

Estudio Estructural por Rayos X y de Temperatura de Transición a Superconductividad de la Aleación Pb-Bi

A. Sáenz, N. Clark

Universidad de Costa Rica

Escuela de Física, San José, Costa Rica

W. Moulton y H. Mathias

MARTECH, Florida State University, 411 Keen Bldg.,

Tallahassee, FL. 32306-3016

(recibido febrero 1993, aceptado junio 1993)

Abstract: An X Ray analysis on the PbBi system from pure Pb to Pb 30 at. % Bi yields both phase and lattice constant. T_c and Hall constant were also measured. The samples were thin films.

Subject headings: helium, phonons, Bose-Einstein condensation.

Resumen: Se presenta un estudio estructural mediante rayos X de la aleación PbBi desde Pb puro hasta Pb 30 at. % Bi lo que brinda la fase y el parámetro de red. También se determinó la temperatura de transición a superconductividad de estas aleaciones y se midió el efecto Hall en películas delgadas.

Encabezados de materia: helio, fonones, condensación de Bose-Einstein.

1. Introducción

Algunos trabajos anteriores de los autores[1,2] en los sistemas PbTl, PbBi y PbIn les condujeron al presente estudio. Aunque el sistema presenta solubilidad a todas las diferentes concentraciones, nos limitamos a la región desde el Pb puro hasta Pb 30 at. % Bi, porque a concentraciones mayores se presenta la fase del Bi puro[3]. Tanto Sáenz y Rapp[2] como Takano y Sato[4] estudiaron previamente este sistema pero en láminas forjadas en frío o en muestras masivas. Nuestro estudio es en películas delgadas evaporadas e incluye el análisis estructural por rayos X, que no fue realizado en los trabajos citados. Tanto Sáenz y Rapp[2] como Chapnik[5] han considerado la posible relación entre el coeficiente de Hall, R_h , y la temperatura de transición a superconductividad, T_c , lo que también fue motivación para realizar este trabajo ya que no se ha llegado a conclusiones definitivas a ese respecto.

2. Procedimiento Experimental

Las películas delgadas se prepararon por evaporación rápida, del orden de $60\text{\AA}/\text{seg}$, en vacío del orden de 2×10^{-6} Torr mediante un haz de electrones, a partir de aleaciones de PbBi previamente preparadas a las concentraciones deseadas. Los materiales iniciales fueron Pb 99,999% puro y Bi 99,99% puro. Como sustratos se emplearon láminas de vidrio a temperatura ambiente, limpiadas con detergente en agua y vibraciones ultrasónicas, luego sumergiéndolas en mezcla sulfocrómica y finalmente con agua destilada. Previamente se depositaron electrodos de cobre tanto para alimentar la corriente como para realizar las mediciones eléctricas. El espesor de las películas se determinó mediante un oscilador comercial de cuarzo, con errores del 0.1% en el ámbito empleado. Sus dimensiones superficiales típicas fueron $19,77 \times 0,94 \text{ mm}^2$, medidos con un microscopio viajero acondicionado con su escala, con errores de $0,002\text{mm}$.

Los voltajes de Hall se midieron con un voltímetro empleando contactos de Hall del mismo material y espesor que la muestra para minimizar los voltajes no deseados[6], estas medidas se realizaron a temperatura ambiente. Para varias muestras no fue posible medir R_h , como se observa en la tabla, debido a lo pequeño de su valor. Los voltajes de Hall son lineales con respecto al campo magnético hasta 0.8T para estas muestras y ese fue el valor del campo magnético empleado para determinar los valores de R_h reportados. Cada dato representa un promedio de varias medidas hechas en la misma película.

La temperatura de transición a superconductividad se determinó observando el cambio en la inductancia de una pequeña bobina colocada en contacto térmico con la muestra mientras se variaba la temperatura en un crióstato de helio líquido. La temperatura se determinó utilizando un diodo calibrado.

