

ESTUDIO DE LA MIGRACIÓN DEL BORDE DE GRANO EN HIELO CON UNA GEOMETRÍA TIPO U

Druetta E., Di Prinzio C. L., Nasello O. B.

Facultad de Matemática Astronomía y Física (FaMAF) Medina Allende s/n ciudad Universitaria (5000) Córdoba.
CONICET.

e-mail:carlosdiprinzio@gmail.com

Se estudió la movilidad de un borde de grano en una muestra bicristalina ($\langle 10\bar{1}0 \rangle / 65^\circ$) con geometría semicircular en hielo a una temperatura de $1.5^\circ C$. Los resultados muestran que el movimiento del borde de grano (BG) experimenta un frenado debido a la interacción del BG con la superficie libre. La configuración elegida para la muestra bicristalina es por primera vez estudiada en hielo y presenta algunas ventajas frente a otras configuraciones utilizadas en trabajos previos.

Palabras Clave: Borde de grano, hielo, crecimiento de grano

In this paper we studied the grain boundary mobility of an U-shaped ice bicrystal sample ($\langle 10\bar{1}0 \rangle / 65^\circ$) at a constant temperature of $1.5^\circ C$. Our results show that the grain boundary (GB) suffers a dragging effect own to the interaction between the free surface and GB. This is the first study of a U-shaped bicrystal in ice, and it shows several advantages over other configurations investigated in previous works.

Key Words: Grain Boundary, ice, grain growth

1. INTRODUCCIÓN.

El crecimiento de grano (CG) en hielo polar ha sido estudiado por muchos autores^[1] y el mismo depende de la edad del hielo y de muchos factores como impurezas, burbujas, recristalización, etc. La movilidad de los bordes de grano (GB) en hielo es un parámetro importante en el CG y su determinación experimental a diferentes condiciones es muy complicada y escasa. Varios investigadores^[2-5] han estudiado por décadas la migración de BG en bicristales de hielo usando diferentes configuraciones de los mismos y en diferentes condiciones físicas.

La mayoría de los procesos que involucran el movimiento de los BG asumen que la velocidad de los mismos v es directamente proporcional a la fuerza impulsora F

$$v = MF \quad (1)$$

donde la constante de proporcionalidad M es la movilidad intrínseca del BG^[6]. En el caso de migración de grano orientada por la curvatura, donde la disminución de la energía libre del sistema está asociada con una reducción del área del BG la relación (1) se modifica

$$v = Myk \quad (2)$$

donde γ es la energía del BG por unidad de superficie y k es la curvatura del borde. En este trabajo se estudió la configuración semicircular donde la curvatura es igual al radio del semicírculo ($k = 2/d$) y se mantiene aproximadamente constante durante toda la experiencia (ver fig. 1). A medida que el punto máximo o *vértice* de la semicircunferencia migra, los costados rectos del

BG se mantienen prácticamente paralelos, permaneciendo constante la longitud de la curva. Esta configuración no ha sido estudiada en hielo artificial^[2-5] pero la misma se ha implementado en metales de alta pureza (como Al, Sn y Zn^[7]) y ha permitido minimizar los efectos de frenado que se generan en la superficie debido a la formación de la cavadura o *cuña* característica que aparece en la intersección del BG con la superficie libre, denominada "*groove*"; y así observar un movimiento del BG a velocidad constante.

