

# Medición del espectro de resonancias mecánicas de materiales cuánticos a partir de Espectroscopía de Resonancia Ultrasónica

Juan Felipe Rodríguez Herrera

Monografía de grado para optar al título de:  
**Pregrado en Física**

Dirigido por: Paula Giraldo Gallo



Universidad de los Andes  
Departamento de Física  
Grupo de Materiales Cuánticos  
Bogotá, Colombia  
Diciembre de 2021

# Resumen

Las frecuencias de resonancia mecánicas de una muestra monocristalina dependen directamente de su geometría y su tensor de constantes elásticas. Por medio del método de Espectroscopía de Resonancia Ultrasónica (RUS) se pueden determinar dichas frecuencias y, en consecuencia, las constantes elásticas de una muestra. Con la caracterización del comportamiento elástico cerca de una transición de fase se puede obtener información acerca de su orden y del comportamiento de la energía libre. En este trabajo se describe el proceso de construcción e implementación de un montaje experimental para realizar mediciones de RUS en la Universidad de los Andes, con el objetivo de obtener las frecuencias de resonancia de tetracalcogenuros de metales de transición.

# Índice general

<b>1. Introducción</b>	<b>3</b>
<b>2. Marco teórico</b>	<b>5</b>
2.1. Elasticidad . . . . .	5
2.2. Espectroscopía de resonancia ultrasónica . . . . .	7
2.2.1. Parte experimental . . . . .	7
2.2.2. Parte computacional . . . . .	8
<b>3. Montaje</b>	<b>11</b>
3.1. Diseño de una caña para RUS . . . . .	11
3.2. Construcción de la caña en MACOR <sup>®</sup> . . . . .	12
3.3. Reparación de la caña en G-10 . . . . .	15
3.4. Sistema de adquisición de datos . . . . .	16
<b>4. Obtención de las frecuencias de resonancia</b>	<b>18</b>
4.1. Preparación de la muestra . . . . .	18
4.2. Buscar resonancias . . . . .	19
4.3. Identificar resonancias . . . . .	20
<b>5. Resultados</b>	<b>24</b>
5.1. Datos tomados con la caña en G-10 . . . . .	24
5.1.1. Silicio . . . . .	24
5.1.2. TaTe4 . . . . .	26
5.2. Datos tomados con la caña en MACOR <sup>®</sup> . . . . .	27
5.2.1. Correcciones a la caña en MACOR <sup>®</sup> . . . . .	30
<b>6. Conclusiones</b>	<b>32</b>
6.1. Trabajo futuro . . . . .	32
<b>Bibliografía</b>	<b>35</b>

# Capítulo 1

## Introducción

Cuando un sólido se estudia como un sistema con condiciones de frontera libres, se observa que este posee modos normales de vibración en los cuales se descompone cualquier excitación armónica del sólido. Cada uno de estos modos está asociado a una frecuencia de vibración, la cual depende directamente de la geometría, la densidad y el tensor de constantes elásticas del sólido, y se manifiesta como frecuencias de resonancia del sólido. Si este se excita a una de estas frecuencias, la amplitud de las vibraciones se ve amplificada. En este principio se basa el método experimental de espectroscopía de resonancia ultrasónica (RUS por sus siglas en inglés). En este método, se inducen excitaciones mecánicas en una muestra cristalina a distintas frecuencias y se mide la amplitud de dichas excitaciones. Las frecuencias a las cuales se presentan picos en la amplitud corresponden con las frecuencias de resonancia.[1, 2, 3, 4] Cuando se hacen medidas en un barrido de frecuencias y se encuentra varios picos de resonancia se obtiene el espectro de frecuencias de resonancia de la muestra.

El interés en encontrar estos espectros de frecuencia de resonancia reside en que la relación entre el espectro y las constantes elásticas es directa y uno a uno. Es decir, a partir de un tensor de constantes elásticas se genera un único espectro de frecuencias de resonancia. Lo contrario también es cierto, un espectro de frecuencias de resonancia solo puede corresponder a un único tensor de constantes elásticas. En otras palabras, con una única medición de RUS se puede obtener el tensor completo de constantes elásticas, sin la necesidad de ubicar la muestra en distintas posiciones. Contrario a otros métodos similares como pulse-echo ultrasound, donde se debe medir la velocidad del sonido en el material en distintas direcciones para calcular las constantes elásticas en cada dirección medida.[2] Esto hace que RUS sea el método ideal para implementar cuando se tiene como objetivo estudiar la evolución de las constantes elásticas bajo distintos procesos termodinámicos, como por ejemplo cambios de fase.[1, 4] Es más, la relación entre el espectro de resonancia y las constantes elásticas es tan estrecho que estudiar la evolución de las frecuencias de resonancia es suficiente para sacar conclusiones parciales sobre la física involucrada en el proceso, sin la necesidad de calcular explícitamente las constantes elásticas. [5] Es decir, con conocer el espectro de resonancia a distintas temperaturas al rededor de una transición de fase, se puede tener información como su orden y simetría.

Uno de los usos más notables de la espectroscopía de resonancia ultrasónica en la física del estado sólido, es en el estudio de las transiciones de fase de materiales cuánticos. En vista de que las constantes elásticas se pueden definir termodinámicamente como la segunda derivada de la energía libre respecto a la deformación, estas van a depender directamente de la forma de la energía libre. Esta forma cambia en una transición de fase, por lo que se van a encontrar perturbaciones en el tensor elástico en una transición. Incluso, RUS es un método robusto que permite sacar algunas conclusiones de lo que sucede al tensor elástico únicamente a partir de las frecuencias de resonancia, sin la necesidad

de calcular las constantes elásticas.

Por ejemplo, el 2013, por medio de la medición del espectro de resonancias del cuprato superconductor  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ , fue posible identificar que la región de pseudo-gap en el diagrama de fase corresponde a una fase electrónica y no a un régimen de transición de propiedades electrónicas [6]. Como se observa en la Figura 1.1, una anomalía en el comportamiento de la frecuencia de resonancia fue suficiente para sacar dicha conclusión.

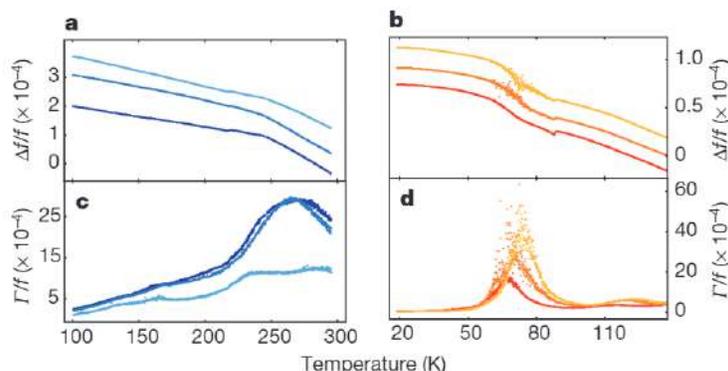


Figura 1.1: **a** y **b** muestran la dependencia con la temperatura de una frecuencia de resonancia para distintos dopajes de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ . Se observa una discontinuidad en la pendiente que revela la presencia de una transición de fase. [6]

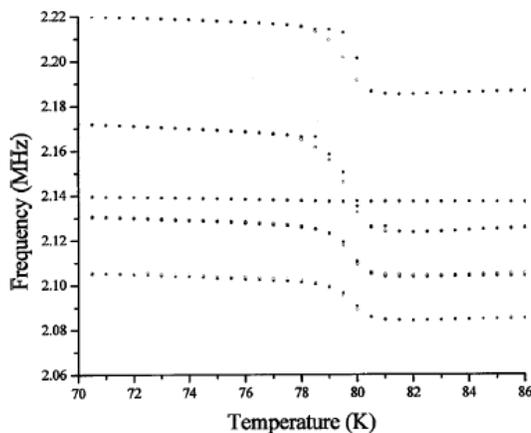


Figura 1.2: Frecuencias de resonancia de un cristal de  $\text{Lu}_5\text{Ir}_4\text{Si}_{10}$  a distintas temperaturas. Cerca de la transición de fase (80K) se observa un incremento con histéresis de algunas de las frecuencias, que permite concluir que esta corresponde a una transición de primer orden. [5]

También es, por ejemplo, el caso del estudio realizado el 2002 con RUS en el sistema  $\text{Lu}_5\text{Ir}_4\text{Si}_{10}$ . Este material presenta una transición de fase a onda densidad de carga (CDW) a 80 K, en la cual se observa una discontinuidad en el comportamiento de las frecuencias de resonancia. En la Figura 1.2, se observa que hay un incremento con histéresis en algunas de las frecuencias. Dicho comportamiento con histéresis sugiere que dicha transición de fase CDW es una de primer orden [5], nuevamente una conclusión obtenida sin el cálculo directo de las constantes elásticas.

En este documento se presenta el proceso de implementación del método de espectroscopía de resonancia ultrasónica en la Universidad de los Andes, con el cual se esperan medir espectros de resonancia en materiales cuánticos a distintas temperaturas.

# Capítulo 2

## Marco teórico

### 2.1. Elasticidad

La elasticidad es un fenómeno lineal cuya descripción más general proviene de la teoría de medios continuos. Un medio continuo es una forma de aproximar objetos (líquidos, sólidos o gases) que ignora su naturaleza molecular o atómica y, en cambio, asume que todos los puntos dentro del objeto poseen, de forma homogénea, las propiedades de la sustancia de la que se compone el objeto. Esto permite definir una región continua del espacio,  $\kappa_0$ , en la cual se encuentra dicho objeto y describe su geometría. Ahora bien, el objeto se puede desplazar, rotar o deformar cuando se le aplican fuerzas, lo cual genera una transformación de  $\kappa_0$  a una nueva configuración  $\kappa$ . Así, se puede describir cualquier transformación como la diferencia entre las posiciones de ambas configuraciones, la cual se conoce como el campo de desplazamientos ( $u = \kappa - \kappa_0$ ). En el régimen de desplazamientos pequeños, se define el tensor de deformaciones infinitesimales como  $\varepsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right)$  con los índices  $i$  y  $j$  correspondiendo a los ejes del espacio cartesiano ( $1 \rightarrow x, 2 \rightarrow y, 3 \rightarrow z$ ). Es importante destacar que las deformaciones forman un tensor simétrico ( $\varepsilon_{ij} = \varepsilon_{ji}$ ). [7]

Una forma sencilla de entender esta notación es considerando que el primer índice,  $i$ , denota la dimensión o dirección del objeto que se está deformando, y el segundo índice,  $j$ , denota la dirección en la cuál ocurre dicha deformación. Por ejemplo, una deformación  $\varepsilon_{11}$  corresponde a una deformación normal, donde la longitud del objeto en la dirección cartesiana  $x$  se estira o contrae. En cambio, una deformación  $\varepsilon_{12}$ , corresponde a una deformación cortante, donde las caras del objeto paralelas a la dirección cartesiana  $x$  se desvían en la dirección  $y$ , formando un ángulo con  $x$  que antes de la deformación era nulo. Además, para describir la respuesta a la deformación, se define un tensor de esfuerzos  $\sigma_{ij}$ , con el que se puede calcular la componente de la fuerza que genera un material en una superficie infinitesimal ( $dF_j = \sigma_{ij}dS_i$ ). Al igual que las deformaciones, los elementos en la diagonal corresponden a esfuerzos normales, mientras por fuera de la diagonal corresponden a esfuerzos cortantes. Adicionalmente, si el sólido se encuentra en estado estacionario, el tensor de esfuerzos debe ser simétrico para cumplir con la condición de equilibrio.