La tabla I muestra los datos de espesor, composición, coeficiente de Hall y temperatura de transición a superconductividad. Los errores son menores del 5%

para los datos de Hall, la incertidumbre en la concentración es del orden de 0.1% y en la temperatura de 0.05K.

Para el estudio por rayos X se emplearon muestras en forma de película delgada, cuya preparación se explicó anteriormente, colocadas en el difractómetro θ - 2θ Diffract 5000 de Siemens. Se varió el ángulo desde 28° hasta 68° . Los datos los procesa la computadora del difractómetro y se comparan contra las líneas de elementos y aleaciones almacenadas en el banco de memoria de la máquina[7]. Esto permite, además, obtener las distancias interplanares de manera inmediata.

3. Resultados

R Hall vrs. Concentracion

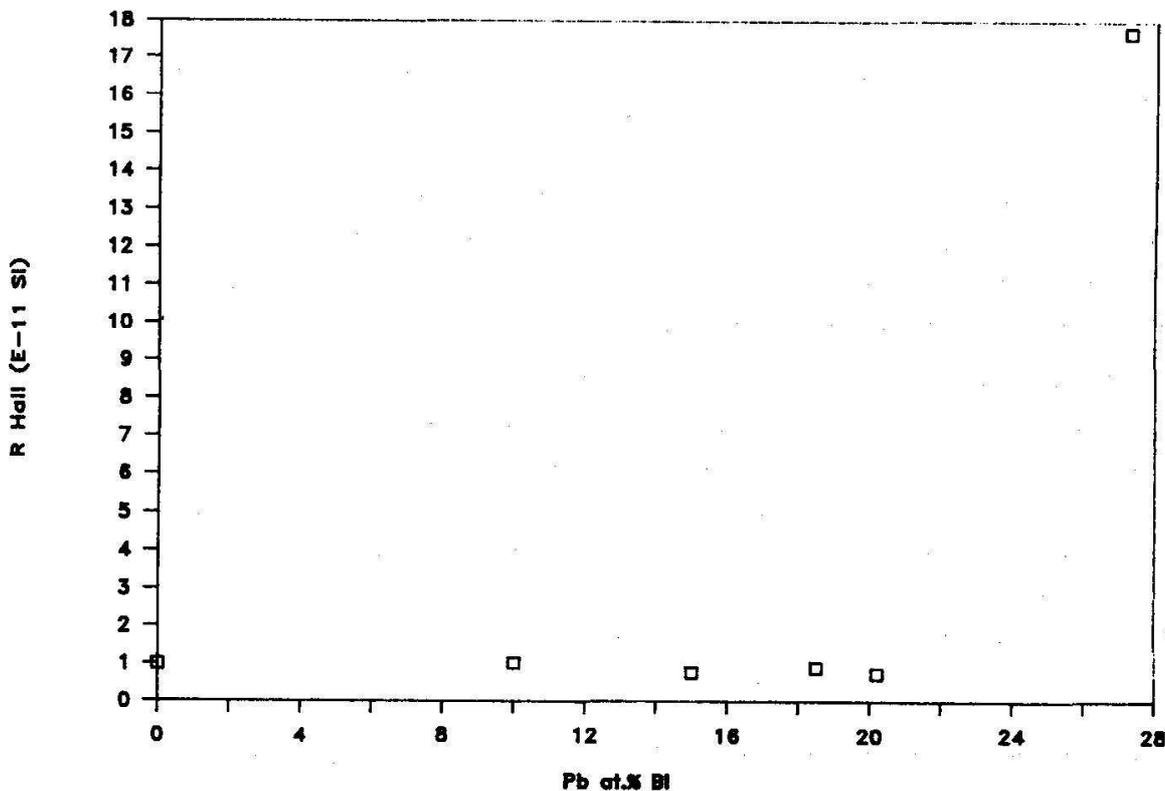


Figura. 1: Coeficiente de Hall como función de la concentración para el sistema PbBi en película delgada medidos a temperatura ambiente.