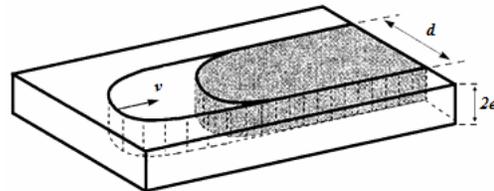


Figura 1: Forma de la muestra de hielo. El extremo es aproximadamente semicircular

Aristov et al.^[8], usando los resultados obtenidos por Mullins^[9], estudiaron el efecto del "*groove*" en el movimiento del BG; ellos observaron que mientras el borde permanezca en una superficie plana puede moverse libremente, y a medida que el "*groove*" se va formando, el avance del BG es frenado, luego la parte central del "*groove*" comienza a separarse del BG. De esta manera el BG gana nuevamente la superficie plana y el movimiento libre, hasta que vuelva a formarse el "*groove*", repitiéndose el mismo proceso en períodos similares. Aristov et al.^[8] determinaron que dentro del período de tiempo comprendido entre dos sucesivas

separaciones (o tiempo crítico τ como lo definiremos más adelante), la ec. de movimiento para el borde es

$$v(t) = M^* F \quad (3)$$

con M^* (que podemos llamar movilidad reducida, debido a la presencia del "groove") dada por

$$M^* = \frac{M}{1 + \frac{M}{A \cdot e}} \quad (4)$$

donde $v(t)$ es la velocidad normal al BG, F es la fuerza impulsora, $2e$ es el ancho de la muestra y A es la movilidad del "groove". A depende del mecanismo involucrado en la formación del "groove" (esto es si se trata de difusión superficial o evaporación condensación), de la forma del "groove" y del tiempo. Para el caso en que la formación del "groove" está gobernada por difusión superficial^[8], la movilidad es

$$A^{diff} (t) = \frac{4}{\theta_c^2 \sigma_s} \left(\frac{D_s v \Omega^2}{kT} \right) t^{-3/4} = c_1 t^{-3/4} \quad (5)$$

donde $\theta_c = \arccos \left(\frac{\gamma}{2\sigma_s} \right)$ con γ como se definió en la ec. (2); Ω es el volumen atómico, σ_s es la tensión superficial, m es la masa molecular expresada en gramos, k es la constante de Boltzmann, T la temperatura y t el tiempo.

Luego podemos encontrar la ecuación de movimiento del vértice del BG integrando (4) en la que debemos reemplazar A por su expresión de la ec. (5), de esta manera

$$x(t) = \frac{8MY}{\alpha d} \left\{ \alpha t^{1/4} - \frac{1}{6} \ln \left[\frac{(1 + \alpha t^{1/4})^2}{1 + (\alpha t^{1/4})^3} \right] - \frac{1}{\sqrt{3}} \left[\arctan \left(\frac{2\alpha t^{1/4} - 1}{\sqrt{3}} \right) + \frac{\pi}{6} \right] \right\}$$

donde $\alpha = \left(\frac{M}{e \tau_c} \right)^{1/3}$, e es el semiancho de la muestra, M es la movilidad del BG y c_1 se define en la ec. (5). El tiempo crítico que nombramos antes es $\tau = \alpha^{-4}$.

En este trabajo se estudia por primera vez la migración de un bicristal con la configuración semicircular en hielo puro bajo la influencia de la superficie libre. La principal ventaja observada con esta geometría frente a la configuración de Sun y Bauer utilizada en otros trabajos^[2-5] es que la movilidad no es tan dependiente de las técnicas de preparación de la muestra (como por ejemplo el tipo de corte, pulido o imperfecciones en la superficie libre entre otras)

II. PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL.

Una muestra bicristalina de hielo puro fue cortada con la geometría mostrada en la fig. 1, es decir forma de "U", o semicircular. La muestra se colocó dentro de una cápsula chata cilíndrica de bronce con ventanas

transparentes en las tapas (fig. 2), y se mantuvo a -1.5°C a través de una celda Peltier. Una cámara controlada por software, adaptada al microscopio, permite la obtención de fotografías con la frecuencia deseada. Las distancias que recorre el BG se miden directamente de las fotografías digitales.



Figura 2: Muestra del bicristal utilizado en escala 1:1. Las orientaciones distintas de cada monocristal pueden verse gracias al uso de polaroids

Este dispositivo experimental (fig. 3) tiene de novedoso que, a diferencia de los utilizados anteriormente por Di Prinzio y col.^[2-5], permite estudiar las muestras de hielo con los equipos a temperatura ambiente.

