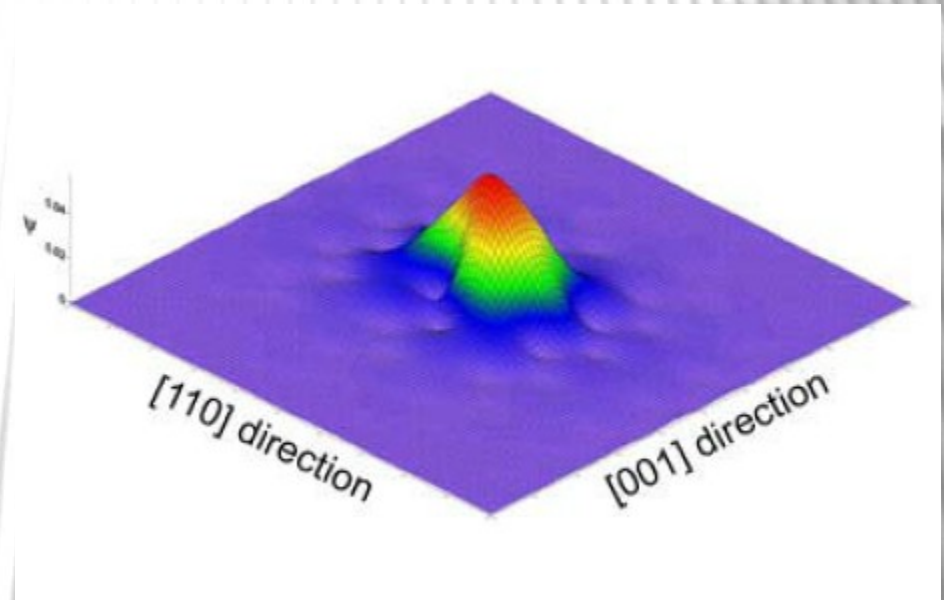
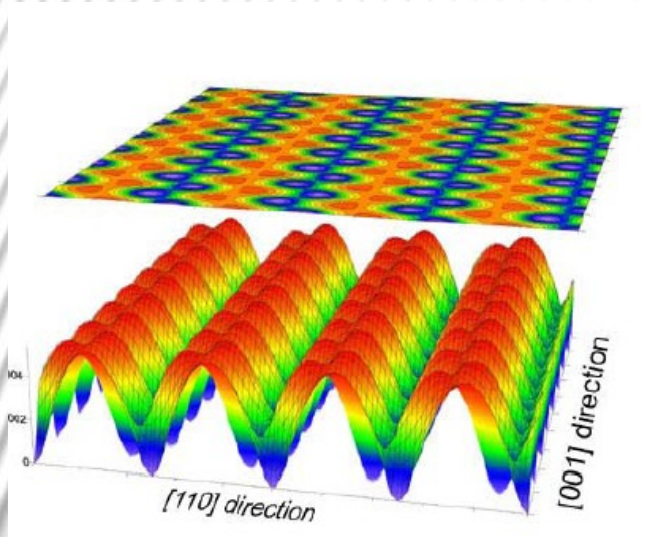
❑ PREGUNTAS

