

Caracter aniónico versus catiónico del hidrógeno intersticial

G. Martínez Tamayo
Laboratorio de colisiones atómicas e implantación de iones
Depto de Física
Universidad Nacional de Colombia (Bogotá)

1) Revisión de fundamentos

Definición operativa de carga efectiva de un átomo:

Número efectivo de electrones ligados al núcleo de un proyectil (impureza) atómico inmerso en un medio material.

Método experimental de determinación:

Medición indirecta a partir de la pérdida de energía que sufre el proyectil al atravesar cierta cantidad de materia (normalmente una película delgada).

Una interacción más o menos fuerte representa mayor o menor carga efectiva respectivamente, formalmente:

$$Z_1^{*2} = (\Delta E)_{Z_1} / (\Delta E)_1$$

con $(\Delta E)_{Z_1}$ energía pérdida por el proyectil problema y la referencia respectivamente.

Aproximación teórica al valor de carga efectiva:

-Criterio de ionización de Bohr

V, u : velocidades de proyectil y electrón atómico respectivamente

si $v > u$: ionización

si $v < u$: adiabaticidad

- Evaluación de la velocidad media de un electrón atómico (modelo estadístico de Thomas-Fermi)

$$\langle u \rangle = V_0 Z^{2/3}$$

Variable de interés:

$$V/V_0 Z^{2/3}$$

Resultado: Apantallamiento exponencial de la carga

$$\gamma = \frac{Z_1^*}{Z_1} = 1 - \exp\left(-\frac{V}{V_0 Z_1^{2/3}}\right)$$

γ : Carga fraccional

Extensión del concepto de carga efectiva ($V < V_0$)

$V_r = V_r(V, r_s)$: velocidad relativa proyectil-gas electrónico

$$Y_r = \frac{V_r}{V_0 Z_1^{2/3}}$$

Y_r : Velocidad reducida

$$V_r = \frac{V[1 + \frac{1}{5}(V/V_F)^2]}{5} \quad \text{si} \quad V > V_F$$

$$V_r = \frac{3}{4} V_F \left[1 + \frac{2}{3} (V/V_F)^2 - \frac{1}{15} (V/V_F)^4 \right] \quad \text{si} \quad V < V_F$$

Discusión pertinente

Se discuten dos situaciones físicas en apariencia irreconciliables que se presentan en la actualidad:

La curva universal de ionización vaticina cargas positivas. En el límite de velocidad relativa $v_r = 0$ el átomo-impureza se hallaría en estado neutro.

La teoría funcional densidad (TFD) predice la existencia de un orbital lleno para el hidrógeno (ión H^-) en metales.

La afinidad electrónica E_a del ión H^- es 0,028 u.a., muy inferior a la energía de ionización del hidrógeno ($E_b = 0,5$ u.a.). La dinámica electrónica de estos metales es causa de que un electrón ligado resulte tempranamente perdido.

En plasmas de baja densidad, la lenta dinámica electrónica permitiría la formación y permanencia estable del ión.

