

EFECTO HALL EN LA SUPERFICIE DE UN CRISTAL MOLECULAR: EL HIELO

HALL EFFECT ON THE SURFACE OF A MOLECULAR CRISTAL: THE ICE

María Lila Asar, Lucía Arena y Giorgio Caranti²

Laboratorio de Física de la Atmósfera "Dra. Laura Levi" - Facultad de Matemática, Astronomía y Física - Universidad Nacional de Córdoba - Haya de la Torre s/n - (5000) - Córdoba - Argentina

²CONICET, Córdoba, Argentina.

e-mail: arena@famaf.unc.edu.ar

El conocimiento actual del hielo lo muestra como un conductor protónico. Esto significa que los portadores son protones pero en primera instancia asociados a defectos. Es decir, no son protones libres en el sentido de un conductor electrónico.

En este trabajo se exponen mediciones realizadas en la superficie del hielo tanto mono como policristalino. La técnica usada es de corriente alterna para evitar cargas de polarización electrodiódica. Los resultados muestran una movilidad Hall del orden de 10^{-5} (m^2/Vs). Al aumentar la temperatura, se observa claramente que, a cierta temperatura ($\sim -8^\circ C$), existe un cambio de pendiente (energía de activación) que podría indicar el comienzo de la capa desordenada (mal llamada capa cuasiliquida) en la superficie con el consiguiente aumento de movilidad. Se hicieron tratamientos a la superficie tanto térmicos como mecánicos y se hacen hipótesis sobre su influencia en la movilidad Hall.

Palabras Claves: hielo, Efecto Hall, conductividad eléctrica, superficies.

What we know about ice, shows it as a protonic conductor. This means that those that carry are protons, but, in first instance, associated to defects. This is, they are not free protons in an electronic conductor sense.

On this work are expound meditions made on the surface of the ice mono as well as polycrystalline. The technique used is of alternating current to avoid charges of electrodiódic polarization. The results shows a Hall mobility of the order of the 10^{-5} (m^2/Vs). As the temperature increase, we already observe that on determinated temperature ($\sim -8^\circ C$), there is a change of slope (energy of activation) that could indicate the beginning of a mess sheet (wrong called: cuasiliquid sheet) on the surface, with the following increase of mobility. Were made treatments to the surface on thermal as well on mechanical, and are formulated hypotesis about its influence on the Hall mobility.

Key word: ice, Hall effect, electrical conductivity, surfaces.

I. INTRODUCCIÓN

La superficie libre de un sólido puede considerarse como el final de una zona de transición que comienza en el sólido ordenado. Esa zona de transición o superficie es una región con cierto grado de desorden, cuyo espesor es función de la temperatura entre otras variables. Por esta razón, presenta propiedades diferentes a las del volumen. Las propiedades superficiales son críticamente dependientes de la pureza, la deformación mecánica y el tratamiento térmico recibido.

La superficie del hielo interviene en muchos de los procesos microfísicos de la atmósfera. Una de las propiedades significativas del hielo es que es un conductor protónico. A través de las propiedades eléctricas superficiales, como la conductividad o la movilidad Hall, es posible determinar una cota superior para la concentración y la movilidad de los portadores de carga en la superficie del hielo.

La conductividad eléctrica se puede expresar en términos microscópicos como:

$$\sigma_s = (\mu^+ n^+ z^+ + \mu^- n^- z^-) e_0 \quad (1)$$

donde μ^+ es la movilidad de los iones positivos, μ^- es la movilidad de los iones negativos, n^+ , n^- son las concentraciones de los iones positivos y negativos

respectivamente, e_0 es la carga protónica, y z es la valencia de los iones (z^+ o z^-).

La movilidad de los portadores, μ , se define como

$$\mu = \frac{|v_D|}{|E|} \quad (2)$$

donde v_D es la velocidad de deriva de los portadores de carga, y E es el campo eléctrico aplicado.

Por lo tanto, para desacoplar las variables que intervienen en la conductividad, es necesario llevar a cabo experimentos complementarios que permitan determinar alguno de estos parámetros. Uno de estos es el Efecto Hall. (Ver figura 1)

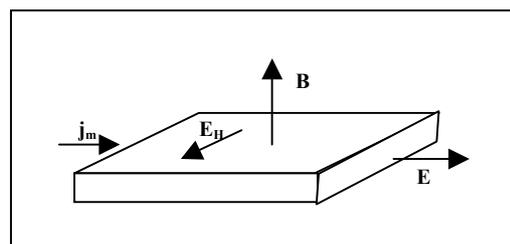


Figura 1. Esquema del experimento de Hall.