- **Tipo de defecto?**
- **Estado de carga?**
- **Concentración?**

❑ RESPUESTAS DE PAS

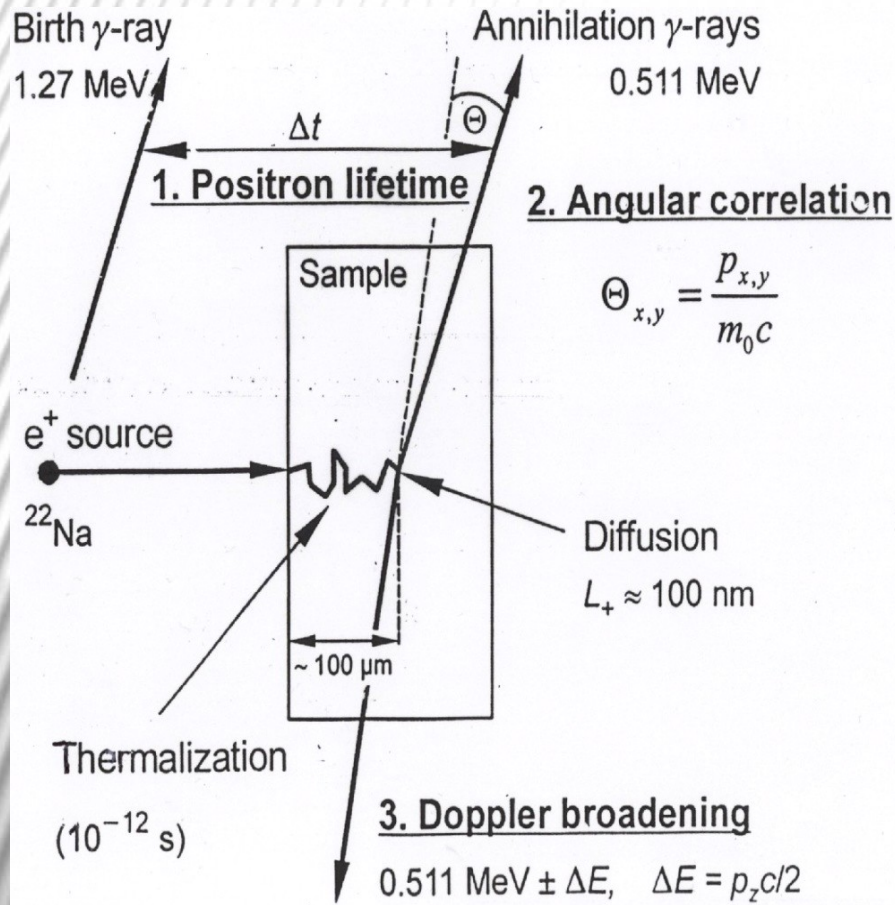
- **Defectos tipo-vacancia y defectos complejos tamaño del defecto (mono-, di-, complejo de vacancias)**
- **Vacancias y complejos neutros o negativos defectos con carga positiva son invisibles**
- **Límites de sensibilidad desde 10^{14} a 10^{19} cm⁻³**

INTERACCIÓN CON LA MATERIA

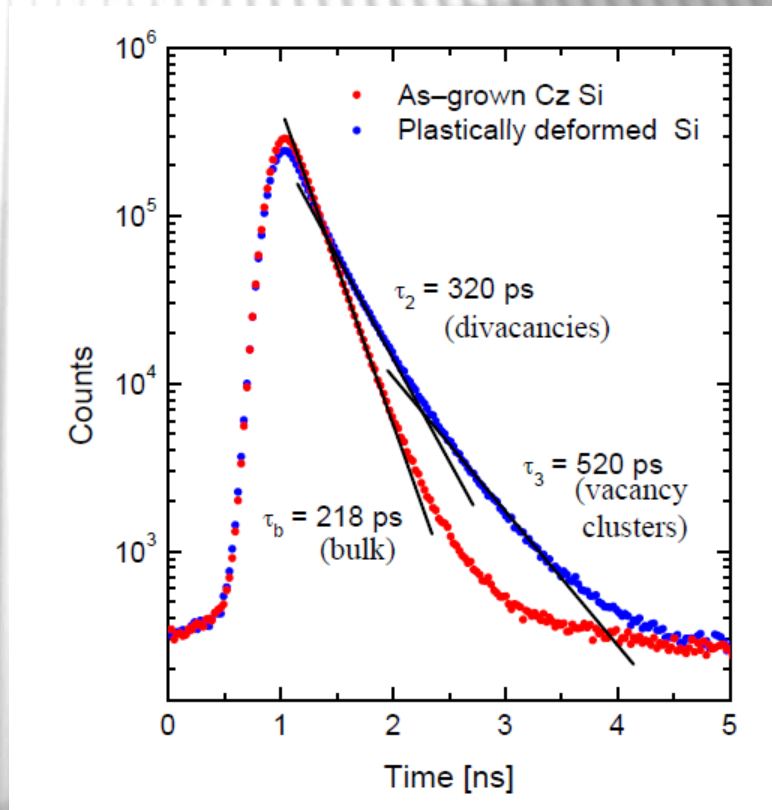


- ❑ los positrones son repelidos por los carozos iónicos
- ❑ defectos tipo-vacancia representan una trampa positrónica debido a la falta de carozos iónicos (pozo de potencial)