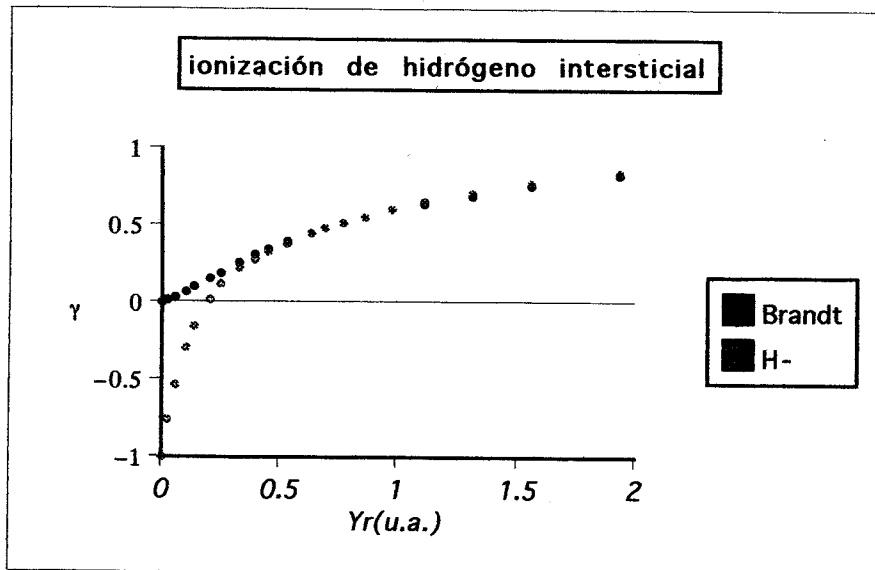


Figura 2: posibles curvas de ionización para el hidrógeno: universal (Brandt), tentativa para el ión negativo (H^-)

Análisis semi-cuantitativo del proceso.

Se asume:

- El ión H^- corresponde al estado de carga habitual del hidrógeno inmerso en un gas de electrones idealmente estático.
- El criterio de ionización de Bohr.

$$\frac{1}{2} m_e v_r^2 = 0.028 u.a.$$

Resultado : Se aproximan razonablemente los resultados existentes para proyectiles livianos (excepto el He) en el rango de velocidades intermedias a bajas. Sin embargo, la predicción a velocidades bajas muestra una tendencia clara a la "catástrofe del protón no ligado".

3) El hallazgo de estados de electrón ligado al protón en sólidos

Teoría y experimento concuerdan si se asume que tanto el helio como el hidrógeno se ajustan también a la curva universal de carga efectiva.

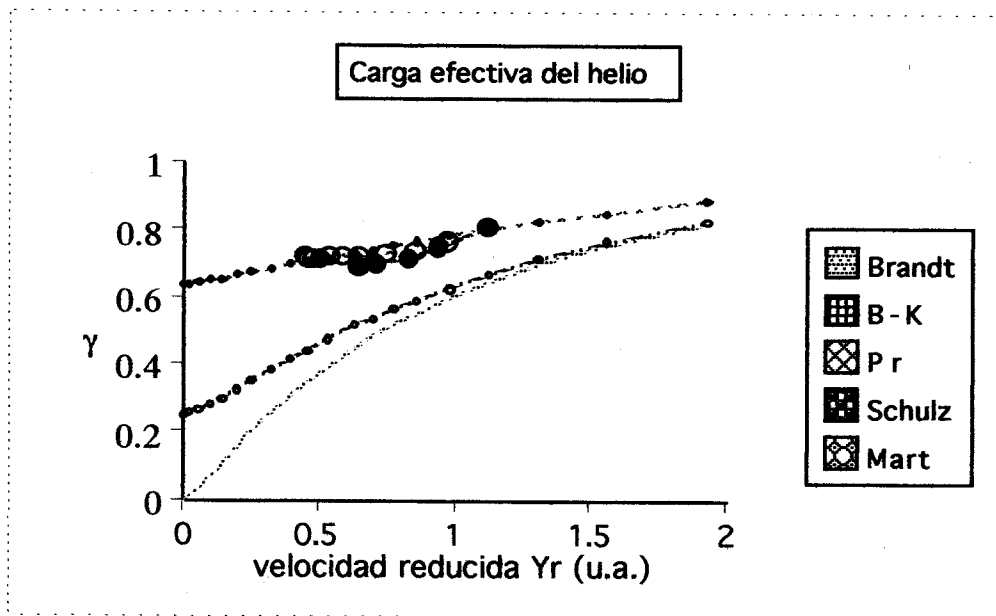


figura 1: relación de frenados helio/hidrógeno en aluminio
(B-K: Brandt Kitagawa, Schulz, Pr: propuesta)