Ahora bien, la energía potencial en el sólido se relaciona con su deformación por medio de una expansión de Taylor. En la mayoría de los materiales reales, los términos de tercer orden no contribuyen significativamente a la energía ni a los fenómenos macroscópicos, en especial para deformaciones infinitesimales. A partir de la energía se pueden encontrar los esfuerzos que se generan en el material como la primera derivada respecto a la deformación. [8]

$$\rho U_0 = C_0 + C_{ij}\varepsilon_{ij} + \frac{1}{2!}\varepsilon_{ij}C_{ijkl}\varepsilon_{kl} + o(\varepsilon^3)$$

$$\begin{aligned}\sigma_{mn} &= \rho \frac{\partial U_0}{\partial \varepsilon_{mn}} = C_{ij}\delta_{mi}\delta_{nj} + \frac{1}{2}C_{ijkl}(\varepsilon_{kl}\delta_{im}\delta_{jn} + \varepsilon_{ij}\delta_{km}\delta_{ln}) \\ &= C_{mn} + \frac{1}{2}C_{m n k l}\varepsilon_{kl} + \frac{1}{2}C_{i j m n}\varepsilon_{ij} = C_{mn} + \frac{1}{2}(C_{m n i j} + C_{i j m n})\varepsilon_{ij} \\ &= C_{mn} + C_{m n i j}\varepsilon_{ij}\end{aligned}$$

Donde  $U_0$  es la energía potencial elástica en el material,  $C$  son los factores de la expansión de Taylor y  $\sigma_m n$  son los esfuerzos que siente el material. De la última ecuación se observa que el termino independiente de  $\varepsilon_{ij}$  representa esfuerzos residuales en el sólido que se ignoran en la ley de Hooke generalizada, puesto que los sólidos se consideran libres de estos esfuerzos residuales antes de cargarse. Con esto se llega a la Ley:

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl}\varepsilon_{kl}$$

Donde  $C_{ijkl}$  se conoce como el tensor de constantes elásticas. Puesto que el tensor de deformaciones y el tensor de esfuerzos son simétricos, este tensor de constantes elásticas también es simétrico. Es decir  $C_{ijkl} = C_{klij}$ ,  $C_{ijkl} = C_{jikl}$ ,  $C_{ijkl} = C_{ijlk}$  y  $C_{ijkl} = C_{jilk}$ , por lo que el número de coeficientes independientes se reduce a 21. Esto permite hacer la siguiente simplificación de la ley de Hooke:

$$\begin{bmatrix} \sigma_{11} \\ \sigma_{22} \\ \sigma_{33} \\ \sigma_{23} \\ \sigma_{13} \\ \sigma_{12} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} C_{1111} & C_{1122} & C_{1133} & C_{1123} & C_{1113} & C_{1112} \\ C_{2211} & C_{2222} & C_{2233} & C_{2223} & C_{2213} & C_{2212} \\ C_{3311} & C_{3322} & C_{3333} & C_{3323} & C_{3313} & C_{3312} \\ C_{2311} & C_{2322} & C_{2333} & C_{2323} & C_{2313} & C_{2312} \\ C_{1311} & C_{1322} & C_{1333} & C_{1323} & C_{1313} & C_{1312} \\ C_{1211} & C_{1222} & C_{1233} & C_{1223} & C_{1213} & C_{1212} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \varepsilon_{11} \\ \varepsilon_{22} \\ \varepsilon_{33} \\ \varepsilon_{23} \\ \varepsilon_{13} \\ \varepsilon_{12} \end{bmatrix}$$

Con el propósito de reducir la cantidad de índices presentes en las ecuaciones, es común utilizar la notación de Voigt-Kelvin, la cual agrupa los coeficiente en pares:  $11 \rightarrow 1$ ,  $22 \rightarrow 2$ ,  $33 \rightarrow 3$ ,  $23 \rightarrow 4$ ,  $13 \rightarrow 5$  y  $12 \rightarrow 6$ . Si se reescribe la ley de Hooke con esta notación se encuentra que  $\sigma_i = C_{ij}\varepsilon_j$ , o bien:

$$\begin{bmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \sigma_4 \\ \sigma_5 \\ \sigma_6 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & C_{14} & C_{15} & C_{16} \\ C_{21} & C_{22} & C_{23} & C_{24} & C_{25} & C_{26} \\ C_{31} & C_{32} & C_{33} & C_{34} & C_{35} & C_{36} \\ C_{41} & C_{42} & C_{43} & C_{44} & C_{45} & C_{46} \\ C_{51} & C_{52} & C_{53} & C_{54} & C_{55} & C_{56} \\ C_{61} & C_{62} & C_{63} & C_{64} & C_{65} & C_{66} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \varepsilon_1 \\ \varepsilon_2 \\ \varepsilon_3 \\ \varepsilon_4 \\ \varepsilon_5 \\ \varepsilon_6 \end{bmatrix}$$

El tensor de constantes elásticas se puede simplificar aún más si se tiene en cuenta la simetría del sólido que se esta estudiando, tal como se muestra en el cuadro 2.1.

Grupo Puntual	Número de $C_{ij}$	$C_{ij}$ independientes
Triclínica	21	Todas las combinaciones posibles
Monoclínica	13	$C_{11}; C_{12}; C_{13}; C_{16}; C_{22}; C_{23}; C_{26}; C_{33}; C_{36}; C_{44}; C_{45}; C_{55}; C_{66}$
Orthorrómbica	9	$C_{11}; C_{12}; C_{13}; C_{22}; C_{23}; C_{33}; C_{44}; C_{55}; C_{66}$
Trigonal	6 o 7	$C_{11}; C_{33}; C_{44}; C_{13}; C_{12}; C_{14}; C_{25}$
Tetragonal	6	$C_{11}; C_{33}; C_{44}; C_{13}; C_{12}; C_{66}$
Hexagonal	5	$C_{11}; C_{33}; C_{44}; C_{12}; C_{14}$
Cúbico	3	$C_{11}; C_{12}; C_{44}$
Isotrópico	2	$C_{11}; C_{44}$

Cuadro 2.1: Constantes elásticas independientes para cada grupo puntual.[8]

## 2.2. Espectroscopía de resonancia ultrasónica

En materiales policristalinos, su comportamiento es aproximadamente isotrópico, por lo que sus propiedades elásticas se condensan en módulos de elasticidad que se miden con ensayos mecánicos sencillos [7]. En cambio, en muestras monocristalinas, la anisotropía de la muestra implica mayor complejidad a la hora de medir el tensor de constantes elásticas. Métodos no-acústicos como scattering de Brillouin o scattering inelástico de neutrones permiten medir la elasticidad de la muestra, pero carecen precisión y por lo tanto dificultan hacer análisis robustos de los resultados [2]. En cambio, con métodos acústicos de determinación de las constantes elásticas la precisión es suficiente para poder caracterizar a fondo su comportamiento [1]. Entre estos métodos, la espectroscopía de resonancia ultrasónica (RUS), se ha destacado debido a la facilidad de su implementación y la precisión con la que determina las constantes elásticas [3]. Este método se puede separar en una parte experimental, en la que se obtiene el espectro de resonancia de una muestra, y una parte computacional, donde se usa el espectro obtenido experimentalmente para calcular las constantes elásticas de la muestra.

### 2.2.1. Parte experimental

Para encontrar el espectro de resonancias es necesario inducir vibraciones mecánicas en la muestra que se quiere estudiar y, al mismo tiempo, medir la amplitud de vibración de la muestra. Típicamente, para realizar estas dos interacciones con la muestra, se hace uso de transductores piezoeléctricos que la aprisionan desde dos lados opuestos. Estos se deforman cuando se someten a un voltaje, y generan un voltaje cuando se deforman, por lo que son ideales para generar y medir vibraciones. Uno de los transductores se alimenta con una señal armónica para deformarlo a una frecuencia conocida. Esta deformación luego se transmite a la muestra, la cual vibra en respuesta, y genera deformaciones en el otro transductor, las cuales se miden como una señal de voltaje. Es importante que el acoplamiento entre transductores y muestra sea el mejor posible, por lo que es común ubicar la muestra de forma oblicua, para que sus esquinas se incrusten en los transductores. Sin embargo, es importante que los transductores no restrinjan la muestra, ya que limitarían la generación de vibraciones. Es decir, la fuerza con la que se aprisiona la muestra debe ser mínima. Un esquema general del montaje y ubicación de la muestra se encuentra en la Figura 2.1.[3]

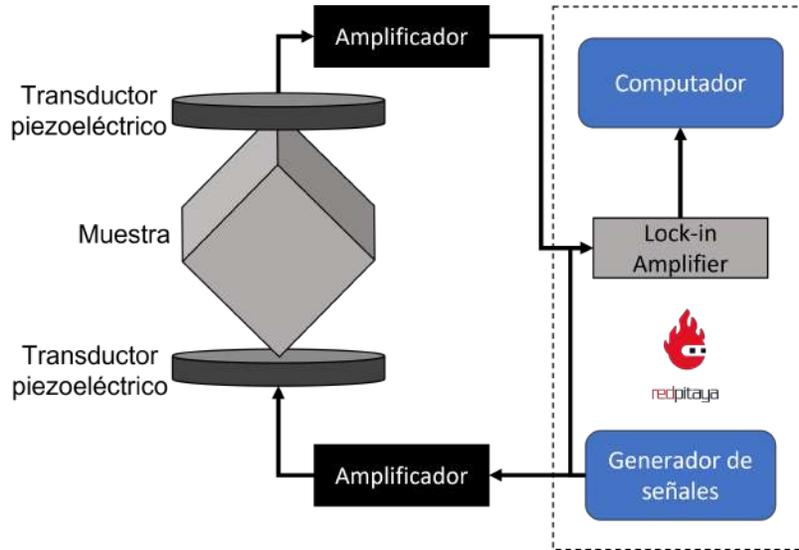


Figura 2.1: Esquema del funcionamiento de un montaje típico de RUS. En el montaje que se está implementando en la universidad, se hace uso de un RedPitaya para cumplir la tarea de generar y adquirir las señales.

Como en el montaje que se está desarrollando en la Universidad se piensa realizar mediciones variando la temperatura (para estudiar transiciones de fase), este se adapta a una caña con la cual se puede realizar el experimento dentro de un crióstato de flujo de helio. Debido a la naturaleza del experimento, es fundamental prevenir perturbaciones mecánicas del montaje mientras se toman los datos, por lo que es común usar materiales que tengan una alta disipación mecánica (como fibra de vidrio, G-10, o cerámicos mecanizables) en el diseño y construcción de estas cañas.[9]

Como se mencionó previamente, se debe excitar la muestra, generando una señal que varía en frecuencia sin discontinuidades (para realizar el barrido en frecuencia), y medir la amplitud de las excitaciones, tarea que debe cumplir la electrónica del experimento. Además, es recomendable hacer uso de un lock-in amplifier (filtro homodino) a la salida del montaje para filtrar las señales de vibración de la muestra con frecuencia distinta a la de la señal de entrada. La electrónica del experimento debe cumplir todas estas tareas, por lo que se optó por utilizar un RedPitaya (RP). Este es una tarjeta FPGA programable que es capaz de generar las señales análogas que se necesitan, así como medir la señal de salida del experimento y filtrar la señal homodina. Adicionalmente, este se puede configurar usando un software libre desarrollado por Los Alamos National Laboratory, con el que se realizan los barridos de frecuencia necesarios para la toma de datos. Igualmente, el software cuenta con un módulo que procesa la señal medida y determina la ubicación de picos en la amplitud.[10]

### 2.2.2. Parte computacional

Como se ha explicado antes, por medio de RUS se obtienen las frecuencias de resonancia para luego calcular el tensor de constantes elásticas a partir de ellas. Sin embargo, como se va a ver a continuación, la operación que se puede hacer de forma directa con poca complejidad es el cálculo de las frecuencias de resonancia a partir de las constantes elásticas. Es por esto que es común encontrarlo en la literatura como el *forward problem*. [2]

Se comienza a partir del Lagrangiano de un sólido con constantes elásticas  $C_{ijkl}$  y densidad  $\rho$ . Este se calcula como la integral en todo el volumen del sólido de la diferencia entre la densidad de energía

cinética  $EK$  y la densidad de energía potencial elástica  $EP$ , que se definen en términos del campo de desplazamientos  $u$ . El Lagrangiano se muestra en la ecuación 2.1. Como primer paso, se asume que el campo de desplazamiento es armónico, con lo que se separa en un factor espacial y una componente temporal con la forma armónica simple, de acuerdo con la ecuación 2.2, donde  $\omega$  es la frecuencia del desplazamiento armónico. Al introducir esta definición en el Lagrangiano, se llega a la forma presentada en la ecuación 2.3.[3]

$$L = \int_V EK - EP dV = \int_V \sum_i \frac{1}{2} \rho \dot{u}_i^2(\vec{r}, t) - \sum_{ijkl} \frac{1}{2} C_{ijkl} \frac{\partial u_i(\vec{r}, t)}{\partial x_j} \frac{\partial u_k(\vec{r}, t)}{\partial x_l} dV \quad (2.1)$$

$$u_j(\vec{r}, t) = u_j(\vec{r}) e^{-i\omega t} \quad (2.2)$$

$$L = \frac{1}{2} \int_V \sum_i \rho \omega^2 u_i^2(\vec{r}) - \sum_{ijkl} C_{ijkl} \frac{\partial u_i(\vec{r})}{\partial x_j} \frac{\partial u_k(\vec{r})}{\partial x_l} dV \quad (2.3)$$

Ahora, se descompone el campo de desplazamientos en una base de Visscher como se presenta a continuación.