ESPECTROSCOPÍA DE ANIQUILACIÓN DE POSITRONES



tiempo de vida



Tiempo de vida del e⁺ (τ)

$$\frac{1}{\tau} = \lambda = \pi r_e^2 c \int n^+(\vec{r}) n^-(\vec{r}) \gamma(n^-(\vec{r})) d\vec{r}$$

Tasa de
aniquilación

Densidad
positrónica

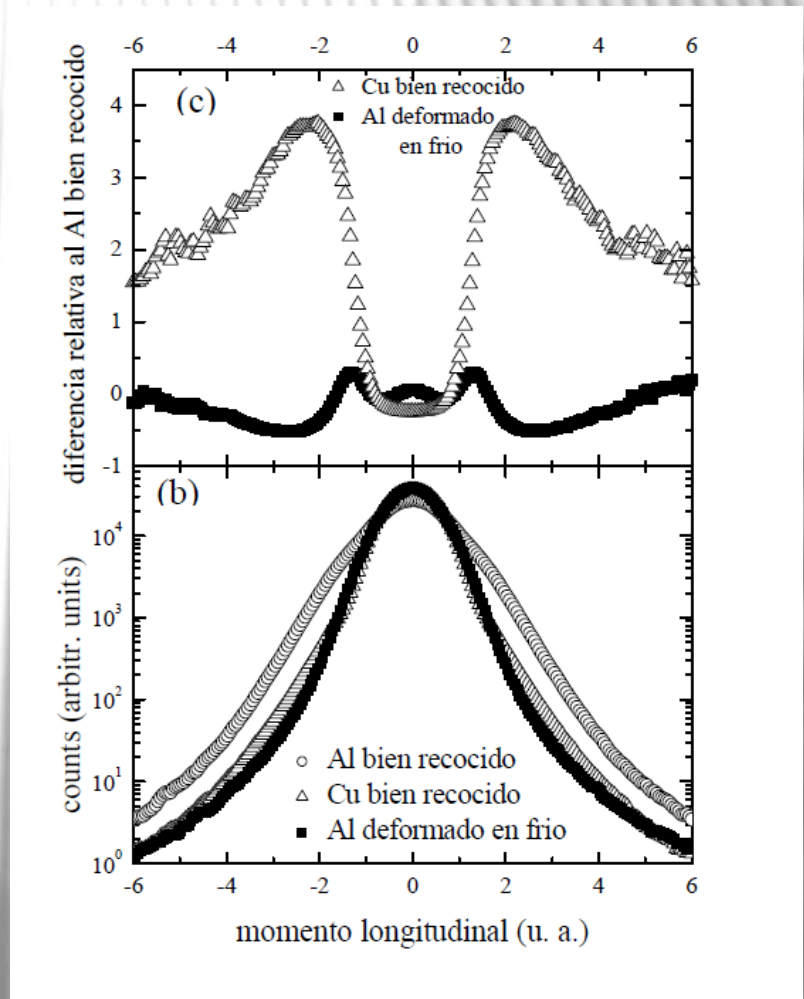
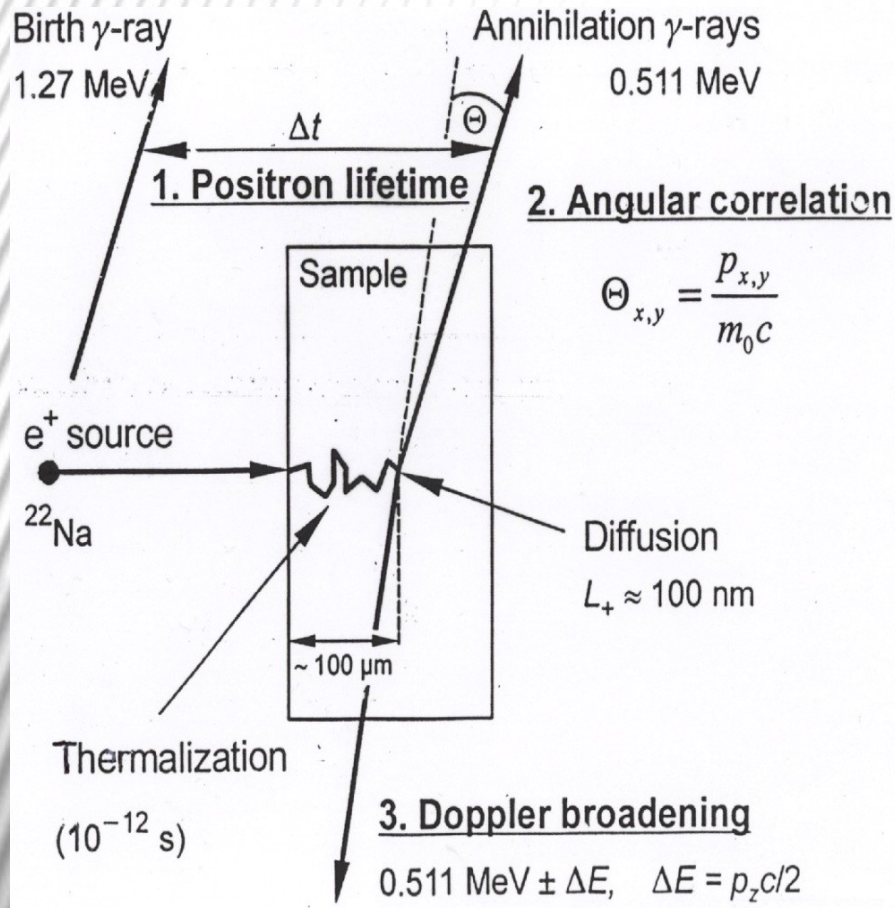
Densidad
electrónica