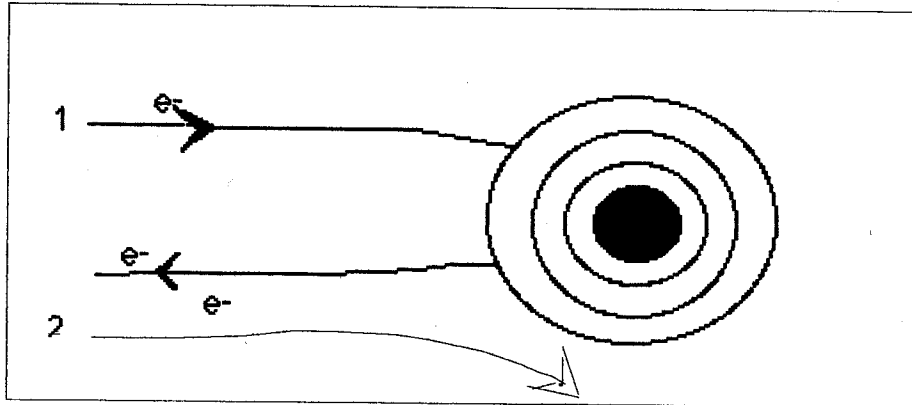
Consecuencias:

- Establece la existencia de estados de electrón ligado al protón intersticial en sólidos.
- Una ley única (curva universal) describe el valor de la carga efectiva de cualquier átomo en la tabla periódica, en el rango de velocidades no relativistas.
- Reinvienda la utilidad del concepto de carga efectiva.
- Aporta un rasgo de estabilidad del átomo en el medio
- Sugiere una revisión del modelo de cálculo elegido para aplicar la funcional densidad,
- Sugiere una reflexión profunda sobre el significado del concepto de estado ligado bajo estas condiciones particulares de apantallamiento.

Teoría completa de la carga efectiva (Brandt-Kitagawa 1982)

Incluye efecto de colisiones cercanas y distintas para salvar la regla de escala.

Base fundamental : $Z^*_H = 1$ en sólidos reales a todas las velocidades.



Para la trayectoria 1 el electrón observa una mayor carga nuclear efectiva al penetrar parcialmente la nube electrónica.

Q : grado de ionización ($Z - N$) $Z^* \geq Q$

Z : Carga efectiva

Hipótesis: $\delta_e(r) = \frac{N \Lambda}{4\pi\Lambda^3 r} e^{-r/\Lambda}$ (densidad electrónica)

Λ : parámetro variacional

Resultados $\Lambda(y_r) = \frac{2a_0 Z^{-1/3} c_1 [1 - q(y_r)]^{2/3}}{1 - c_2 [1 - q(y_r)]}$

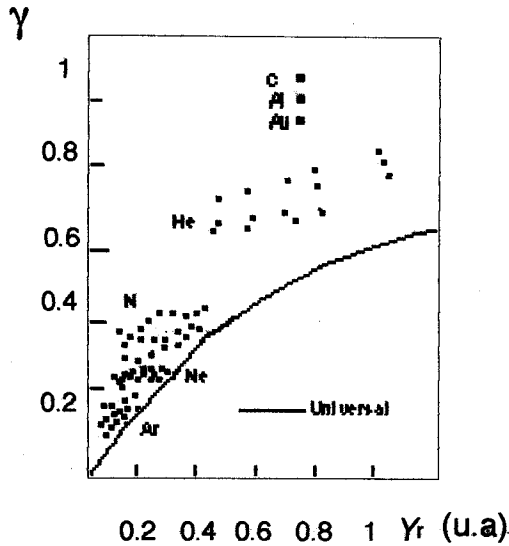
$C_1 = 0,240$, $C_2 = 0,143$ parámetros variacionales; $q = Q/Z$

Similar al modelo de Lenz-Jenzen

$\gamma = q(Y_r) \left[1 + c(r_s) \frac{1 - q(Y_r)}{q(Y_r)} \ln [1 + (4\Lambda(Y_r)/r_s)] \right]$