Al aplicar un campo eléctrico E y un campo magnético B perpendiculares, los portadores de carga q moviéndose a velocidad v se ven sujetos a la fuerza de Lorentz:

$$\vec{F} = q\vec{v} \times \vec{B} \quad (3)$$

y en su desplazamiento se desvían en una dirección perpendicular a ambos campos. El resultado de esta desviación de trayectoria es la aparición de un campo eléctrico E_H dado por:

$$E_H = \mu_H \cdot B \cdot E_{ap} \quad (4)$$

Si d es la distancia entre los electrodos usados para medir el efecto Hall entonces la diferencia de potencial será:

$$V_H = E_H d \quad (5)$$

Si bien, el efecto Hall en el volumen del hielo es muy poco probable^(1,2), ha sido observado en la superficie del mismo en 1987⁽³⁾.

En el presente trabajo se realizan mediciones de movilidad Hall y de conductividad eléctrica superficiales en hielo puro tanto monocristalino como policristalino con diferentes tratamientos termomecánicos superficiales.

II. MÉTODOS EXPERIMENTALES

Para el dispositivo Hall diseñado, se optó por un método de corriente alterna, ya que muchos de los problemas relacionados con el efecto Hall en corriente continua pueden ser resueltos utilizando este método. Entre estos problemas se puede mencionar la formación de cargas de polarización y potenciales de contacto, variables tanto en el tiempo como en temperatura. Estos efectos espurios pueden ser explicados a partir de la diferente clase de conducción que tienen el hielo (protónica) y los electrodos (electrónica). En el equipo Hall diseñado en el Grupo de Física de la Atmósfera de la Facultad de Matemática, Astronomía y Física de la Universidad Nacional de Córdoba, tanto el campo magnético como la corriente de manejo son alternos de frecuencias diferentes.

El dispositivo de medición consta de las siguientes partes: un electroimán de corriente alterna a 380V, entre cuyos polos, se ubica un receptáculo para un baño térmico dentro del cual se coloca el portamuestras de cuatro electrodos. Un generador de ondas provee el voltaje necesario (80V_{pp}) para producir la corriente de manejo que se aplica a través de dos de los electrodos en contacto con la muestra de hielo. Mediante un amplificador lock-in se mide la caída de potencial sobre una resistencia de valor conocido que está en serie con el hielo, obteniéndose la corriente que circula por la muestra. Los otros dos electrodos toman el voltaje Hall el cual se amplifica y se filtra antes de ser suministrado a un amplificador lock-in.

Llamando $\omega_1 = 314 \text{ seg}^{-1}$ a la frecuencia del campo magnético B (frecuencia de línea, 50Hz) y $\omega_2 = 672 \text{ seg}^{-1}$ a la de manejo (107Hz), se tiene

$$B = B_o \text{sen}(\omega_1 t) \quad (6)$$

y

$$v = \mu E = \mu E_o \text{sen}(\omega_2 t) \quad (7)$$

entonces el campo Hall estará dado por:

$$E_H = \frac{1}{2} \mu E_o B_o [\cos(\omega_1 - \omega_2)t - \cos(\omega_1 + \omega_2)t] \quad (8)$$

donde ya se explicita el resultado como la superposición de funciones trigonométricas con la suma y resta de las frecuencias.

Esto favorece el proceso de medición, ya que se puede seleccionar una de estas frecuencias y, puesto que las señales espúreas aparecen a frecuencias bien diferenciadas, se facilita su reducción.

El hecho de utilizar campos alternos en el experimento es muy conveniente para evitar los problemas ya descritos, pero se tomó la precaución de trabajar a una frecuencia que estuviera por debajo de los 15kHz, valor aceptado típicamente como la frecuencia de dispersión dieléctrica del hielo⁽⁴⁾.

En este trabajo se utilizaron policristales y monocristales de hielo puro (concentración de impurezas menor que 0.04 ppm). Para obtener cristales con baja densidad de defectos, se desarrolló una técnica especial, denominada "Chimenea Central", que es una mejora sobre un método desarrollado anteriormente⁽⁵⁾, dando cristales de diámetro mayor (del orden de 2 cm) y en un tiempo relativamente corto, del orden de 20 hs.

III. RESULTADOS EXPERIMENTALES

Los experimentos realizados se hicieron en hielo puro, haciendo barridos en temperatura entre $-3 \text{ }^\circ\text{C}$ a $-15 \text{ }^\circ\text{C}$ y variando diversas condiciones: textura (hielo poli y monocristalino), y tratamiento superficial (recocido isotérmico, tratamiento mecánico). Se utilizaron monocristales basales y dos tipos de policristales: de diámetro medio de grano de $100\mu\text{m}$ a 1mm (llamado *grano pequeño*), y 10mm (llamado *grano grande*).