factor de
incremento

Cómo se calculan?

ESPECTROSCOPÍA DE ANIQUILACIÓN DE POSITRONES

Doppler



Distribución en momento $\rho(\mathbf{p})$ del par e+-e- que se

$$\rho(\vec{\mathbf{p}}) = \pi_e^2 c \sum_j \left| \int d\vec{\mathbf{r}} \psi_j^-(\vec{\mathbf{r}}) \psi_j^+(\vec{\mathbf{r}}) e^{-i \vec{\mathbf{p}} \cdot \vec{\mathbf{r}}} \right|^2 \gamma_j$$

Función de onda en el estado de positrón
 Función de onda en el estado de electrón

Factor de incremento

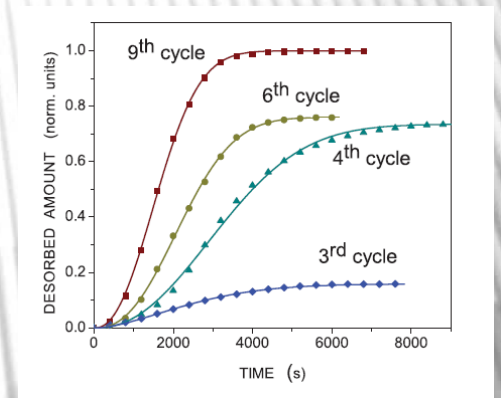
$$\gamma_j = \frac{\lambda_{LDA}^j}{\lambda_{IPM}^j}$$

Para comparar con resultados experimentales

$$\rho(p_z) = \iint dp_x dp_y \rho(\vec{\mathbf{p}})$$

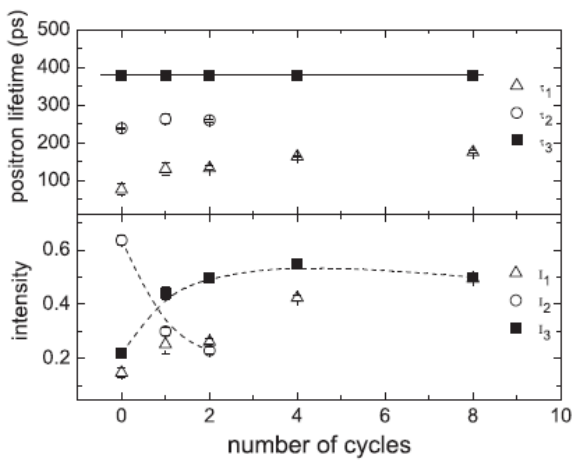
CASO: Defectos en Películas de Mg

Problema: Caracterización de defectos creados en películas de Mg puro nanoestructurado sometidas a diversos ciclos de carga-descarga de H