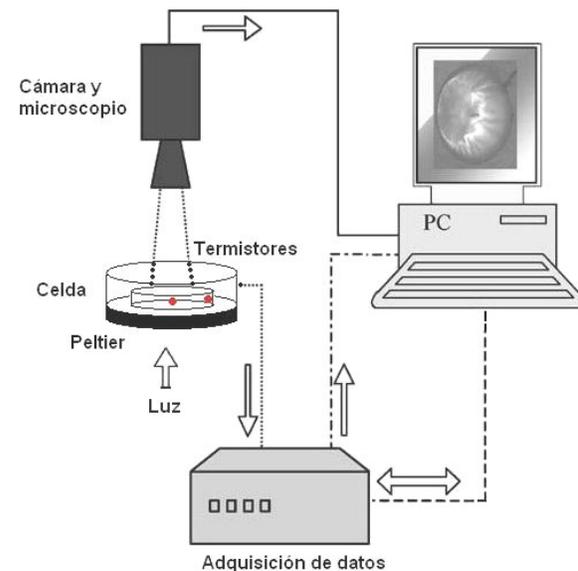


Figura 3: Esquema del dispositivo experimental utilizado

III. RESULTADOS EXPERIMENTALES.

Se tomaron fotografías del borde cada 5 minutos durante 9 horas, aproximadamente, resultando no lineal la velocidad del BG.

En el gráfico (fig. 4) se puede observar la curva desplazamiento del vértice del BG en función del tiempo, este avance está frenado debido a la presencia del "groove".

$$\tau = (90.50 \pm 0.50) \text{min} \quad (8)$$

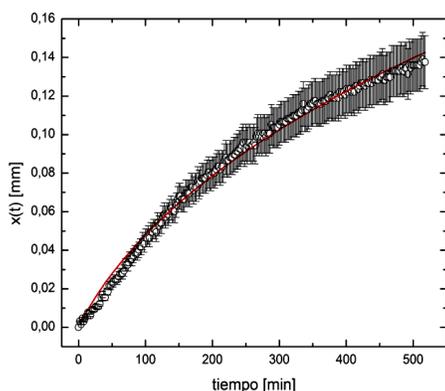


Figura 4: Desplazamientos relativos del BG con respecto del tiempo con su respectivo error. La curva en rojo representa el ajuste de los datos de acuerdo con la ec. (6)

Por observación directa de la superficie del hielo en distintas muestras sometidas a las mismas condiciones ambientales sabemos que coexiste una delgada capa de agua en estado líquido, lo cual determina que el proceso que predomina en la formación del “groove” es la difusión superficial.

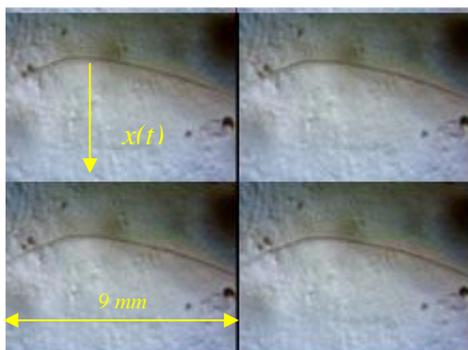


Figura 5: Evolución del extremo del borde de grano. Imágenes tomadas cada una hora con un aumento de 10x. Se puede observar la reducción de la superficie del sector con forma de U cuando aumenta la coordenada $x(t)$ del vértice del BG.

Los datos obtenidos se ajustaron de acuerdo con la ec. (6) y los parámetros que dependen de las propiedades intrínsecas del material resultantes de dicho ajuste son

$$M\gamma = (2.24 \pm 0.07)10^{-11} \text{m}^2/\text{s} \quad (7)$$

el cual está en concordancia con los valores obtenidos por otros autores^[5]; y el tiempo crítico o tiempo en el que el BG se mueve libremente

con lo cual podemos decir que el bicristal se encuentra frenado por el “groove” durante las nueve horas de observación.