$C(r_s) \approx 0.50$ para $1.2 \leq r_s \leq 4$

2) Situación experimental con respecto a los iones livianos



Schluz F. : Phys Rev.B 26 , 1982

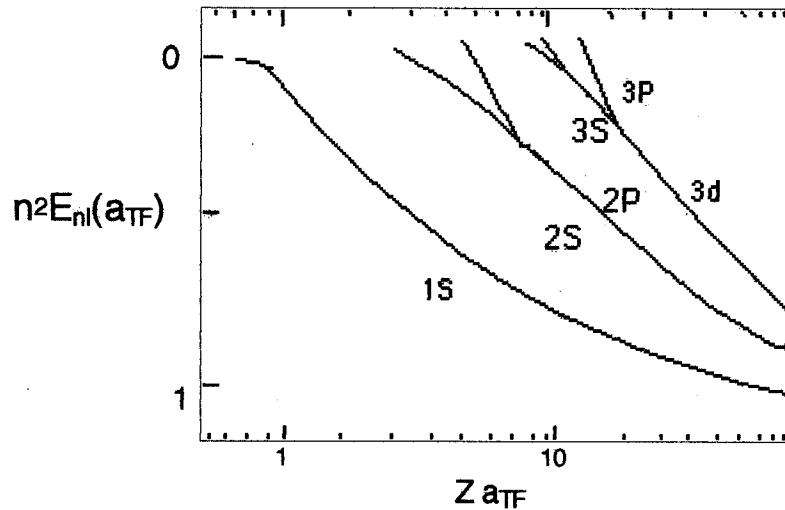
¿Vale el modelo estadístico Thomas-Fermi?

$$R = \frac{(\Delta E / \Delta X)_{He}}{(\Delta E / \Delta X)_H} \quad ?$$

Argumentos:

1.- Solución de la ec. de Schroödinger para potencial apantallado (Rogers F.J. et al., Phys. Rev.A 1, 1577, 1970)

$$V(r) = \frac{Z_1 e}{r} \exp(-r/a_{TF})$$



- Número de estados ligados:
 $n^* = 0.583 + 0.499 a_{TF} Z_1$

Ej: $n^*_{He} = 1$
 $n^*_H \ll 0$

Ref : Atomic collisions in solids, vol 1
 Brandt W., 1973

- Energía de ligadura tiende a 0
- Radio de orbitaje considerablemente mayor que constantes típicas de red

2.-La concordancia del cálculo de la teoría cuántica via la funcional densidad (TFD) (Echenique et al.) (1981) con los resultados experimentales para hidrógeno sugería un valor de carga constante ya que:

$$(\Delta E / \Delta X) \text{ lineal con } V$$

entonces $v_r = 0,25$ u.a. ($v_F \approx 0,3$ u.a.) podría ser considerado un valor de mérito para que el ión H^- se neutralice.

El efecto podría ser apreciable en primer orden solamente en el rango de los metales alcalinos.

Existiría una ventana cercana a $v_r \approx 0,2$ u.a. ($v_F \approx 0,15$ u.a.), para la cual el hidrógeno no sufriría interacción

- Conclusiones:

- Se presenta una forma alternativa plausible para la curva de ionización del hidrógeno en plasmas, compatible con la suposición de un estado de equilibrio H^- en un gas de electrones diluido ($v_F \rightarrow 0$).

- Los resultados sugieren refinar los cálculos de la teoría funcional densidad, prestando particular atención a la energía de afinidad tan alta que se predice para el H^- inmerso en un sólido

- Se requieren datos de poder de frenado de elementos alcalinos y otros materiales de densidad electrónica aún menor.

- Referencia bibliográfica:

[1] W. Brandt y M. Kitagawa, Phys. Rev. B 25, 5631 (1982).

[2] F. Schulz y W. Brandt, Phys. Rev. B 26, 4864 (1982).

[3] G. Martínez T., J.C. Eckardt, G.H. Lantschner y N.R. Arista, Phys. Rev. A 54, 3131 (1996)

[4] A. Arnau, Nucl. Instr. & Meth. B 93, 195 (1994),

Nota: Se eligió como representación de la curva inferior la ecuación:

$$\zeta = 1 - \exp[-0,95y_r + 0,69/(e^{y_r})^8]$$

la cual es una modificación conveniente de la misma ley universal de Brandt.