$$u_i(\vec{r}) = \sum_{\lambda}^N a_{i\lambda} \phi_{\lambda}(\vec{r})$$

donde  $a_{i\lambda}$  son constantes escalares y  $\phi_{\lambda}$  es:

$$\phi_{\lambda}(\vec{r}) = x^l y^m z^n = \phi_{(l,m,n)}(\vec{r})$$

Es decir, cada  $\lambda$  corresponde a un conjunto distinto de valores positivos de  $l$ ,  $m$  y  $n$ , y  $N$  es el número de términos de la base usados en la descomposición. En esta nueva base, la energía cinética y potencial se reescriben como se muestra a continuación. De esta forma, el Lagrangiano se convierte en el que se presenta en la ecuación 2.4.

$$\begin{aligned} \sum_i \rho \omega^2 u_i^2 &= \sum_{ii'\lambda\lambda'} \delta_{ii'} \rho \omega^2 a_{i\lambda} a_{i'\lambda'} \phi_{\lambda} \phi_{\lambda'} \\ \sum_{ijkl} C_{ijkl} \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \frac{\partial u_k}{\partial x_l} &= \sum_{ii'jj'\lambda\lambda'} C_{ijj'j'} a_{i\lambda} a_{i'\lambda'} \frac{\partial \phi_{\lambda}}{\partial x_j} \frac{\partial \phi_{\lambda'}}{\partial x_{j'}} \end{aligned}$$

$$L = \frac{1}{2} \omega^2 \sum_{ii'\lambda\lambda'} a_{i\lambda} \left( \delta_{ii'} \int_V \phi_{\lambda} \rho \phi_{\lambda'} dV \right) a_{i'\lambda'} - \frac{1}{2} \sum_{ii'\lambda\lambda'} a_{i\lambda} \left( \sum_{jj'} C_{ijj'j'} \int_V \frac{\partial \phi_{\lambda}}{\partial x_j} \frac{\partial \phi_{\lambda'}}{\partial x_{j'}} dV \right) a_{i'\lambda'} \quad (2.4)$$

Esta expresión se simplifica si se definen las siguientes matrices a partir de las expresiones que se encuentran entre paréntesis.

$$E_{\lambda i \lambda i'} = \delta_{ii'} \int_V \phi_{\lambda} \rho \phi_{\lambda'} dV \quad (2.5)$$

$$\Gamma_{\lambda i \lambda i'} = \sum_{jj'} C_{ijj'j'} \int_V \frac{\partial \phi_{\lambda}}{\partial x_j} \frac{\partial \phi_{\lambda'}}{\partial x_{j'}} dV \quad (2.6)$$

Por fin se llega a la forma final del Lagrangiano, que se presenta en la ecuación 2.7. Se puede demostrar que este Lagrangiano se encuentra en estado estacionario ( $\delta L = 0$ ) se debe cumplir que  $\partial L / \partial a_{i\lambda} = 0$ .

$$L = \frac{1}{2}\omega^2 \sum_{ii'\lambda\lambda'} a_{i\lambda} E_{\lambda i \lambda' i'} a_{i'\lambda'} - \frac{1}{2} \sum_{ii'\lambda\lambda'} a_{i\lambda} \Gamma_{\lambda i \lambda' i'} a_{i'\lambda'} \quad (2.7)$$

Si se aplica esta condición en el Lagrangiano, se encuentra que:

$$\frac{\partial L}{\partial a_{i'\lambda'}} = \sum_{i'\lambda'} a_{i'\lambda'} \left( \frac{1}{2}\omega^2 E_{\lambda'' i'' \lambda' i'} \right) + \sum_{i\lambda} a_{i\lambda} \left( \frac{1}{2}\omega^2 E_{\lambda i \lambda'' i''} \right) - \sum_{i'\lambda'} a_{i'\lambda'} \left( \frac{1}{2}\Gamma_{\lambda'' i'' \lambda' i'} \right) - \sum_{i\lambda} a_{i\lambda} \left( \frac{1}{2}\Gamma_{\lambda i \lambda'' i''} \right) = 0$$

que, dada la simetría de  $E_{\lambda i \lambda' i'}$  y  $\Gamma_{\lambda i \lambda' i'}$ , se simplifica a:

$$\omega^2 \sum_{i\lambda} a_{i\lambda} E_{\lambda i \lambda'' i''} = \sum_{i\lambda} a_{i\lambda} \Gamma_{\lambda i \lambda'' i''} \quad (2.8)$$

Esta ecuación 2.8 corresponde a un problema de autovalores que se puede resolver computacionalmente con cierta facilidad. De hecho, los autovalores que se obtienen (los valores de  $\omega$ ), son las frecuencias de resonancia que se obtienen experimentalmente a partir de RUS. Se observa que, de acuerdo a lo que se ha mencionado en anteriores secciones, estos autovalores dependen únicamente de las constantes elásticas, presentes en la definición de  $\Gamma$  (ecuación 2.6), la densidad, presente en la definición de  $E$  (ecuación 2.5), y la geometría de la muestra. Esta última dependencia revela que las mediciones con RUS mejoran cuando se realizan sobre muestras con geometrías bien definidas, pues las condiciones de frontera del sólido real se aproximan más al supuesto teórico de condiciones de frontera libres. Adicionalmente, una muestra se va a acoplar mejor a los transductores si esta tiene aristas y esquinas pulidas.[3]

En cambio, deducir las constantes elásticas a partir de las frecuencias de resonancia se conoce como el *inverse problem*. Como el *forward problem* no tiene un inverso analítico, el procedimiento generalmente invierte el problema numéricamente por medio de ajustar estimativos de las constantes elásticas hasta obtener un tensor elástico que genere las frecuencias de resonancia que se buscan (obtenidas experimentalmente), por ejemplo por medio del algoritmo de Levenberg-Marquardt. Sin embargo, este método es altamente sensible a frecuencias de resonancia faltantes en el espectro (picos de resonancia que por cualquier razón no se detectaron experimentalmente). Otros algoritmos se han desarrollado que disminuyen el efecto de las frecuencias faltantes, como por ejemplo algoritmos genéticos, a cambio de tiempos de computación elevados. [3] Más recientemente, se desarrolló en el grupo de Materiales Cuánticos un algoritmo basado en Machine Learning que ha demostrado ser robusto frente al problema de las frecuencias faltantes sin los costos elevados en computación que acompañan otros algoritmos. [11]

# Capítulo 3

## Montaje

La caña que se presenta a continuación fue diseñada con el objetivo de tomar medidas de espectroscopía de resonancia ultrasónica en muestras monocristalinas pequeñas (del orden de  $100\mu\text{m}$  a  $1\text{mm}$  en sus dimensiones) a distintas temperaturas.

### 3.1. Diseño de una caña para RUS

El diseño propuesto en este montaje se presenta en la Figura 3.1.[9] En este, la muestra se ubica entre dos transductores piezoeléctricos, uno de los cuales está pegado a un soporte fijo, mientras el otro está pegado a un soporte que pivota sobre un eje. Dada la orientación que toma la caña cuando se toma una medición, al piezoeléctrico móvil se le refiere como piezoeléctrico o transductor superior, y al estático como inferior. El eje se monta entre dos rodamientos. Para tomar una medición, se levanta el transductor superior, se ubica la muestra en la posición deseada, y se suelta el transductor de superior, dejándolo reposar sobre la muestra por efecto de la gravedad. Este diseño garantiza que la muestra se atrapa entre los piezoeléctricos con poca fuerza, evitando que se amortigüen las resonancias.

Con el objetivo de poder controlar con precisión la temperatura de la muestra, el diseño incluye dos heaters y un termómetro que se instalan lo más cerca posible a la muestra. Todos los componentes (transductores con sus respectivos soportes, eje, y elementos de control de temperatura) se instalan en un portamuestras fabricado en una única pieza. Con la intención de facilitar procesos de mantenimiento o modificación a la caña, el soporte inferior se acopla al portamuestras con un tornillo (union no permanente). A la vez, el portamuestras se atornilla a la punta de una caña con la que se le da al montaje la longitud necesaria para realizarse dentro de un crióstato de flujo. El cableado de estos elementos se lleva por unos canales tallados en la caña hasta un adaptador que permite la instalación del montaje en el crióstato. Es importante garantizar un sello hermético en el montaje, pues el crióstato trabaja en un ambiente controlado de presión, por lo que el adaptador se cierra con una tapa kf-50. Esta tapa se modifica para incluir los conectores para los elementos del portamuestras. Los planos detallados de las piezas del montaje se encuentran en la referencia [9].

En este diseño, la caña, el portamuestras, los soportes de los piezoeléctricos, el pivote y los tornillos de sujeción son fabricados en MACOR<sup>®</sup>. Este es un cerámico maquinable cuya naturaleza granular garantiza disipación de ruido mecánico. La selección del mismo material para todas las piezas también garantiza un montaje homogéneo que no genere esfuerzos residuales cuando sufra cambios de temperatura. Puesto que las mediciones se tomarán de temperatura ambiente (300K) hasta tempera-

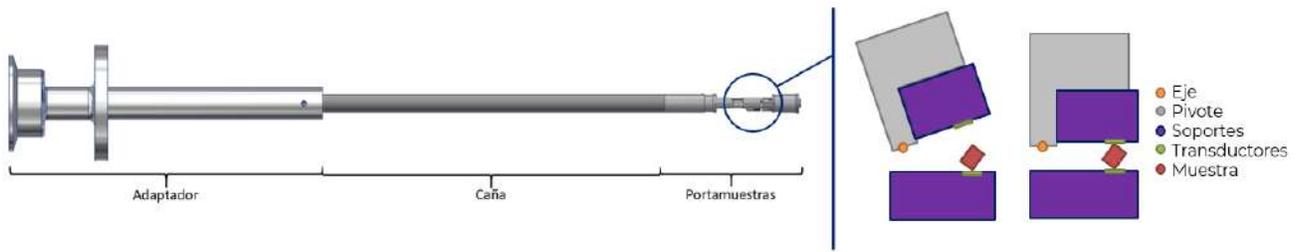


Figura 3.1: Diseño de la caña en MACOR<sup>®</sup>. Esta cuenta de tres partes, un portamuestras en MACOR<sup>®</sup> donde se encuentran los piezoeléctricos y se ubica la muestra, una caña en MACOR<sup>®</sup> que le da la longitud necesaria al montaje, y un adaptador para el crióstato de flujo.



Figura 3.2: Portamuestras en MACOR<sup>®</sup> con eje y caminos de soldadura instalados. En la imagen de la izquierda: vista lateral del portamuestras donde se ve el rodamiento en zafiro al lado del camino de soldadura. En la imagen de la derecha: vista frontal del portamuestras en la que se observa el eje y un camino de soldadura, así como parte del canal que lleva el cableado a la tapa y las ranuras para la instalación de los heaters.

turas criogénicas (3K), el diseño tiene que ser robusto frente a estos ciclos pronunciados de cambio de temperatura. Adicionalmente, para garantizar un control más preciso de la temperatura de la muestra, el diseño cuenta con el espacio para instalar dos heaters y un termómetro cerca de la muestra. Todos los elementos (heaters, termómetro y piezoeléctricos) se conectan a caminos de microsoldadura en el portamuestras, desde los cuales salen los cables que se llevan a sus respectivos conectores en la tapa del adaptador. Todas las piezas fueron manufacturadas en el taller de micromecánica de la Universidad de los Andes.

### 3.2. Construcción de la caña en MACOR<sup>®</sup>

El proceso de construcción de la caña implicó un proceso iterativo de experimentación, aprendizaje, y corrección. Si bien algunas piezas fueron instaladas exitosamente en el primer intento, fue necesario implementar correcciones a lo largo de la mayoría del proceso para la mayoría de las piezas y elementos. Como una primera aproximación, se planteó el siguiente proceso para la construcción de la caña:

1. **Instalar el eje en el portamuestras.** Se pegan los rodamientos al portamuestras con Stycast (resina epóxica blanca). Para lograr este paso, se pega primero un rodamiento y se espera que la resina cure. Luego se ubica el eje sobre el rodamiento ya pegado y se pega el segundo rodamiento, aplicando presión leve mientras este cura para evitar que el eje presente juego (movimientos indeseados).



Figura 3.3: Transductor superior instalado en su respectivo soporte.