La forma de la curva refleja los efectos de frenado provocados por la presencia del “groove” y los mismos no se han evitado con esta geometría distinta a la de Sun y Bauer^[10]. Sin embargo el BG experimentó movimiento al iniciarse el experimento ya que no depende mayormente de las imperfecciones del pulido de la superficie, cortes realizados para adaptar la configuración, etc.

IV. CONCLUSIONES.

En este trabajo se estudió la migración de un BG en muestras de hielo utilizando un novedoso arreglo experimental que permite mantener a temperatura ambiente los equipos de control. Por otro lado la muestra a diferencia de trabajos anterior tuvo una configuración semicircular. Esta configuración permite no depender de las técnicas de procesamiento y su estado final de la muestra como lo hacia la configuración de Sun y Bauer. Los valores experimentales hallados en este experimento son compatibles con los obtenidos por otros autores.

Referencias.

- 1- C. L. Di Prinzio, L. A. Wilen, R.B. Alley, J.J. Fitzpatrick and M. K. Spencer, *Journal of Glaciology*, **51**, 281-290, (2005).
- 2- M. Herrera, C. L. Di Prinzio y O. B. Nasello *Anales AFA*, **13**, 153-157 (2001).
- 3- C.L. Di Prinzio y O.B. Nasello, *Journal of Physical Chemistry B.*, **101**, 7687-7690, (1997).
- 4- O. B. Nasello, C. L. Di Prinzio, P.G. Guzmán. *J. Phys.: Condens. Matter*, **19**, 246-218 (2007).
- 5- O. B. Nasello, B. J. Gonzalez Kriegel, y C. L. Di Prinzio, *Anales AFA* (2007).
- 6- V. Y Aristov, V. Y., Fridman, Y. M.y Shvindlerman, L.S., *Physics Metals Metallogr.* **35**, 859, (1973)
- 7- G. Gottstein, and L. S Shvindlerman, *Scripta Mater.*, **27**, 1521, (1992).
- 8- V. Y Aristov, V. E. Fradkov and L. S Shvindlerman. *Soviet Phys. Solid St.*, **22**, 1055, (1980).
- 9- W. W. Mullins, *J. Appl. Phys.* **28**, 333 (1957).
- 10- C. L. Di Prinzio, O. B. Nasello. *Scripta Mater.*, **39**, 1617-1622 (1998).

Agradecimientos.

Los autores agradecen la colaboración del Ing. Walter Zanineti en los detalles electrónicos y a los técnicos José Barcelona y Raúl Salazar en la construcción y operabilidad del equipamiento usado. Este trabajo fue hecho con fondos de la SeCyT-UNC.

$$\tau = (90.50 \pm 0.50) \text{min} \quad (8)$$

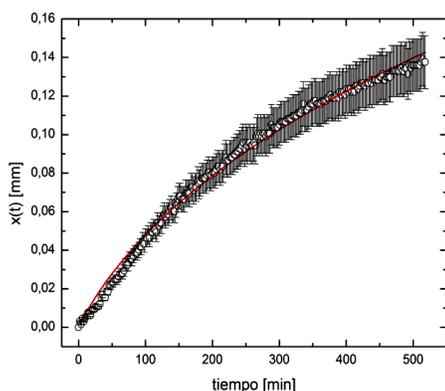


Figura 4: Desplazamientos relativos del BG con respecto del tiempo con su respectivo error. La curva en rojo representa el ajuste de los datos de acuerdo con la ec. (6)

Por observación directa de la superficie del hielo en distintas muestras sometidas a las mismas condiciones ambientales sabemos que coexiste una delgada capa de agua en estado líquido, lo cual determina que el proceso que predomina en la formación del “groove” es la difusión superficial.