La fig. 1 muestra la variación de R_h con la concentración, la cual es muy pequeña para aleaciones con menos de 18 at.% Bi y presenta un cambio notable para Pb 27.3 at.% Bi, que pertenece a la fase ϵ según Hansen[3]. Los datos de menos de 18 at.% Bi muestran variaciones de hasta el 23 % (ver tabla I) pero distribuidas sin orden a lo largo del eje de la concentración.

La fig. 2 muestra la variación de T_c con la concentración, se nota igualmente una variación sumamente pequeña para concentraciones menores a 18 at.% Bi, pero las

Tc vrs. Concentracion

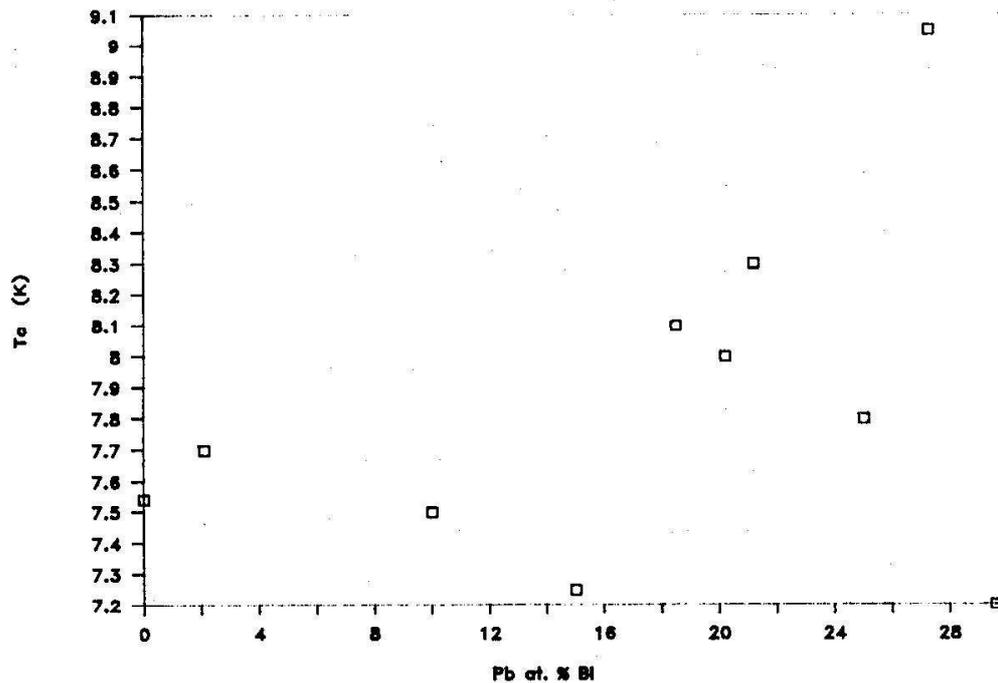


Figura. 2: temperatura de Transición a superconductividad como función de la concentración para el sistema PbBi en película delgada. La fig. 3 presenta los datos de Tc comparados con Rh. Las variaciones pequeñas de ambos parámetros no permiten aventurar conclusiones para concentraciones menores al 18 at.% Bi pero sí muestra la elevación notable de ambos parámetros en la fase ϵ .

Al comparar con trabajos anteriores en láminas trabajadas en frío o en muestras masivas[2,4] se observa que el comportamiento de las películas delgadas estudiadas es muy semejante en cuanto a fenómenos de transporte se refiere. Se esperarían cambios en los valores de Rh, Tc y otros fenómenos de transporte dependientes del camino libre medio, cuando el espesor sea semejante al camino libre medio pues entonces la dispersión en las superficies cobraría mayor importancia entre los factores de dispersión, pero en el caso de este sistema de aleaciones los caminos libres medios son muy cortos, del orden de $10^{-9}m$. Los datos obtenidos no nos permiten apoyar a Sáenz y Rapp[2] ni a Chapnik[5].

muestras en la fase ϵ brindan valores de Tc mayores, una de ellas notablemente mayor que la del Pb puro.