Se midieron tres tipos de superficie: normal, recocida y mecanizada. La superficie denominada *normal* es una superficie que sólo ha sido rectificadas mediante una leve fusión, para presentar a los electrodos una superficie plana. El recocido isotérmico se realizó a 0°C , durante una hora. Por último, el tratamiento mecánico consistió en un raspado, realizado mediante una cuchilla preparada especialmente.

Efecto de la textura

En el gráfico de Arrhenius de la figura 2, se muestran los resultados obtenidos para la movilidad Hall, deducida de (4), en muestras mono y policristalinas, de las llamadas *normales*.

La curva superior, correspondiente a un policristal de granos pequeños, muestra valores de movilidad 400% mayores que los del monocristal y del policristal de granos grandes. También puede observarse que los valores obtenidos para monocristal y policristal de grano grande son del mismo orden de magnitud, especialmente para temperaturas menores que $-10 \text{ }^\circ\text{C}$.

En la figura 3 se muestran en un gráfico de Arrhenius, los resultados obtenidos para la conductividad eléctrica superficial en las mismas muestras. Se encuentra una mayor conductividad en el policristal de grano grande y monocristal, que cuando los granos de diferente orientación cristalina son pequeños, del orden del 200%.

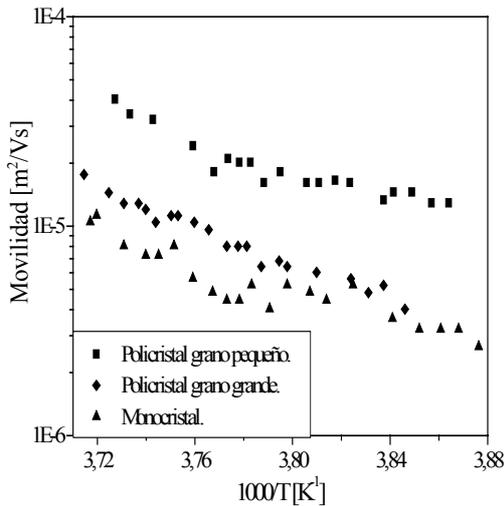


Figura 2. Gráfico de Arrhenius para las movilidades de muestras de hielo de alta pureza (concentración de impurezas menor que 10^{-6} M) para muestras mono y policristalinas.

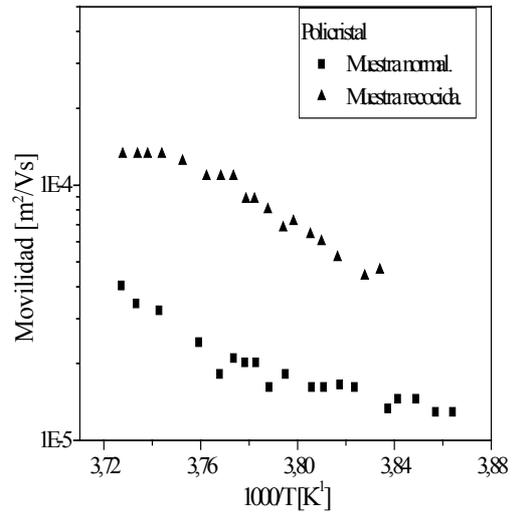


Figura 4. Gráfico de Arrhenius para las movilidades Hall de muestras de hielo de alta pureza, policristalinas, recocidas y sin recocer.

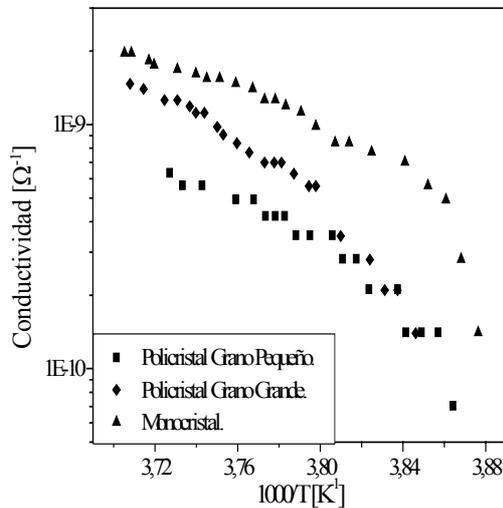


Figura 3. Gráfico de Arrhenius para las conductividades superficiales de muestras de hielo de alta pureza (concentración de impurezas menor que 10^{-6} M) para muestras mono y policristalinas.