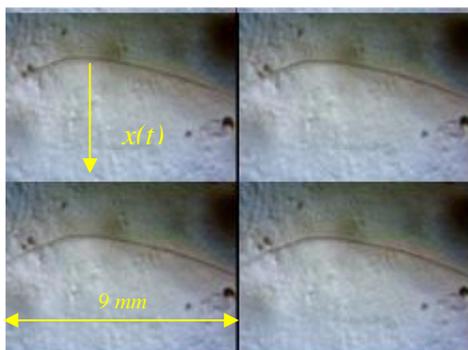


Figura 5: Evolución del extremo del borde de grano. Imágenes tomadas cada una hora con un aumento de 10x. Se puede observar la reducción de la superficie del sector con forma de U cuando aumenta la coordenada $x(t)$ del vértice del BG.

Los datos obtenidos se ajustaron de acuerdo con la ec. (6) y los parámetros que dependen de las propiedades intrínsecas del material resultantes de dicho ajuste son

$$M\gamma = (2.24 \pm 0.07)10^{-11} \text{m}^2/\text{s} \quad (7)$$

el cual está en concordancia con los valores obtenidos por otros autores^[5]; y el tiempo crítico o tiempo en el que el BG se mueve libremente

con lo cual podemos decir que el bicristal se encuentra frenado por el “groove” durante las nueve horas de observación.

La forma de la curva refleja los efectos de frenado provocados por la presencia del “groove” y los mismos no se han evitado con esta geometría distinta a la de Sun y Bauer^[10]. Sin embargo el BG experimentó movimiento al iniciarse el experimento ya que no depende mayormente de las imperfecciones del pulido de la superficie, cortes realizados para adaptar la configuración, etc.

IV. CONCLUSIONES.

En este trabajo se estudió la migración de un BG en muestras de hielo utilizando un novedoso arreglo experimental que permite mantener a temperatura ambiente los equipos de control. Por otro lado la muestra a diferencia de trabajos anterior tuvo una configuración semicircular. Esta configuración permite no depender de las técnicas de procesamiento y su estado final de la muestra como lo hacia la configuración de Sun y Bauer. Los valores experimentales hallados en este experimento son compatibles con los obtenidos por otros autores.

Referencias.

- 1- C. L. Di Prinzio, L. A. Wilen, R.B. Alley, J.J. Fitzpatrick and M. K. Spencer, *Journal of Glaciology*, **51**, 281-290, (2005).
- 2- M. Herrera, C. L. Di Prinzio y O. B. Nasello *Anales AFA*, **13**, 153-157 (2001).
- 3- C.L. Di Prinzio y O.B. Nasello, *Journal of Physical Chemistry B.*, **101**, 7687-7690, (1997).
- 4- O. B. Nasello, C. L. Di Prinzio, P.G. Guzmán. *J. Phys.: Condens. Matter*, **19**, 246-218 (2007).
- 5- O. B. Nasello, B. J. Gonzalez Kriegel, y C. L. Di Prinzio, *Anales AFA* (2007).
- 6- V. Y Aristov, V. Y., Fridman, Y. M.y Shvindlerman, L.S., *Physics Metals Metallogr.* **35**, 859, (1973)
- 7- G. Gottstein, and L. S Shvindlerman, *Scripta Mater.*, **27**, 1521, (1992).
- 8- V. Y Aristov, V. E. Fradkov and L. S Shvindlerman. *Soviet Phys. Solid St.*, **22**, 1055, (1980).
- 9- W. W. Mullins, *J. Appl. Phys.* **28**, 333 (1957).
- 10- C. L. Di Prinzio, O. B. Nasello. *Scripta Mater.*, **39**, 1617-1622 (1998).

Agradecimientos.

Los autores agradecen la colaboración del Ing. Walter Zanineti en los detalles electrónicos y a los técnicos José Barcelona y Raúl Salazar en la construcción y operabilidad del equipamiento usado. Este trabajo fue hecho con fondos de la SeCyT-UNC.