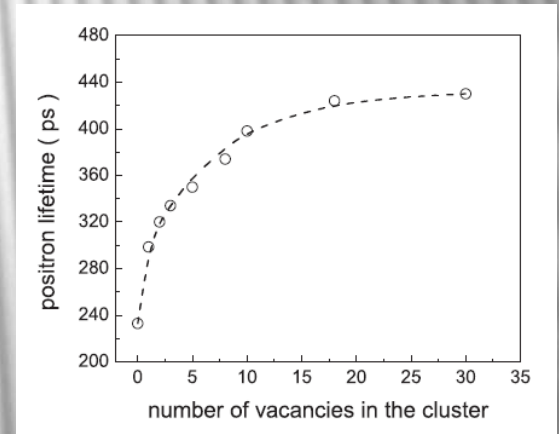


$\tau_2 = 240\text{ps} \rightarrow$ monovacancias
 $I_2 \rightarrow$ concentración
 $\tau_3 = 380\text{ps} \rightarrow$ aglomerados
 $I_3 \rightarrow$ concentración

Tamaño de los aglomerados? \square cálculos a primeros principios de tiempo de vida



380 ps volumen correspondiente a un aglomerado de al menos diez vacancias con un radio equivalente a **1.8 Å**



PHYSICAL REVIEW B 84, 054115 (2011)

Enhanced kinetics of hydride-metal phase transition in magnesium by vacancy clustering

R. Checchetto,^{1,*} N. Bazzanella,¹ A. Kale,¹ A. Miotello,¹ S. Mariuzzi,¹ R. S. Brusa,¹ P. Mengucci,² C. Macchi,³ A. Somoza,⁴ W. Egger,⁵ and L. Ravelli⁵

¹Dipartimento di Fisica, Università di Trento, Via Sommarive 14, 38123 Trento, Italy
²Dipartimento di Fisica e Ingegneria dei Materiali e del Territorio, Università Politecnica delle Marche, I-60131 Ancona, Italy
³IFIMAT, UNCentro and CONICET, Pinto 399, B7000GHG Tandil, Argentina
⁴IFIMAT, UNCentro and CICPBA, Pinto 399, B7000GHG Tandil, Argentina
⁵Institut für Angewandte Physik und Messtechnik, Universität der Bundeswehr München, 85577 Neubiberg, Germany

(Received 1 April 2011; revised manuscript received 15 June 2011; published 15 August 2011)

PHYSICAL REVIEW B 85, 214117 (2012)