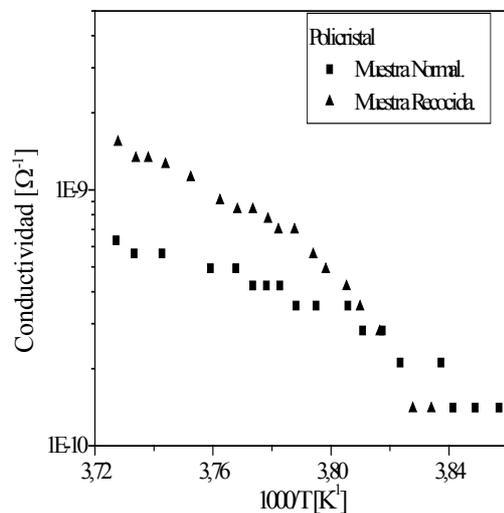


Figura 5. Gráfico de Arrhenius para las conductividades eléctricas superficiales de muestras de hielo de alta pureza, policristalinas, recocidas y sin recocer.

Efecto del recocido isotérmico

En la figura 4 se muestra un gráfico de Arrhenius para las movilidades obtenidas en muestras policristalinas en diferentes condiciones: las llamadas normales y las recocidas a 0°C .

Se observa que la movilidad es aproximadamente un orden de magnitud mayor en el policristal recocido que en el normal.

En el gráfico de Arrhenius de la figura 5, se comparan las conductividades eléctricas superficiales obtenidas para esta muestra. Se observa que la conductividad resulta aproximadamente un 200% mayor en el policristal recocido que en el normal.

Efecto del tratamiento mecánico

En el gráfico de Arrhenius de la figura 6, se puede observar el efecto que produce el raspado de la superficie de las muestras sobre la movilidad Hall. Puesto que la deformación mecánica se realizó luego del recocido isotérmico, las comparaciones se harán con estos valores.

Se observa que, como en los casos anteriores, la movilidad Hall muestra un comportamiento compatible con el de un proceso térmicamente activado. Sin embargo, los valores de movilidad de la muestra que ha sido deformada mecánicamente resultan notablemente menores que los de la muestra recocida isotérmicamente, entre un 700% y un orden de magnitud.

En el gráfico de Arrhenius de la figura 7, se puede observar el efecto del raspado en la superficie de las muestras, sobre la conductividad eléctrica superficial.

Como ocurre con la movilidad Hall, se observa que la conductividad eléctrica superficial tiene un comportamiento que se condice con un proceso activado térmicamente. Se observa que la deformación mecánica de la superficie disminuye la conductividad eléctrica superficial de un 100% a un 300%, con respecto a la muestra recocida isotérmicamente

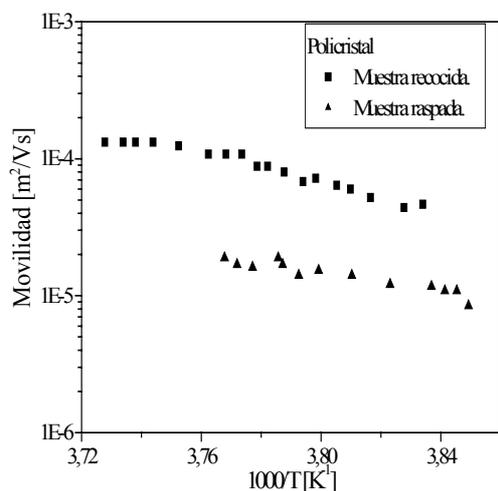


Figura 6. Gráfico de Arrhenius para las movilidades Hall de muestras de hielo de alta pureza, policristalinas, recocidas y tratadas mecánicamente.

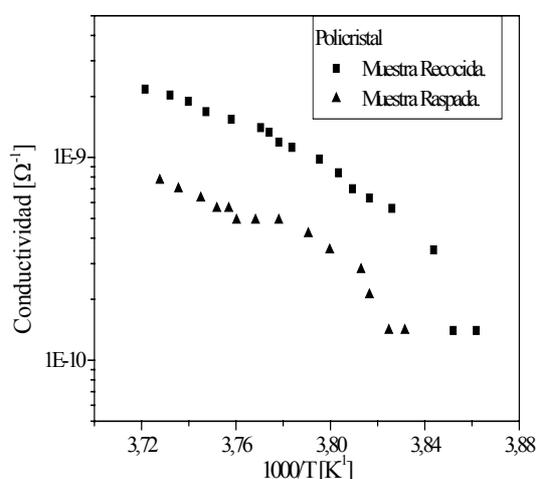


Figura 7. Gráfico de Arrhenius para las conductividades eléctricas superficiales de muestras de hielo de alta pureza, policristalinas, recocidas y tratadas mecánicamente.