- 2. Pegar los caminos de microsoldadura al portamuestras usando Stycast.** Esto requiere antes tener una idea de la forma en que irán acomodados los cables en el montaje. La Figura 3.2 muestra el resultado de cumplir este y el anterior paso.
- 3. Preparar los transductores piezoeléctricos.** Antes de instalarlos en el portamuestras, se pegan los transductores a sus respectivos soportes y se sueldan a los cables que los conectan con los caminos de microsoldadura. Estos cables son pares de cables de cobre calibre 44 trenzados (para reducir ruido electrónico). En la Figura 3.3 se muestra el resultado de este procedimiento. La pastilla piezoeléctrica (amarilla), cuenta con un recubrimiento en oro en sus dos caras opuestas. Entre estos dos recubrimientos se hace la operación de aplicar o medir la diferencia de voltaje que induce o se genera por la deformación del transductor. Se hace uso de una resina epóxica conductora (plateada) para pegar el piezoeléctrico al soporte y a los cables. Como una primera iteración, se planteó la distribución de los cables mostrada en la Figura 3.3. Parte de la resina que pega el piezoeléctrico al soporte se extiende hacia atrás y se usa para conectar uno de los cables, mientras la punta del segundo cable se pega a un lado del transductor y se conecta a este con la ayuda de un alambre de oro que se suelda entre el cable y el transductor usando la misma resina.
- 4. Fabricar e instalar los heaters.** El portamuestras cuenta con dos ranuras, que se observan en la Figura 3.2 en lados opuestos de donde va ubicada la muestra, que se usan para dicha instalación. Los heaters se fabrican con un cable de níquel-cromo con un largo que genere una resistencia eléctrica de aproximadamente  $25\Omega$ . Este cable se dobla por la mitad (para reducir ruido electrónico) y se enrolla al rededor del portamuestras en su respectiva ranura, mientras se va pegando con GE Varnish.
- 5. Acoplar el pivote al eje.** Usando Stycast, se pega el pivote al eje, intentando procurar que esté lo más centrado posible. Se recomienda garantizar este centrado insertando pedazos de papel en cantidades iguales a los lados del pivote. Adicionalmente, se recomienda aplicar una presión leve al pivote mientras la resina cura para garantizar una unión fuerte. Se recomienda también aplicar Stycast con moderación, pues si los rodamientos se llegan a untar, es necesario cambiarlos.
- 6. Pegar el soporte del transductor superior al pivote.** Este soporte cuenta con una ranura que indica la cara que se pega al pivote. Se usa Stycast nuevamente en la menor cantidad posible. Dada la imposibilidad de fabricar una unión no permanente para el soporte superior, si este se



Figura 3.4: Portamuestras con todos los elementos instalados y soldados. Se observan ambos heaters enrollados dentro de sus respectivas ranuras, los soportes de los transductores instalados, y el termómetro pegado cerca del espacio que se forma entre ambos soportes.

necesita separar se debe aplicar un disolvente en la ranura que disuelva el Stycast. Ahora bien, este proceso ha demostrado ser extremadamente difícil de lograr. Dado el tamaño de la ranura, efectos de tensión superficial impiden que el disolvente entre en esta con facilidad. Como una corrección sugerida a este proceso, se recomienda utilizar GE-Varnish en vez de Stycast para pegar el soporte al pivote. Aun así, se pudo observar que es posible trabajar directamente sobre la cara del soporte superior cuando este ya se encuentra instalado si se retira el soporte inferior y se gira el pivote a una posición adecuada. Aunque implica un poco más de complejidad, se puede instalar el transductor superior con el soporte ya pegado al pivote.

**7. Instalar el termómetro y soldar a los caminos de microsoldadura.** Con los dos soportes instalados se sabe exactamente a qué altura va a estar ubicada la muestra. Intentando que sea a esta misma altura se instala el termómetro. Dada la dificultad del proceso de realizar la soldadura, se recomienda no pegar el termómetro hasta después de que esté soldado. Puesto que la determinación de la temperatura se realiza a través de la medición de la resistencia del termómetro, este se conecta en una configuración de 4 puntas. Una vez soldado, se puede aplicar un poco de GE Varnish para terminar de sujetarlo al portamuestras. Todos los demás elementos se sueldan también a sus respectivos caminos. En el caso del transductor superior, el movimiento del pivote puede inducir esfuerzos no deseados sobre el cable. Por lo tanto, se recomienda pasar el cable lo más cerca posible al eje, donde el desplazamiento generado al girar el pivote es mínimo. El resultado después de este paso se observa en la Figura 3.4, donde todos los elementos que van instalados en el portamuestras se encuentran listos. En la imagen se observa la posición final del termómetro, a la altura del espacio que se hace entre los dos soportes de los transductores.

**8. Modificar la tapa e instalar los conectores.** La tapa kf 50 se debe modificar para permitir la instalación de los conectores de los elementos. Puesto que los transductores trabajan con señales de muy altas frecuencias (del orden de MHz), estos se cablean con cables coaxiales y se conectan en la tapa a conectores SMA. Los elementos del control de temperatura (termómetro y heaters), en cambio, se cablean con alambre de cobre trenzado y se conectan usando un conector Fischer de 8 pines (2 para cada heater y 4 para el termómetro). El conector Fischer cuenta con un sistema de sello hermético y de aislamiento electrónico, por lo que para su instalación se hace un agujero en la tapa. Adicionalmente, se hace un escariado para sujetar la tuerca del conector, que permite apretar el conector sin tener que abrir la tapa. En cambio, dado que los conectores SMA tienen cubiertas conductoras, fue necesario diseñar adaptadores en un material aislante que intermediaran entre la tapa y los conectores. En la Figura 3.5 se muestra el diseño que se eligió, el cual se enrosca a la tapa, y posee una rosca para el conector SMA. Además, cada adaptador cuenta con una ranura para O-Ring, para así conservar la hermeticidad de la

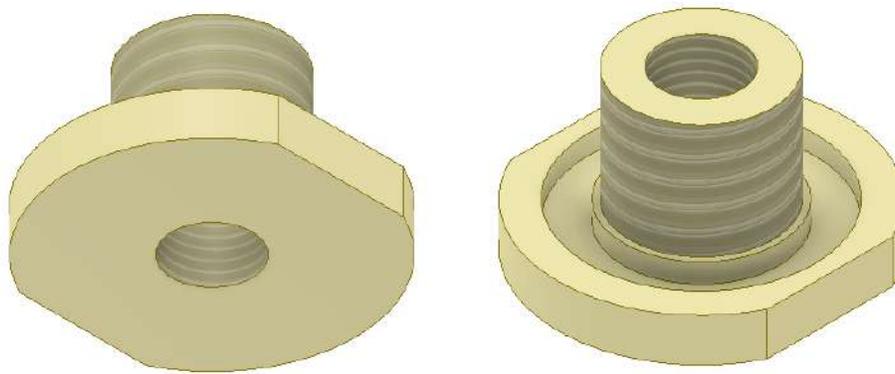


Figura 3.5: Adaptador en nailon al que se atornilla un conector SMA. El adaptador se instala atornillándose a la tapa kf50.



Figura 3.6: Tapa de la caña en MACOR<sup>®</sup> ya cableada. Se observan los dos conectores SMA (con tapa roja), sus respectivos adaptadores (blanco) y el conector Fischer de 8 pines.

tapa. Estos se fabricaron en nailon para evitar cortos entre los dos conectores. La configuración final de los conectores de la tapa se muestra en la Figura 3.6.

9. **Cablear desde los caminos de microsoldadura hasta la tapa.** Como paso final, se realiza el cableado desde los caminos de microsoldadura hasta los respectivos conectores en la tapa. Como se mencionó en el anterior paso, para los elementos del control de temperatura se utiliza cable de cobre trenzado, mientras los transductores se cablean con cable coaxial. Se recomienda dejar una pequeña longitud de cable enroscada debajo de la tapa para cada cable (tal como se observa en la Figura 3.6), con el fin de reducir la posibilidad de dañar la soldadura con movimientos o esfuerzos no deseados.

### 3.3. Reparación de la caña en G-10

Al tiempo que el proceso de construcción de la caña nueva en MACOR<sup>®</sup>, se hicieron pruebas con una caña preexistente fabricada en G-10. Esta caña se observa en la Figura 3.7, y fue construida para hacer medidas de RUS en el National High Magnetic Field Laboratory en Tallahassee. La caña funciona



Figura 3.7: Caña para mediciones de RUS fabricada en G-10. En este diseño, los transductores se encuentran embebidos en soportes de balsa, que a su vez se adhieren a la caña con una resina epóxica. El funcionamiento del diseño es idéntico al de la caña en MACOR<sup>®</sup>, donde un soporte pivota sobre un eje mientras el otro es fijo.

adecuadamente a temperatura ambiente, pero presenta problemas al medir a bajas temperaturas dada la variedad en los materiales en la que está fabricada, pues los soportes de los transductores están fabricados en balsa y acoplados al resto de la caña con resina epóxica. Se hizo la revisión de las conexiones de los transductores de la caña, y se encontró que un método sencillo con el que se puede determinar si estos se encuentran en buen estado es a partir de medidas de capacitancia. Si el transductor se encuentra bien conectado, este debe generar una capacitancia de al rededor de 0.2 nF.

### 3.4. Sistema de adquisición de datos

El sistema de adquisición de datos se probó en la caña en G-10 mientras se completaba el proceso de construcción de la caña en MACOR<sup>®</sup>. Se utiliza un RedPitaya para generar la señal con la que se alimenta al transductor inferior y adquirir la señal que se produce en el transductor superior. Para poder tomar mediciones, es necesario configurar el software de Los Alamos National Laboratory en el RP y en un PC en el que se vayan a guardar las mediciones. En primer lugar, se debe descargar el archivo de imagen [rus.img](#) e instalarlo en una tarjeta SD. Se recomienda usar un software como [Win32 Disc Imager](#) en este paso. La tarjeta SD se introduce en el RP, y es la que le permite comunicarse con LabView. En el PC, se debe descargar el [runtime](#) de LabView, así como el instalador de la aplicación de [ResonanceSpectrometerInstaller](#). En el repositorio se puede encontrar un manual que explica la mayoría de las funciones del programa.[10][3]

Para comunicarse con el RP, este y el PC se deben conectar a la misma red por medio de un cable ethernet. Se recomienda usar los puertos rojos que se encuentran en los laboratorios de la universidad. Adicionalmente, es necesario conocer la dirección IP del RP. Una forma en que se puede determinar es conectando el RP directamente al PC por medio de un cable USB y comunicándose con él usando

un programa de lectura de software como [PuTTY](#). Sin embargo, puede ser más sencillo usar un [scáner de IP](#) y buscar el RP en la red a la que esta conectado en las direcciones entre 157.253.71.1 y 157.253.71.254, donde aparecerá con un nombre como *redpitaya.uniandes*. La dirección IP luego se introduce en el programa cuando se está configurando para realizar una medición.

Una vez configurado el RP, este se conecta a los conectores SMA de la caña. Es recomendable conectar la salida del RP (**Output 1**) al transductor inferior y la entrada (**Input 1**) al superior. Además, se cuenta con dos amplificadores, diseñados en LANL [3], que ayudan en el proceso de obtención de espectros. El charge amplifier está diseñado para funcionar con una carga capacitiva (los transductores) y amplificar la señal que sale del RP, independiente de la frecuencia de la señal. En cambio, el boost amplifier se puede usar a la salida de la caña para amplificar la señal producida por el transductor superior. Este se tiene una ganancia ajustable por medio de un potenciómetro, que puede llegar hasta x15 para frecuencias inferiores a 6MHz. Ambos amplificadores se alimentan con cargadores USB de 5V (como los cargadores de celular). A pesar de la ventaja que trae el uso de los amplificadores, se encontró que el charge amplifier no contribuye significativamente a la medición, pues cuenta con una ganancia baja y se satura fácilmente en 3.3V (la salida máxima del RP sin amplificador es 1V).

# Capítulo 4

## Obtención de las frecuencias de resonancia

En esta sección se describe el procedimiento que se debe seguir para la obtención de un espectro de resonancias usando el montaje propuesto.

### 4.1. Preparación de la muestra

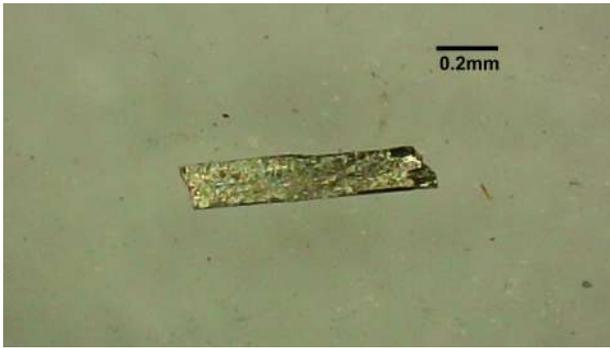
El espectro de resonancias depende no solo de las constantes elásticas, sino también de la geometría de la muestra. Una muestra con una geometría bien definida (aristas y esquinas afiladas) garantiza mayor precisión en la determinación de las constantes elásticas a partir del espectro de resonancias. Así mismo, si los ejes cristalográficos no están alineados con las direcciones de simetría de la muestra, incrementa el error con el que se calculan las constantes elásticas [3].



