

VOLUMEN DE SOLUCIÓN DE HIDRÓGENO EN METALES. RELACIÓN CON LA CARGA DE APANTALLAMIENTO DEL PROTÓN

J. L. Gervasoni, J. P. Abriata y V. H. Ponce

Comisión Nacional de Energía Atómica, Centro Atómico Bariloche e Instituto Balseiro*,
(8400) San Carlos de Bariloche, Río Negro.

Se estudia el cambio de volumen de una red metálica al introducir un átomo de Hidrógeno en el material. La densidad de carga de apantallamiento del protón es determinante de varias de las propiedades macroscópicas de los sistemas metal-Hidrógeno. En este trabajo, esta densidad de carga de apantallamiento se utilizará para calcular la energía de interacción del cuasi-átomo formado en torno al protón con el resto del material, y también se aplicará al estudio de la relación entre la carga de apantallamiento y el volumen de solución del Hidrógeno en metales, comparándose nuestros resultados con los datos experimentales disponibles.

We study the change of volume of a metallic lattice when Hydrogen atoms are introduced in the material. The screening charge density of a proton represents an important aspect in order to evaluate the microscopic properties of a metal-Hydrogen system. In this work, we use this screening charge density to calculate the interaction energy of the quasi-atom formed around the proton with the material. Finally, we employ this result to evaluate the relation between the screening charge and the volume of solution of Hydrogen in metals, comparing our results with experimental data.

La siguiente expresión nos permite relacionar el cambio de volumen V_H que experimenta un metal al introducir en él una impureza puntual, con el cambio de energía δE asociado con la correspondiente deformación:

$$\alpha = \frac{V_H}{\Omega} = \frac{1}{\Omega} \frac{\delta \Omega}{\delta P} \sum_i \frac{\delta R_i}{\delta \Omega} \frac{\delta E}{\delta R_i} = -K \sum_i \frac{1}{3} \frac{R_i}{\Omega} \frac{\delta E}{\delta R_i}$$

donde Ω es el volumen de la celda unitaria del metal, K es la compresibilidad del mismo y $\delta \vec{R}_i$ es una deformación arbitraria en la posición de los iones del metal $\{\vec{R}_i\}$. En primer orden en $\{\delta \vec{R}_i\}$, δE está dado por el trabajo producido sobre los iones por el campo eléctrico asociado a la impureza de carga Z_o en $\vec{r} = 0$,

$$\delta E = \sum_i Z_i \int \frac{[\Delta n(\vec{r}) - Z_o \delta(\vec{r})]}{|\vec{r} - \vec{R}_i|} (\vec{R}_i - \vec{r}) d^3 \vec{r} \cdot \delta \vec{R}_i$$

Aquí Z_i es la carga efectiva del ión ubicado en \vec{R}_i y $\Delta n(\vec{r})$ es la densidad de carga inducida por la impureza. El problema ahora es, entonces, evaluar $\Delta n(\vec{r})$. Si bien, el formalismo de la funcional densidad¹ provee una solución exacta a este problema, resulta conveniente buscar soluciones aproximadas

que permitan arribar a expresiones analíticas simples para V_H . Podemos considerar, por ejemplo, una densidad de átomo hidrogenoide

$$\Delta n(r) = \frac{Z_o^3}{\pi} \frac{1}{a_o^3} \exp(-Z_o r / a_o)$$

que describe razonablemente la carga inducida en las cercanías de la impureza, cuando Z_o se ajusta para satisfacer la regla de suma de Friedel².

Otra posibilidad es tomar el modelo propuesto por Nagy y colaboradores³,

$$\Delta n(r) = \frac{Z_o}{r} \frac{N_o}{\lambda \alpha_+ \alpha_-} \exp(\alpha_+ r) [\exp(\alpha_- r) - \exp(-\alpha_- r)]$$

$$\alpha_{\pm} = \{ V_F^2 / 3\lambda \pm \omega_p / (\lambda)^{1/2} \}^{1/2}$$

que describe muy bien los resultados experimentales del poder de frenamiento (stopping power) para H^+ . En esta expresión, la velocidad de Fermi $V_F = (3\pi N_o)^{1/3}$ y la frecuencia de plasma $\omega_p = (4\pi N_o)^{1/2}$ están dadas en términos de la densidad N_o de los electrones de valencia del metal. El parámetro λ se

* Comisión Nacional de Energía Atómica y Universidad Nacional de Cuyo.

determina imponiendo la condición de cúspide, según la cual, en la posición donde se ubica la impureza puntual Z_0 , la densidad electrónica $n(\vec{r}) = N_0 + \Delta n(r)$ debe verificar

$$d[\ln n(r)]/dr|_{r=0} = -2Z_0$$

De estos dos modelos, es de esperar que el primero de una descripción razonablemente correcta de la densidad de carga de apantallamiento cerca de la impureza, mientras que la formulación de Nagy será más adecuada a mayor distancia. Teniendo esto en cuenta, hemos utilizado la densidad de carga de un átomo tipo hidrogenoide sobre la impureza, y otra dada por el modelo de Nagy para una distancia mayor que los primeros vecinos.

En la siguiente Tabla se muestran los resultados que hemos obtenido para los siguientes elementos de transición: bcc: V, Nb y Ta (grupo V de la Tabla Periódica), Cr y Fe; fcc: Ni y hcp: Co y Ti. Aceptamos que el Hidrógeno se ubica siempre en los sitios intersticiales tetraédricos de la estructura bcc, y en los sitios octaédricos de las estructuras fcc y hcp. Los correspondientes datos experimentales están tomados de las referencias (4) y (5)

Observamos que el volumen de solución se ajusta razonablemente bien a los resultados experimentales, excepto para los elementos más compac-

| Elemento | α (calculado) | α (experimental) |
|----------|----------------------|-------------------------|
| V (bcc) | 0.33 | 0.196 ± 0.003 |
| Ta (bcc) | 0.15 | 0.154 ± 0.001 |
| Nb (bcc) | 0.17 | 0.172 ± 0.001 |
| Cr (bcc) | 0.50 | 0.190 ± 0.010 |
| Fe (bcc) | 0.33 | 0.200 ± 0.010 |
| Ni (fcc) | 0.18 | 0.220 ± 0.010 |
| Co (hcp) | 0.21 | 0.190 ± 0.010 |
| Ti (hcp) | 0.12 | ? |

tos (V, Cr, Fe). Ésto sugiere una limitación de nuestro modelo, que puede deberse al hecho de que en estos casos las variaciones locales de la densidad son más importantes.

REFERENCIAS

1. R. G. Parr y W. Yang. *Density-Functional Theory of Atoms and molecules* (Oxford Univ. Press, New York) (1989).
2. B. Apagyí y I. Nagy. *J. Phys.* **C21**, 1465 (1987).
3. I. Nagy, B. Apagyí y K. Landányi, en *Interaction of Charged Particles with Solids and Surfaces*, (A. Gras-Martí et al., Plenum Press, New York) (1991).
4. T. Schober, C. Dieker y R. Feenstra. *J. Phys. F Met. Phys.* **18**, 1119 (1988).
5. E. G. Ponyatovskii, V. E. Antonov y I. T. Belash. *Sov. Phys. Usp.* **15**, 596 (1982).