IV. DISCUSIÓN

El efecto del recocido isotérmico, que permite la migración de defectos, fue aumentar los valores de movilidad Hall y conductividad eléctrica superficial.

Cuando se realizaron experimentos con superficies tratadas mecánicamente, en todos los casos se encontró que tanto las movilidades Hall como las conductividades eléctricas superficiales disminuían en sus valores al efectuar un raspado superficial, con respecto a la misma muestra recocida, tendiendo al estado inicial o *normal*. El efecto de disminución de la conductividad superficial luego del raspado fue advertido anteriormente^(6,7). Además, debe tenerse en cuenta que este trabajado mecánico aumenta la superficie real de la muestra, lo cual induciría a pensar que la corriente debería aumentar y al ocurrir lo opuesto, se debe entender que hay una disminución de la conductividad, más aún teniendo en cuenta que las muestras fueron raspadas en la dirección del campo eléctrico.

V. CONCLUSIONES

Se confirma la existencia del efecto Hall en la superficie del hielo, obteniéndose para la movilidad

valores típicos de 10^{-4} a 10^{-5} m^2/Vs .

Estos valores son varios órdenes de magnitud mayores que los obtenidos para la movilidad en el volumen, que es del orden de 10^{-8} m^2/Vs .^(8,9,10) Este resultado, e incluso la misma existencia del efecto Hall, refuerza la hipótesis de una estructura superficial muy distinta a la del volumen.

Se observa que, si hubiera más de un tipo de portador involucrado en la conducción, hay uno que es dominante en el rango de temperaturas analizado. Con la utilización del efecto Hall únicamente, no se puede determinar cuál es la concentración de este portador mayoritario. Para levantar esta indeterminación, se necesitan experimentos complementarios que midan la movilidad de conducción o el número de portadores de manera independiente al efecto Hall.

En las figuras 2 y 4 se observa la presencia de dos pendientes diferentes (energías de activación) en las curvas obtenidas para la movilidad Hall, sugiriendo la presencia de dos mecanismos activados térmicamente. A temperaturas mayores que $-8^{\circ}C$, las curvas aumentan las pendientes. Esto se podría asociar al aumento de desorden en la capa superficial, como se evidencia a través de la literatura⁽¹¹⁾.

En las figuras 2 y 3 se observa una importante dependencia de los valores de movilidad Hall y de conductividad eléctrica superficial con la textura. En particular, la movilidad Hall aumenta con la cantidad de interfaces que afloran a la superficie libre, mientras que en la conductividad se ve el efecto inverso.

Referencias

- 1 - Sokoloff, J. B. (1973). Absence of Hall effect in ice crystals. *Physical Review Letters*, **31**, 90-2.
- 2 - Gosar, P. (1974) Note on the Hall effect in ice. *Physics of Condensed Matter*, **17**, 183-7.
- 3 - Caranti, J. M. and Lamfri, M. A. (1987) Hall effect on the surface of ice. *Physics Letters*, **A126**, 47-51.
- 4 - Hobbs, P. (1974). *Ice physics*, Clarendon Press, Oxford.
- 5 - Arena, L. E. and Nasello, O. (1993) Técnicas de crecimiento de monocristales de hielo de alta calidad. *Anales de la AFA*, **5**, 367-71.
- 6 - Maeno, N. and Nishimura, H. (1978). The electrical properties of ice surface. *Journal of Glaciology*, **21 (85)**, 193-205.
- 7 - Caranti, J. M. and Illinworth, A. J. (1983) Frequency dependence of the surface conductivity of ice. *Journal of Physical Chemistry*, **87**, 4078-83.
- 8 - Jaccard, C. (1959). Étude théorique et expérimentale des propriétés électriques de la glace. *Helv. Phys. Acta.*, **32**, 89-128.
- 9 - Camplin, G., Glen, J. and Paren, J. (1978). Theoretical models for interpreting the dielectric behaviour of HF-doped ice. *Journal of Glaciology*, **21**, 123-41.
- 10 - Zaretskii, A., Petrenko, V., Ryzhkin, I., and Trukhanov, A. (1987a). Theoretical and experimental study of ice in the presence of a space charge. *Journal de Physique*, **48**, Colloque C1, 93-8.
- 11 - Petrenko, V., and Whitworth, R. W. (1999) *Physics of ice*, Oxford University Press.