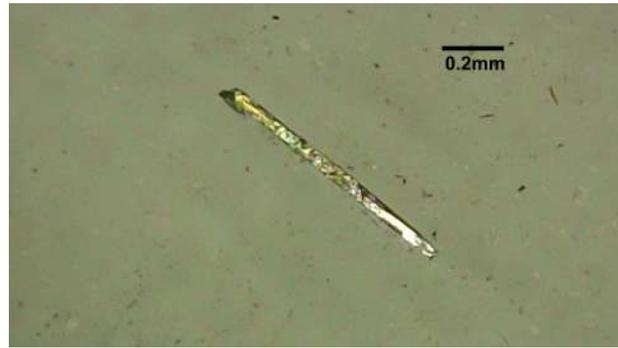
Figura 4.1: Muestra de TaTe<sub>4</sub> embebida en Crystalbond en el proceso de ser pulida.

Para manipular las muestras durante el pulido, estas se sumergen en Crystalbond, una resina lavable que se vuelve viscosa al subirle la temperatura. La muestra se inserta en una gota de Crystalbond apoyada sobre una lámina de microscopio como se observa en la Figura 4.1. La lámina se usa para garantizar que la cara de la muestra que se pule es paralela a esta. Así, si la cara de la muestra que toca la lámina está bien definida, se pueden lograr pares de caras paralelas bien definidas en la muestra.

Como los monocristales que se crecen en el laboratorio crecen en direcciones determinadas por la celda unitaria, muchos de estos pueden presentar caras definidas que no se necesitan pulir. Si se



(a) Vista superior



(b) Vista lateral

Figura 4.2: Muestra de  $\text{TaTe}_4$  pulida. En esta, al menos 4 de sus 6 caras se encuentra pulida y bien definida. La muestra tiene aproximadamente 1mm de largo.

selecciona un monocristal con al menos dos caras definidas no-paralelas, se puede lograr una muestra 4 de 6 caras bien definidas. El resultado final del proceso se observa para una muestra de  $\text{TaTe}_4$  en la Figura 4.2.

Además, el acoplamiento entre los transductores y la muestra puede mejorar por el efecto de tener aristas y esquinas mejor definidas. Esto facilita la ubicación de la muestra y aumenta la probabilidad de excitar modos normales de vibración. Para ubicar la muestra, se utiliza un manipulador que consta de una bomba de vacío pequeña. La bomba genera succión en una aguja con la cual se agarra la muestra. Para ubicar la muestra, se levanta el soporte superior, se posa la muestra sobre el transductor inferior, y luego se suelta el soporte. Ejemplos de cómo se ven las muestras ubicadas en el montaje se presentan en la siguiente sección. Se recomienda que las esquinas de la muestra sean las que están en contacto con los transductores. Aun así, se recomienda también hacer mediciones con la muestra en diversas orientaciones. Las frecuencias de resonancia no cambian dependiendo de la orientación, pero sí la amplitud del pico de resonancia, por lo que hacer mediciones en distintas posiciones puede revelar resonancias que no se podían detectar de otra forma.

## 4.2. Buscar resonancias

Con la muestra preparada y ubicada en el montaje, y el RedPitaya conectado con el boost amplifier, se puede proceder a tomar mediciones. Se abre el software de LANL y se crea un módulo de obtención de espectro. Se introduce la dirección IP del RedPitaya y se define la frecuencia de inicio y de final del espectro, el tamaño del paso con el que se toma el espectro, la amplitud de la señal que sale del RP, y la duración de cada paso. Adicionalmente, en este módulo se pueden definir regiones donde el paso se reduce y se vuelve más fino, que se vuelve útil cuando ya se tiene una idea de dónde hay resonancias. Una vez configurada la medición, se vuelve al menú principal del programa y se corre la medición.

Esto abre una ventana donde se va registrando la amplitud de las señales en fase y fuera de fase en función de la frecuencia. Cada vez que termina la medición, los resultados se almacenan en un archivo .tdms. Aun así, los datos se pueden extraer de forma sencilla del archivo haciendo click izquierdo sobre la gráfica y seleccionando la opción de exportar a Excel. En la Figura 4.3 se observa el resultado de una medición sobre una muestra de silicio, en la que se observan varios picos de resonancia en frecuencias por encima de 1.5MHz, las cuales van montadas sobre una señal de background. Tanto

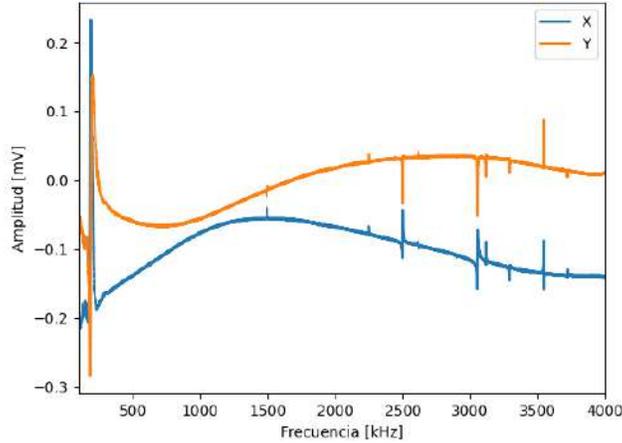


Figura 4.3: Resultado esperado de la toma de un barrido de frecuencias. Las señales mostradas son la salida del Lock-in Amplifier. Se presenta la respuesta en frecuencia de componente en fase (X) y fuera de fase (Y) de la señal generada en el transductor superior. La medición mostrada corresponde a un cristal de silicio.

la componente en fase como la fuera de fase sufren perturbaciones cuando se excita una resonancia.

### 4.3. Identificar resonancias

Ahora bien, observar perturbaciones en las señales no es suficiente para afirmar que se observa una resonancia, y debido al background puede ser difícil determinar exactamente dónde queda el centro del pico y cual es su ancho. Además, dependiendo del montaje y de las frecuencias en las que se mida, el background puede ser más significativo. En la Figura 4.4 se muestra una toma de espectro con la caña en G-10 sin muestra, con los transductores haciendo contacto. Se observa una perturbación importante al rededor de los 200kHz que se va a observar en todas las mediciones que se realicen en la caña. Esta perturbación dificulta significativamente el proceso de identificar resonancias en esta región de baja frecuencia. Además de esta, se observan algunas otras perturbaciones menos pronunciadas a lo largo de todo el espectro. En la Figura 4.3 se observa que solo la perturbación a 200kHz se presenta en mediciones con muestras en esta caña. Se puede concluir que es importante hacer mediciones de los montajes sin muestra, para saber dónde se puede esperar que las mediciones sean difíciles de procesar por efecto del background.

En regiones del espectro donde el background es menos pronunciado, se puede esperar filtrar esa señal para obtener un espectro de resonancias limpio y puro. El software de LANL cuenta con un módulo que realiza esta operación métodos como la aplicación de filtros pasaaltas y pasabajas, mientras a la vez busca picos en la señal y ajusta funciones Lorentzianas a estos para determinar sus centros [3]. Otro método que se puede usar para eliminar las señal de fondo es a partir de ajustar una función Spline en puntos que uno considere que pertenecen al background. Una implementación sencilla de este método se realizó en python usando el paquete *Interpolate* de *Scipy* y la función *ginput* de *Pyplot*. Las figuras 4.5, 4.6, 4.7 y 4.8 resumen el proceso implementado.

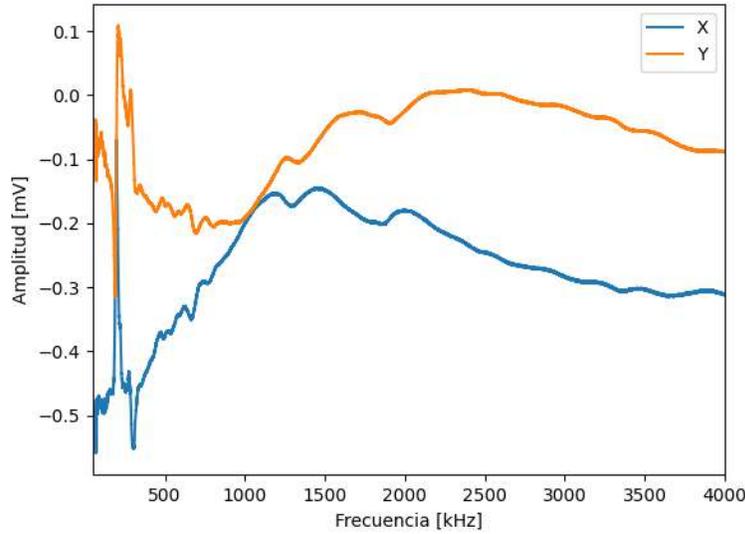


Figura 4.4: Componente en fase (X) y fuera de fase (Y) del background de la caña en G-10. Este es el resultado de medir un espectro sin una muestra ubicada en la caña.

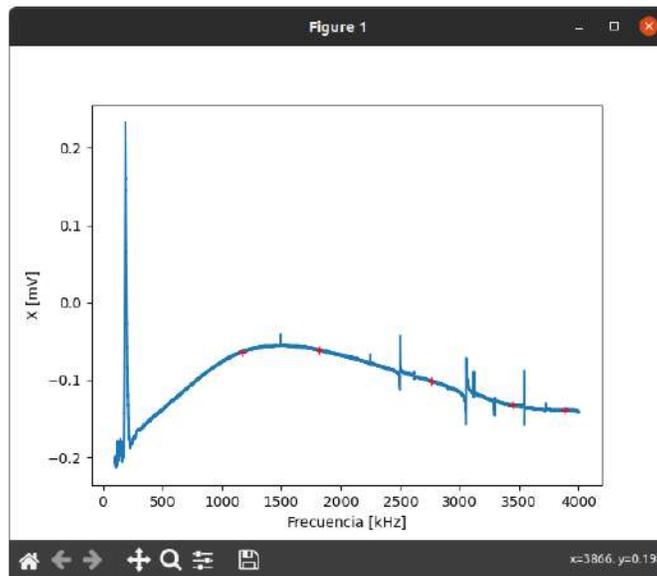


Figura 4.5: Primer paso en el procesamiento de la señal. La señal se divide en regiones más pequeñas que le faciliten al usuario distinguir los picos de resonancia. Las cruces rojas corresponden a los límites de las divisiones y son determinadas por el usuario. La señal azul es la componente en fase de la medición.

La función *ginput* le permite al usuario interactuar con una figura generada por *Pyplot*. Puede crear puntos en ellas con haciendo click izquierdo o eliminar el último punto creado con el click derecho. Una vez el usuario está satisfecho con los puntos creado, hace click con el boton de la rueda del mouse, almacenando los puntos en una lista. En un primer paso del proceso, al usuario se le da la opción de subdividir el espectro en regiones más pequeñas. Cada una de estas regiones luego se muestran de forma individual al usuario para que este seleccione en ellas los puntos que él considera hacen parte

del background.

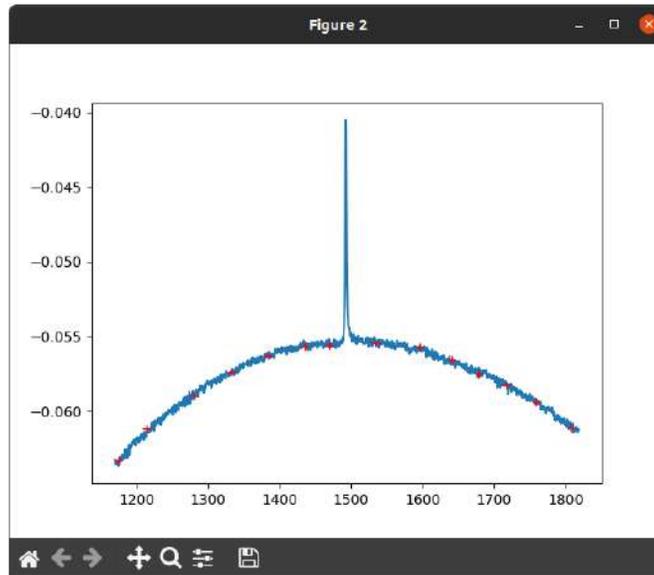


Figura 4.6: Segundo paso del procesamiento. Al usuario se le presenta la componente en fase de cada región que eligió previamente. En la región debe seleccionar los puntos que considere forman parte de la señal de fondo (cruces rojas).

Una vez el background se identifica, a este se le ajusta una función Spline en el dominio de la región demarcada por el usuario. Dos funciones distintas se generan, una para la componente en fase de la señal y otro para la componente fuera de fase. Luego, a ambas componentes se les resta su respectivo ajuste Spline, para finalmente calcular la amplitud de la señal como la raíz de la suma de los cuadrados de las componentes.