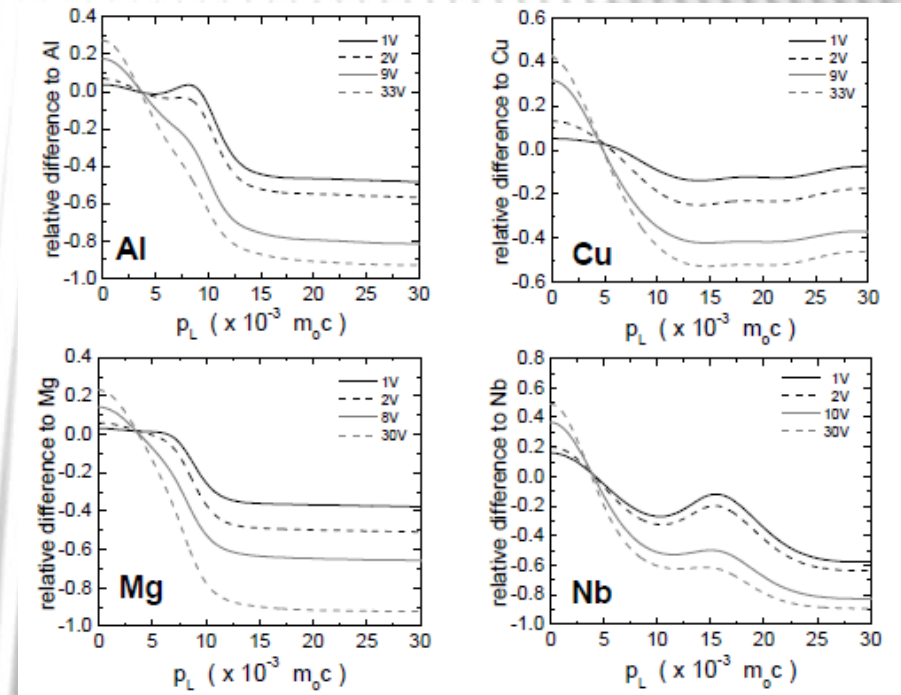
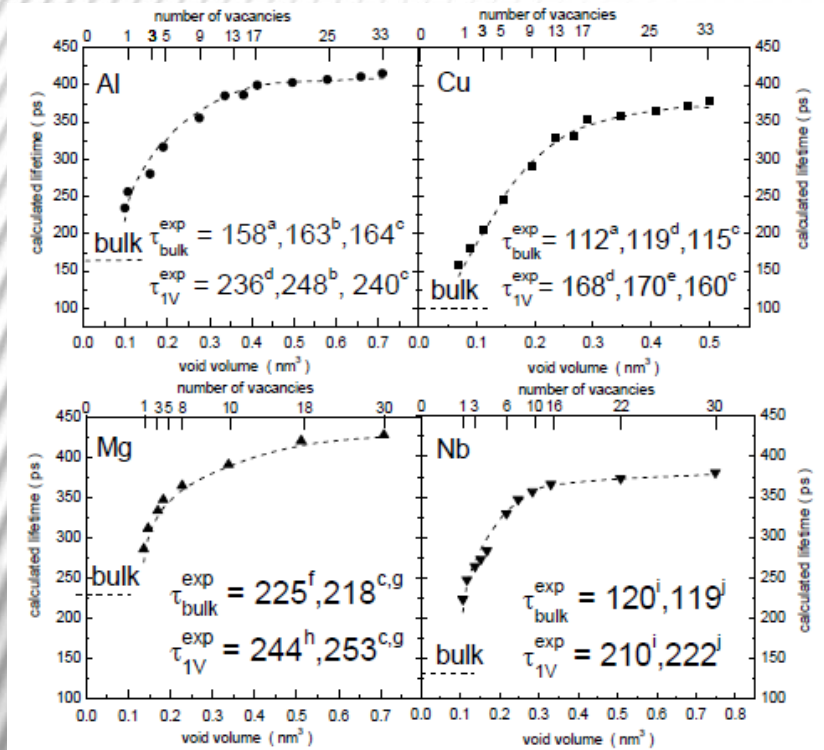
Niobium aggregation and vacancylike defect evolution in nanostructured Nb-doped Mg: Their role in the kinetics of the hydride-to-metal phase transformation

C. Macchi,¹ C. Maurizio,² R. Checchetto,³ S. Mariuzzi,³ L. Ravelli,⁴ W. Egger,⁴ P. Mengucci,⁵ N. Bazzanella,³ A. Miotello,³ A. Somoza,⁶ and R. S. Brusa¹

¹IFIMAT, UNCentro and CONICET, Pinto 399, B7000GHG Tandil, Argentina
²Dipartimento di Fisica e Astronomia and CNISM, Università di Padova, Via Marzolo 8, I-35131 Padova, Italy
³Dipartimento di Fisica and CNISM, Università di Trento, Via Sommarive 14, I-38123 Trento, Italy
⁴Institut für Angewandte Physik und Messtechnik, Universität der Bundeswehr München, 85577 Neubiberg, Germany
⁵Dipartimento di Fisica e di Ingegneria dei Materiali, Università delle Marche, I-60131 Ancona, Italy
⁶IFIMAT, UNCentro and CICPBA, Pinto 399, B7000GHG Tandil, Argentina

(Received 22 September 2011; revised manuscript received 15 March 2012; published 18 June 2012)

CASO: Aglomeración de vacancias en metales puros



Vacancy clustering in pure metals: some first principle calculations of positron lifetimes and momentum distributions

C. R. Luna¹, C. Macchi^{1§}, A. Juan² and A. Somoza³

¹IFIMAT, UNICEN and CONICET, Pinto 399, Tandil, Argentina.

²IFISUR, Dpto. Física, UNS and CONICET, Av. Alem 1253, Bahía Blanca, Argentina

³IFIMAT, UNICEN and CICPBA, Pinto 399, Tandil, Argentina.