En la fig.1 se nota que los valores de Rh son poco sensibles al cambio en concentración, lo que coincide con Sáenz y Rapp[2] y con Takano y Sato[4]. El valor alto de 27.3 at.% Bi es un dato aislado, y aunque no permite hacer aseveraciones, podría indicar la influencia del cambio de fase en la constante de Hall.

La fig. 2 sugiere una frontera de fase alrededor del Pb 18at.%Bi y para concentraciones mayores los valores de Tc varían mucho. El estudio con rayos X demuestra la coexistencia de al menos dos fases en la región entre 18 y 30at.%Bi, mientras que del diagrama de fases de Hansen[3] parece no haber homogeneidad en ese ámbito. Esto es una posible explicación a la variabilidad de los valores de Tc en este ámbito.

El estudio con rayos X se inició fundamentalmente para conocer el cambio en composición de las películas delgadas respecto al lingote usado. Para ello se analizó material del lingote y de la película obteniéndose excelente concordancia de los patrones. Como se ve en la Fig. 4, la variación con la concentración se nota aún para bajos porcentaje de ésta. Además, los diagramas de fase[3], muestran cambios coincidentes con las concentraciones preparadas para este trabajo. La fig. 4 se seleccionó entre los datos de los rayos X, aunque el análisis incluyó todas las muestras estudiadas. Se concluye que nuestra manera de preparar las muestras brinda películas policristalinas pero con orientación preferida. Esto se concluye al analizar la intensidad relativa de los picos. Observese el caso de Pb 27.3 at.% Bi: El pico máximo corresponde a $2\theta = 29.457$ con $d = 3.0297$ Å mientras el patrón da 3.0354 Å para la dirección (100). El segundo pico en intensidad corresponde a la dirección (002) con $d = 2.899$ Å pero con solo el 12% de intensidad relativa. Luego concluimos que en esta fase de estructura hexagonal el eje (100) es normal a la superficie con los planos ac paralelos a la superficie -en la terminología acostumbrada para estructuras hexagonales, la dirección (0001) es paralela a la superficie- y esto es cierto para las otras aleaciones en la fase.

Para aleaciones con menos de 18 at.% Bi un análisis semejante muestra que la orientación preferida es con el eje (111) paralelo a la superficie.

También se nota en la fig. 4, al observar el pico a 64.2° que corresponde a 1.447 Å en tanto que la tabla[7] da 1.449 Å para el Pb_7Bi_3 , que hay un corrimiento menor a 2/1400. Esto claramente indica que la fase es pura, no contiene fase plomo, la que si aparece para 21 at.% Bi y más aún para 18 at.% Bi como se nota en el pico cercano a 65° .

5. Agradecimientos

Expresamos nuestro agradecimiento al Lic. D. Chaverri por su valiosa ayuda con el gráfico de rayos X.

6. Referencias

- [1] A. Sáenz y O. Rapp 1988, *Rev. Mexicana de Física* **34** 2 168
- [2] A. Hansen, 1958 *Constitution of Binary Alloys* Mc Graw Hill, N. York
- [3] A. Sáenz, 1988 *Rev. Mexicana de Física* **34** , 1 85
- [4] I. M. Chapnik, 1979 *Phys. Lett. A* **72** 255
- [5] JCPDS-ICDD, 1990 *Diffract 5000* Siemens.
- [6] K. Takano y T. Sato, 1965 *J. Phys. Soc. Japan* **20** 2013
- [7] N. Clark y A. Sáenz 1990, *Rev. Mexicana de Física* **32** 4 591

Tabla 1. Datos obtenidos para el sistema de aleaciones Pb-Bi evaporadas como películas delgadas.

<i>P</i> bat.%Bi	Espesor(nm)	$R_H(10^{-11}m^3/AS)$	$T_c(K)$
0.0	164	0.98	7.54
2.1	108		7.7
10.0	100	1.0	7.5
15.0	101	0.77	7.25
18.5	136	0.9	8.1
20.2	100	0.75	8.0
21.2	136		8.3
25.0			7.8
27.3	118	17.7	9.05
29.6			7.2