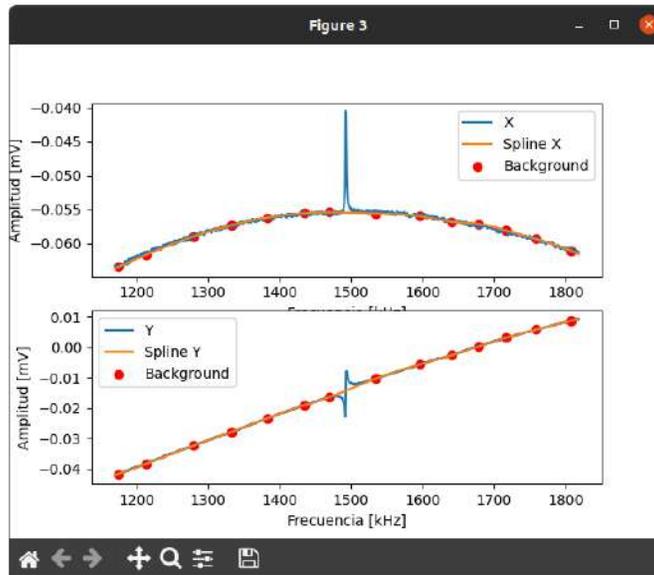


Figura 4.7: Tercer paso en el procesamiento. El programa ajusta una función Spline (anaranjado) a los puntos de background seleccionados por el usuario (rojo). Se le presenta el ajuste al usuario junto con las señales en fase (gráfica superior) y fuera de fase (gráfica inferior), para que este determine si el ajuste es correcto. De no ser así, el programa regresa al anterior paso, pero cambia para que el usuario seleccione el fondo en la señal fuera de fase.

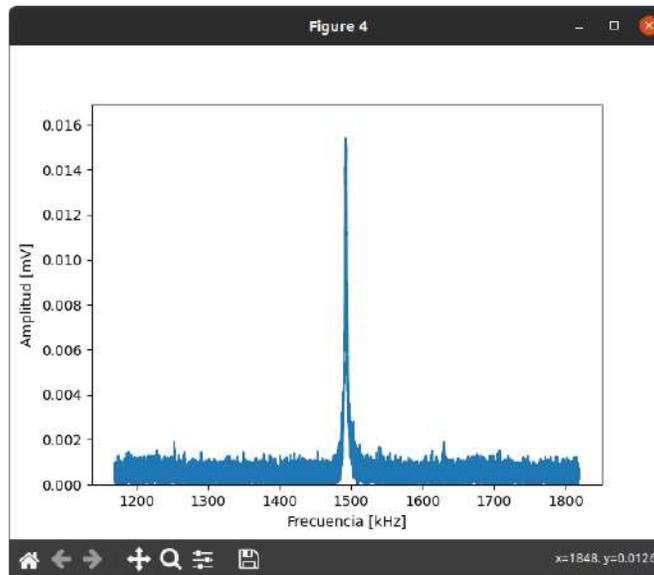


Figura 4.8: Resultado final del procesamiento de una de las regiones. En la gráfica se observa la amplitud de la señal de medición (la raíz de la suma de los cuadrados de cada componente). Una vez el usuario aprueba el ajuste Spline realizado al fondo, este se le resta a ambas componentes de la señal original y se grafica la amplitud de esta.

# Capítulo 5

## Resultados

### 5.1. Datos tomados con la caña en G-10

Los resultados que se presentan en esta sección fueron tomados con la caña en G-10 siguiendo el procedimiento descrito antes. Se hicieron barridos en frecuencia desde 100kHz hasta 4MHz, pero se muestran solo las regiones donde se observaron resonancias.

#### 5.1.1. Silicio

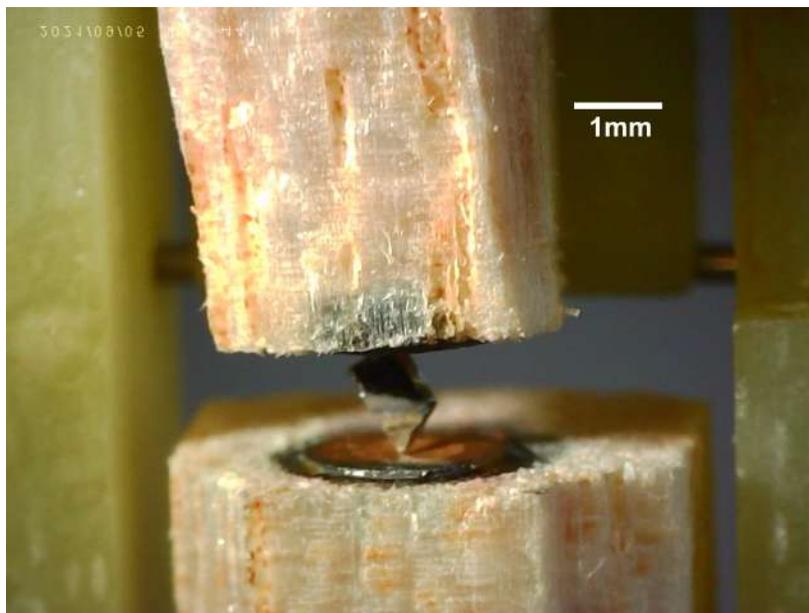
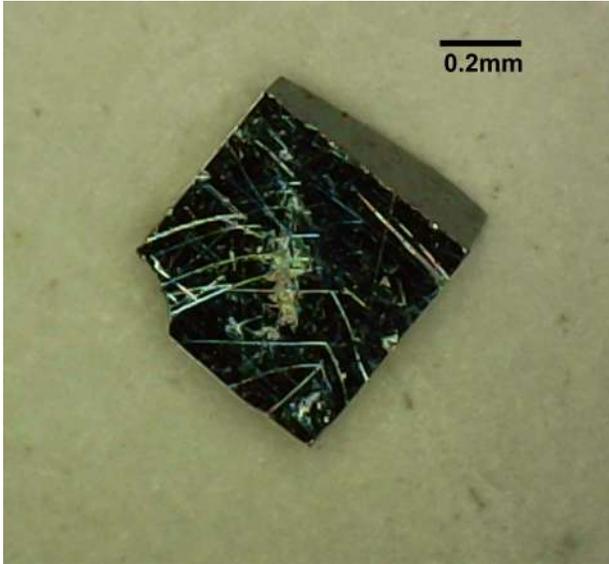


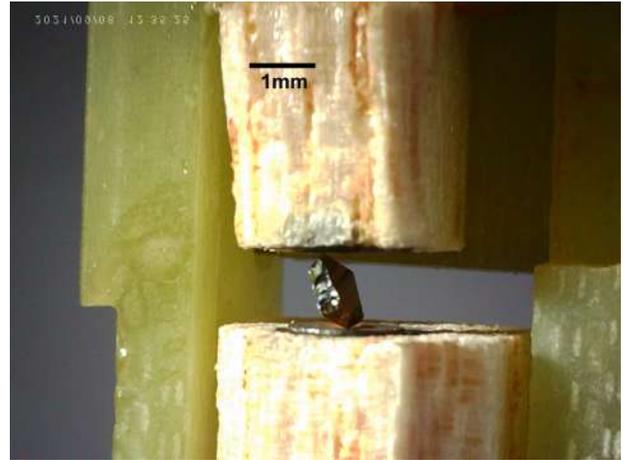
Figura 5.1: Posición de la muestra A de Si en la caña en G-10. La muestra se incrusta con una de sus aristas en el transductor inferior, el que se observa con un recubrimiento de oro.

Para probar el funcionamiento de la caña en G-10 se usaron muestras de silicio partidas de una lámina del material. Como este se fractura en caras planas regulares, usar estas muestras tiene la ventaja adicional de no ser necesario pulirlas para poder usarlas. En la caña en G-10 se probaron un total de 2 muestras de silicio. La muestra A se observa en la Figura 5.1. El espectro obtenido para

esta muestra se presenta en la Figura 5.3.



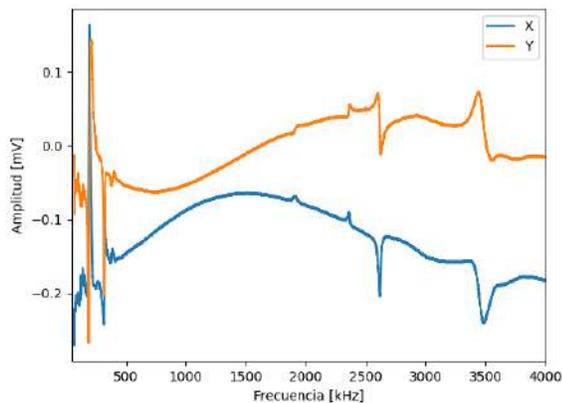
(a) Muestra B de silicio.



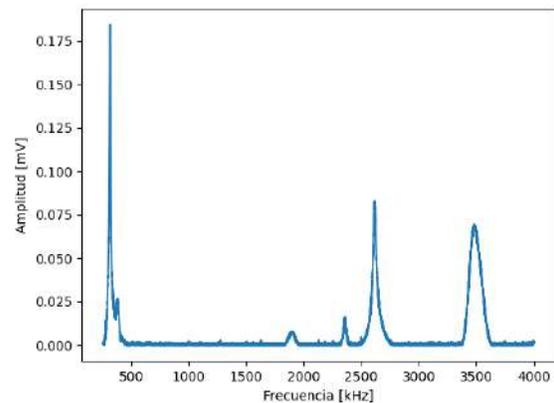
(b) Posición de la muestra B de Si en la caña en G-10.

Figura 5.2: Muestra B de Si usada para mediciones en la caña en G-10. Esta muestra cuenta con una forma mucho más cercana a la de un paralelepípedo rectangular.

La muestra B de silicio se observa en la Figura 5.2. Los resultados de su medición se presentan en la Figura 5.4. Se destaca que el espectro obtenido con la muestra B presenta más resonancias con factores de calidad más altos. Esto se puede deber a la forma de la muestra. Mientras la muestra A no es exactamente rectangular, la muestra B tiene un forma mucho más cercana a un paralelepípedo rectangular, lo cual puede reducir la atenuación en los modos normales. Para ambos casos, se observa un background muy similar, con la misma perturbación grande al rededor de 200kHz.

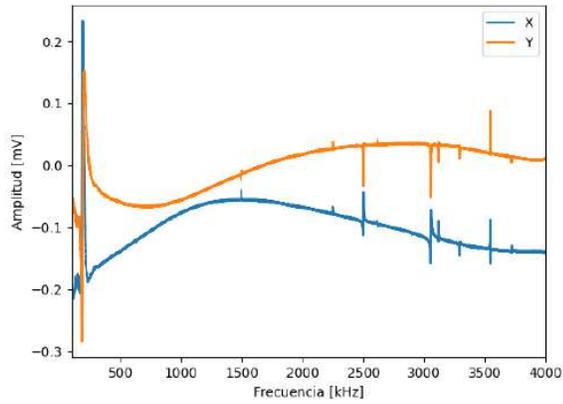


(a) Espectro sin procesar

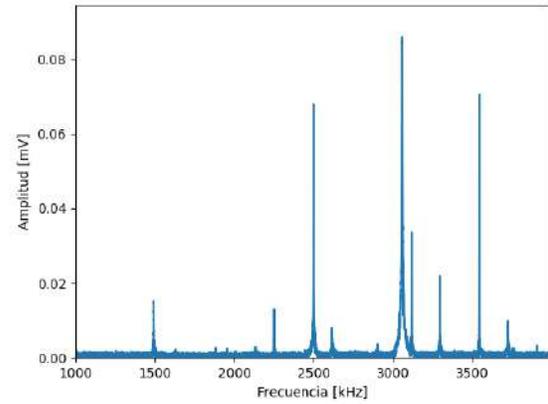


(b) Espectro procesado

Figura 5.3: Espectro de frecuencias tomado para la muestra A de silicio en la caña en G-10. Se observan picos de resonancia bien definidos desde 450kHz. Sin embargo, se observan pocos picos y los que se presentan tienen un factor de calidad muy bajo.



(a) Espectro sin procesar



(b) Espectro procesado

Figura 5.4: Espectro de frecuencias tomado para la muestra B de silicio en la caña en G-10. Los picos de resonancia que se observan tienen un factor de calidad más alto y se pueden distinguir más picos que con la muestra A.

### 5.1.2. TaTe<sub>4</sub>

Adicional a las mediciones hechas en muestras de Si, se hizo una medición en una muestra de TaTe<sub>4</sub>. La muestra se observa en la Figura 5.5. Esta no se pulió y se probó en el montaje con poco procesamiento, con la esperanza de incrementar el factor de calidad de las resonancias y volverlas más sencillas de detectar.