CASO: Vacancias e impurezas de O en U

Problema: Fuerte discrepancia en valores medidos para la energía de formación de vacancias en U usando PAS → origen?

| Source | H_v^f (eV) | ΔH_v^f (eV) |
|--------------------|--------------|---------------------|
| This Work | 1.6 | 0.2 |
| Ref 3 | 1.2 | 0.3 |
| Ref 4 ^a | 0.3 | --- |

Cálculo de la energía de formación de vacancias en α -U

$$E_{vac}(\square) = E(U_{N-1} \square) + \frac{N-1}{N} E(U_N) \Rightarrow \begin{aligned} H_{vf} &= 1.98 \text{ eV GGA-PW91} \\ H_{vf} &= 2.22 \text{ eV LDA} \end{aligned}$$

Evidencia experimental de impurezas de O

Cálculo la energía de formación de vacancias en α -U considerando la vacancia decorada con un átomo de O

Impurity migration and effects on vacancy formation enthalpy in polycrystalline depleted uranium

K. R. Lund^{a*}, K. G. Lynn^a, M. H. Weber^a, C. Macchi^{bc}, A. Somoza^{bd}, A. Juan^{ce} and M. A. Okuniewski^f

^a Washington State University, Center for Materials Research, Pullman, WA, United States

^b Instituto de Física de Materiales Tandil, CIFICEN (CONICET-UNCPBA), Pinto 399, B7000GHG Tandil, Argentina

^c Consejo Nacional de Investigaciones Científicas y Técnicas (CONICET), Argentina

^d Comisión de Investigaciones Científicas de la Provincia de Buenos Aires (CICPBA), Argentina.

^e Instituto de Física del Sur (IFISUR, UNS-CONICET) and Departamento de Física, Universidad Nacional del Sur, Av. Alem 1253, B8000CPB Bahía Blanca, Argentina

^f Idaho National Laboratory, Idaho Falls, ID, United States

$$\Rightarrow H_{vf} = 1.70 \text{ eV GGA-PW91}$$

Enviado a:
**Journal of Nuclear
Materials**

Más detalles:
RESUMEN # 1788

CASO: Defectos en SnO₂

- SnO₂ **nanocristalino** recocido en diferentes atmósferas
- polvos comerciales de alta pureza SnO₂ (grano 50nm) fueron recocidos en diferentes atmósferas

O₂

☐ CO

☐ H₂

| <i>Atmosphere</i> | τ_1 (ps) | τ_2 (ps) | I ₂ (%) | τ (ps) |
|----------------------|---------------|---------------|--------------------|-------------|
| <i>O₂</i> | 167 ± 1 | 360 ± 5 | 20.0 ± 0.5 | 206.5 ± 0.5 |
| <i>CO</i> | 166 ± 1 | 367 ± 5 | 28.1 ± 0.5 | 220.7 ± 0.5 |
| <i>H₂</i> | 164 ± 1 | 357 ± 4 | 33.0 ± 0.5 | 228.7 ± 0.5 |

- Resultados PALS →

PROBLEMAS:

→ No disponemos de SnO₂ cristalino

→ no τ_b

→ No existe información en la literatura

→ no τ_b ni τ_D ni otros parámetros

ni estado de carga de defectos

CASO: Defectos en SnO₂

- Se calcularon τ_b y τ_D
- se consideraron V_{Sn} , V_O y V_{Sn-O}
- V_O posee una energía de ligadura con el positrón muy baja → *shallow trap*?

| Defect | Lifetime | | E_b (eV) |
|-------------|-------------|--------------------------|---------------|
| | τ (ps) | Relative differences (%) | |
| free-defect | 166 | - | - |
| V_O | 170 | 2 | ~0 |
| V_{Sn} | 200 | 21 | 0.85 |
| V_{Sn-O} | 214 | 29 | 1.07 |

- SE SUPUSO:
 - positrones se aniquilan con V_{Sn} intragranulares y clusters de vacancias en borde de grano ($\tau_{cluster} \sim 360ps$)
- SE OBTUVO:
 - Usando el modelo de atrapamiento se obtuvieron relaciones:
 - Muestra CO tiene 25%↑ V_{Sn} y ~ 80%↑ clusters que la muestra O2**
 - Muestra H2 tiene 33%↑ V_{Sn} y ~ 136%↑ clusters que la muestra O2**

**MUCHAS GRACIAS POR SU
ATENCIÓN!!**