(a) Muestra de TaTe<sub>4</sub>.



(b) Posicionamiento de la muestra de TaTe<sub>4</sub> en la caña en G-10.

Figura 5.5: Muestra de TaTe<sub>4</sub> usada para mediciones en la caña en G-10. Al no estar pulida, se esperó que esto disminuyera el factor de calidad de las resonancias, haciéndolas más sencillas de detectar.

El resultado de la medición se observa en la Figura 5.6. Si bien se pudieron observar resonancias, también se encontró una región del espectro (por encima de 2.2MHz) donde los picos generados por la muestra son muchos y muy anchos, volviendo imposible el proceso de determinar el background para restarlo. Se podría esperar que pulir la muestra ayude a eliminar este problema. Aún así, por debajo

de esta región, las resonancias son suficientemente angostas para ser distinguidas, y se pudieron observar al menos 7 picos. Se destaca que la amplitud de estos es aproximadamente la mitad de la amplitud de los picos obtenidos para la muestra B de silicio (Figura 5.4b), lo que podría sugerir que el ejercicio de hacer mediciones antes de pulir la muestra puede ayudar en el proceso de buscar las resonancias. Adicionalmente, se vuelve a observar la misma perturbación grande del background al rededor de 200kHz.

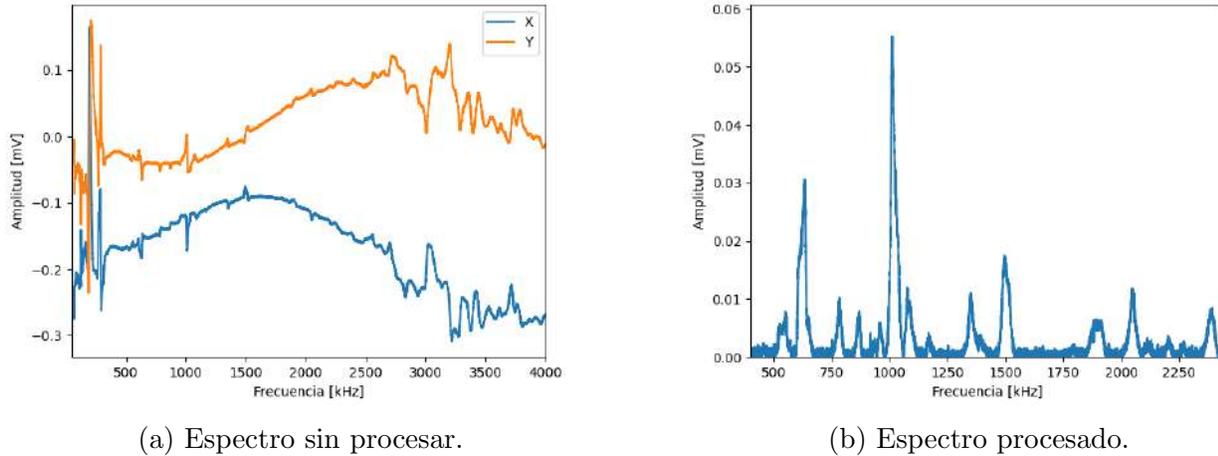


Figura 5.6: Espectro de frecuencias de resonancias medido para una muestra de  $\text{TaTe}_4$  usando la caña en G-10. Se observan bastantes resonancias con picos poco definidos. Adicionalmente, por encima de 2.5MHz, los picos son tan anchos y cercanos entre sí que se vuelven difíciles de distinguir y procesar pues no se puede reconocer el background.

## 5.2. Datos tomados con la caña en MACOR<sup>®</sup>

Con el montaje de la caña en MACOR<sup>®</sup> completado, se procedió a tomar medidas en este. La configuración del RedPitaya es igual a la de las mediciones en la caña en G-10, donde se usa solo el boost amplifier en la señal que sale de la caña. En primer lugar, se hicieron barridos con la caña sin muestras puestas. Una de estas mediciones de background se observa en la Figura 5.7. A primera vista, se observa que esta señal presenta una cantidad de ruido considerablemente mayor a la señal de fondo de la caña en G-10 (Figura 4.4). En particular, en la región del espectro entre 1.8MHz y 3MHz, el ruido es tan constante y amplio que se espera que dañe cualquier medición en este rango. Adicional a esto, se observa la presencia de numerosas perturbaciones más aisladas en frecuencias entre 300kHz y 1.8MHz. Estas perturbaciones tienen la misma forma que un pico de resonancia de una muestra, y se repiten de forma consistente a lo largo de diversas mediciones en la misma frecuencia. Entonces, estas perturbaciones podrían ser respuestas de resonancia del adhesivo epóxico con el que se pegaron los cables a las partes superiores de los piezoeléctricos. Finalmente, se destaca que la señal de background cuenta con la misma perturbación grande centrada en la frecuencia de 200kHz. El hecho de que se muestre en mediciones con ambas cañas sugiere que esta es un efecto generado por el RedPitaya y no el montaje experimental en sí.

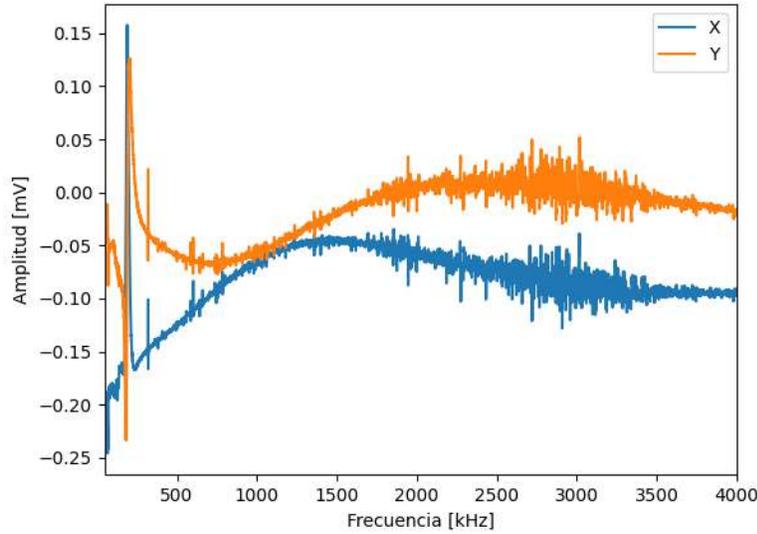
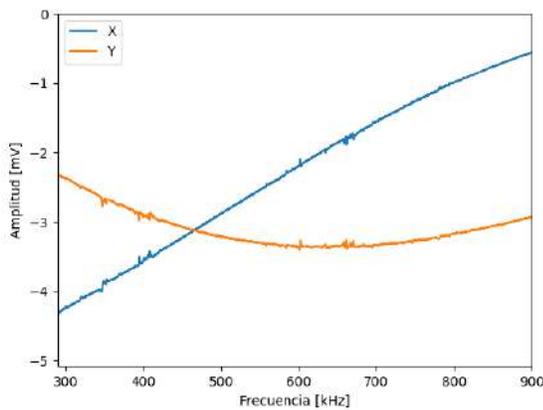
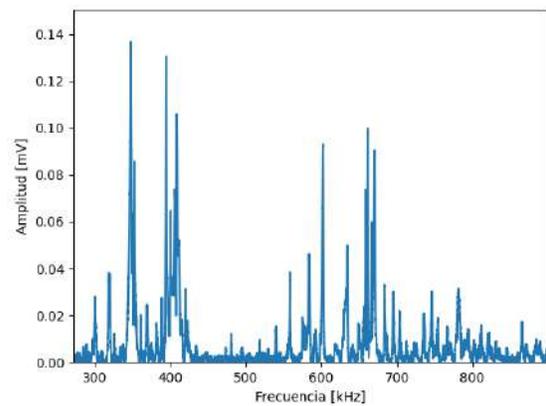


Figura 5.7: Background de la caña en MACOR<sup>®</sup>. Esta señal presenta una cantidad de ruido considerablemente mayor que la obtenida para la caña en G-10.

A pesar de estos problemas, se tomaron medidas en muestras de Si y TaTe<sub>4</sub> al igual que con la caña en G-10. En la Figura 5.8 se observa el espectro obtenido para la muestra A de silicio. En primer lugar, se debe destacar que en esta medición (Figura 5.8a), la señal de background es considerablemente mayor que en las mediciones realizadas con la caña en G-10, siendo del orden de mV en este caso. A pesar de esto, se observan perturbaciones en la señal que, debido a la escala de la Figura, podrían no parecer resonancias. Sin embargo, al procesar la señal y restarle el background (Figura 5.8b), se observa que estas perturbaciones parecen ser resonancias de la muestra. Estas incluso tienen amplitudes similares a las presentadas en la muestra B de silicio tomadas con la caña en G-10 (Figura 5.4b).



(a) Espectro sin procesar.



(b) Espectro procesado.

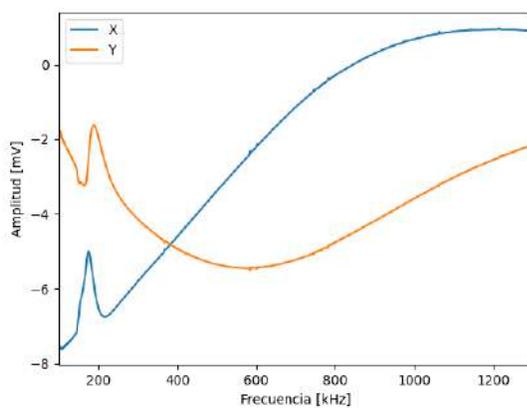
Figura 5.8: Espectro de frecuencias de resonancias medido para la muestra A de silicio usando la caña en MACOR<sup>®</sup>. Se obtienen picos delgados y bien definidos, lo que implica que su factor de calidad es alto. En comparación con los resultados obtenidos con la caña en G-10, en esta medición los picos se observan en un rango de frecuencias más bajo.

Los resultados obtenidos para la muestra de TaTe<sub>4</sub> se presentan en la Figura 5.10. La muestra usada en esta medición es la muestra pulida que se presenta en la Figura 4.2. Su posicionamiento en la caña nueva se observa en la Figura 5.9.

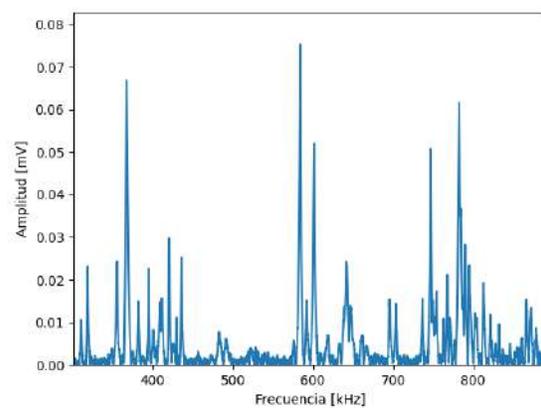


Figura 5.9: Posicionamiento de la muestra pulida de TaTe<sub>4</sub> en la caña en MACOR<sup>®</sup>.

En estas mediciones se observan problemas similares a las mediciones obtenidas para la muestra de Si. Se observa que la señal de background tiene una amplitud del orden de mV, y cuenta con la misma perturbación centrada en 200kHz, que se observa en todas las mediciones, y que es proporcional a la amplitud de la señal de background. Aun así, se presentan perturbaciones en la señal que podrían ser resonancias, pero que debido a la escala de la figura, no se distinguen con facilidad en la Figura 5.10a. Al procesar la señal y restarle el background, se obtiene el espectro que se muestra en la Figura 5.10b. Se observan picos que parecen ser resonancias de la muestra, que nuevamente tienen una amplitud similar a los picos obtenidos en la Figura 5.4b.



(a) Espectro sin procesar.



(b) Espectro procesado.

Figura 5.10: Espectro de frecuencias de resonancias medido para una muestra de TaTe<sub>4</sub> usando la caña en MACOR<sup>®</sup>. En comparación con las mediciones realizadas en la caña en G-10, observan más resonancias con un factor de calidad más alto.

Aun así, realizando un análisis más minucioso de los espectros obtenidos, se observa que algunos de los picos de resonancia obtenidos en estas mediciones se repiten. Estos picos repetidos son los que se observan en la señal de background mostrada en la Figura 5.7. En la Figura 5.11, se hace un acercamiento a tres de estos picos repetidos. El hecho de que sean indistinguibles de las resonancias propias de las muestras representa un problema serio en el montaje experimental.

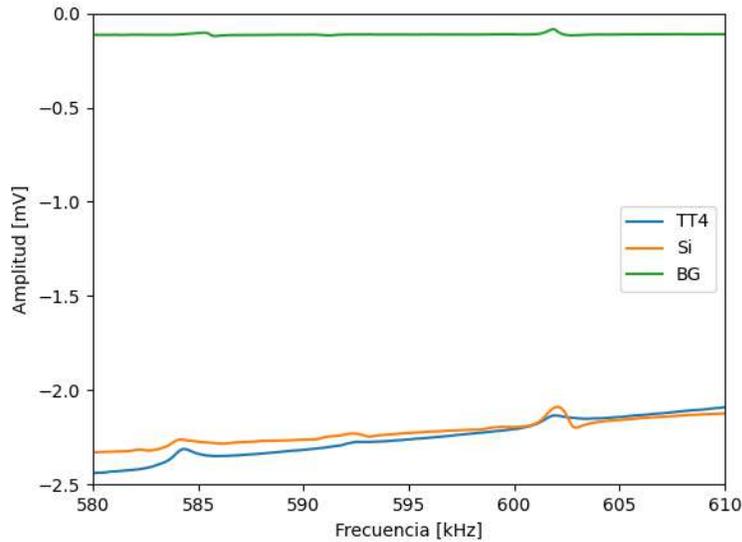
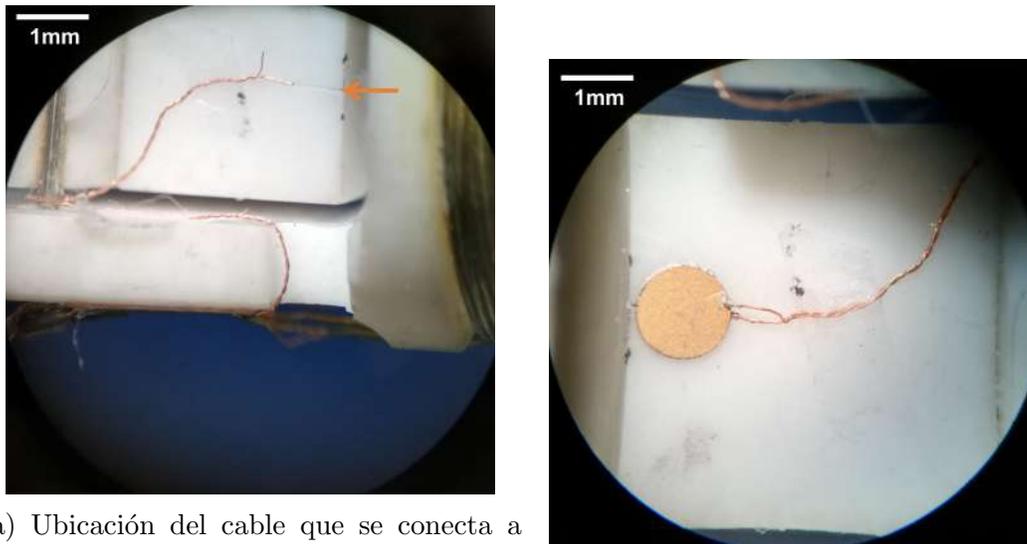


Figura 5.11: Componente en fase de las señales obtenidas para el background, la muestra de silicio, y la muestra de  $\text{TaTe}_4$  usando la caña en MACOR<sup>®</sup>. Se observa la misma perturbación en las tres señales en las frecuencias 584kHz, 593kHz y 602kHz.

### 5.2.1. Correcciones a la caña en MACOR<sup>®</sup>

En un intento por solucionar el problema del ruido y de las resonancias indeseadas en la caña en MACOR<sup>®</sup>, se propuso e implementó un recableado de los transductores piezoeléctricos. En primer lugar, se optó por no usar resina epóxica conductora para realizar las conexiones y pegar los piezoeléctricos. En cambio, se utilizó una pintura de plata, con la cual se espera que se evite la generación de resonancias propias del montaje. En segundo lugar, se intentó reducir el ruido electrónico introducido en la señal cambiando el trenzado de los cables de cobre por uno más denso. Adicionalmente, se modificó la forma en que estos se adhieren al piezoeléctrico con el objetivo de reducir el área que se abre entre los cables cerca del transductor. En vez de abrir los cables y soldarlos a los lados del transductor, se optó por tallar una ranura en el soporte justo debajo de donde va el piezoeléctrico. Dentro de la ranura se ubica uno de los cables trenzados y se pega al soporte con pintura de plata. Encima de este cable se pega el piezoeléctrico, para luego soldar el segundo cable a la parte superior del piezoeléctrico usando más pintura de plata. Este procedimiento se realizó en ambos transductores, y se observa el resultado logrado para el transductor superior en la Figura 5.12.



(a) Ubicación del cable que se conecta a la cara inferior del transductor. La flecha anaranjada señala la ubicación de la ranura donde se introduce una de las puntas del cable trenzado.  
 (b) Configuración final del transductor superior.

Figura 5.12: Imágenes del arreglo implementado en la caña en MACOR<sup>®</sup>. Se talló una ranura en el soporte, dentro de la cual se introduce la punta de uno de los cables. La ranura luego se llena de pintura de plata y se pega el transductor encima de ella. Finalmente, se usa más pintura de plata para soldar el segundo cable a la cara expuesta del transductor. Se presentan solo imágenes del arreglo para el transductor superior, pero para el inferior el resultado es el mismo.

Habiendo implementado el arreglo, se volvió a tomar una medición del background de la caña (sin muestra). El resultado de la medición se presenta en la Figura 5.13. Se observa que no fue posible eliminar todo el ruido y todas las resonancias indeseadas del montaje. Aun así, sí se redujeron estos efectos, por lo que parece que la configuración nueva es mejor que la original. Aun así, al volver a revisar la nueva configuración, se observó que uno de los transductores marca una capacitancia mayor a la esperada, que puede indicar un transductor dañado o una mala conexión en algún punto del montaje. Se sugiere cambiar el piezoeléctrico dañado y volver a realizar mediciones.

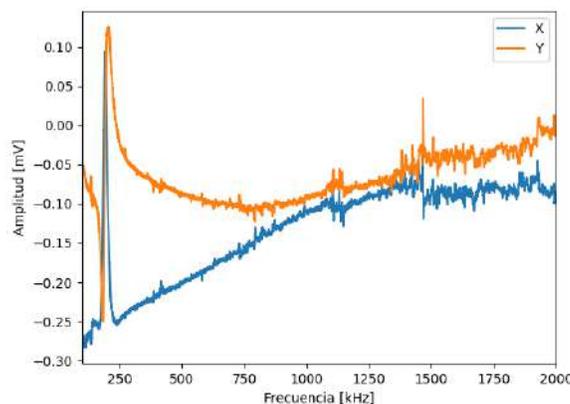


Figura 5.13: Señal de background de la caña en MACOR<sup>®</sup> después de la reconfiguración de los transductores piezoeléctricos.

# Capítulo 6

## Conclusiones

En este trabajo se exploró el proceso de construcción e implementación de un montaje experimental para mediciones de espectroscopía de resonancia ultrasónica en muestras monocristalinas. El método y protocolo de obtención de los espectros se probó en una caña preexistente fabricada en G-10. Con esta caña y el montaje sugerido, se encontraron picos de resonancia para muestras de silicio y de  $\text{TaTe}_4$ . Se observó de primera mano la importancia que tiene la geometría de la muestra a la hora de realizar una medición. Entonces, se justifica que para muestras de las que no se conozca la ubicación aproximada de las resonancias, se pueden hacer pruebas preliminares antes del pulido de la muestra, para así aumentar el ancho de los picos. Así mismo, una muestra pulida y preparada revela una mayor cantidad de resonancias a la vez que aumenta su factor de calidad, lo que refuerza la necesidad de preparar muestras que se quieran usar para obtener espectros definitivos y constantes elásticas. Así mismo, se validó el uso de un RedPitaya como instrumento para correr el experimento y adquirir resultados. Se encontró que con el uso de un amplificador en la salida de la caña es posible un espectro, sin la necesidad del charge amplifier a la entrada del montaje.

Se completó la construcción de la caña fabricada en MACOR<sup>®</sup>, aunque el ruido de las mediciones no permite procesarlas y distinguir resonancias propias de las muestras. Se observó que la configuración propuesta de los transductores piezoeléctricos introduce cantidades importantes de ruido y de resonancias indeseadas. Si bien se implementó una reconfiguración del montaje que aparentemente reduce la cantidad de ruido, esta no fue suficiente para permitir una obtención de datos confiable. Además, se encontró que el uso de Stycast en uniones semi-permanentes (en particular la unión entre el soporte superior y el pivote) no es adecuado, y se recomienda en cambio el uso de GE-Varnish en uniones que se espera deshacer periódicamente para labores de corrección o mantenimiento.

### 6.1. Trabajo futuro

Puesto que el objetivo final de la implementación de este montaje en la universidad es la obtención de las constantes elásticas de un material a distintas temperaturas, todavía hay aspectos del montaje que se deben corregir o verificar. A continuación se presenta una lista con las tareas que se considera que faltan para poder cumplir con el objetivo del montaje.

- Se deben seguir probando arreglos para la caña en MACOR<sup>®</sup>. Se sugiere cambiar el piezoeléctrico que marca una capacitancia mayor y volver a tomar medidas. En caso de que esto no solucione el problema, se puede probar quitar los soportes en MACOR<sup>®</sup> y utilizar transductores en soportes en balsa como los usados en la caña en G-10.

- Se debe probar el sistema de control de temperatura en el crióstato.
- Hace falta realizar mediciones con la caña dentro del crióstato. Actualmente es difícil lograrlo puesto que la muestra se cae cuando se intenta introducir la caña. Se recomienda diseñar y mandar a fabricar un soporte que se ubique encima del crióstato y que facilite el proceso de bajar la caña dentro del crióstato sin movimientos fuertes que puedan tumbar la muestra.
- Es necesario establecer un protocolo para determinar los centros de los picos de resonancia para los datos obtenidos.

# Agradecimientos

En primer lugar, quiero agradecerle a la profesora Paula Giraldo por la ayuda, el apoyo y la orientación que me ha otorgado durante el desarrollo de este proyecto, así como por todo lo que me ha enseñado en el salón de clases y en el laboratorio. Igualmente, extendiendo mis agradecimientos a Don Luis Gómez y al ingeniero Jhony Turizo por la ayuda y asesoría técnica que me prestaron. Y finalmente, le doy las más sinceras gracias a mi familia por la ayuda incondicional que me han dado siempre.

# Bibliografía

- [1] M. Saint-Paul and P. Monceau, “Survey of the thermodynamic properties of the charge density wave systems,” *Advances in Condensed Matter Physics*, vol. 2019, p. 1–14, 2019.
- [2] A. Migliori, J. Sarrao, W. M. Visscher, T. Bell, M. Lei, Z. Fisk, and R. Leisure, “Resonant ultrasound spectroscopic techniques for measurement of the elastic moduli of solids,” *Physica B: Condensed Matter*, vol. 183, no. 1-2, p. 1–24, 1993.
- [3] F. F. Balakirev, S. M. Ennaceur, R. J. Migliori, B. Maiorov, and A. Migliori, “Resonant ultrasound spectroscopy: The essential toolbox,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 90, no. 12, 2019.
- [4] S. Ghosh, A. Shekhter, F. Jerzembeck, N. Kikugawa, D. A. Sokolov, M. Brando, A. P. Mackenzie, C. W. Hicks, and B. J. Ramshaw, “Thermodynamic evidence for a two-component superconducting order parameter in  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ ,” *Nature Physics*, vol. 17, no. 2, p. 199–204, 2020.
- [5] J. B. Betts, A. Migliori, G. S. Boebinger, H. Ledbetter, F. Galli, and J. A. Mydosh, “Complete elastic tensor across the charge-density-wave transition in monocrystal  $\text{Lu}_5\text{Ir}_4\text{Si}_{10}$ ,” *Physical Review B*, vol. 66, no. 6, 2002.
- [6] A. Shekhter, B. J. Ramshaw, R. Liang, W. N. Hardy, D. A. Bonn, F. F. Balakirev, R. D. McDonald, J. B. Betts, S. C. Riggs, A. Migliori, and et al., “Bounding the pseudogap with a line of phase transitions in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ ,” *Nature*, vol. 498, no. 7452, p. 75–77, 2013.
- [7] J. N. Reddy, *An introduction to continuum mechanics*. Cambridge University Press, 2013.
- [8] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid state physics*. Harcourt College Publishers, 1976.
- [9] Y. Hernández, *Implementación de un experimento de Espectroscopía de Resonancia Ultrasónica en la Universidad de los Andes*. Universidad de los Andes, 2020.
- [10] F. F. Balakirev, “Resonance spectrometer,” 2021.
- [11] F. Giraldo, *Implementation of Machine Learning strategies in Resonant Ultrasound Spectroscopy*. Universidad de los Andes, 2021.