

MÉTODO EXPERIMENTAL PARA DETERMINAR EL "GROOVE" DEL BORDE DE GRANO EN MUESTRAS DE HIELO

C. L. Di Prinzio, J. R. Lenton, B. J. Gonzalez Kriegel, y O. B. Nasello.

Facultad de Matemática, Astronomía y Física de la Universidad Nacional de Córdoba.
Medina Allende y Haya de la Torre, Ciudad Universitaria, (5000) Córdoba, Argentina.
carlos@roble.fis.uncor.edu

Algunos autores han medido la energía absoluta del borde de grano en hielo mediante el estudio del groove que se forma en el mismo. Para ello emplearon métodos experimentales que atacan la superficie del hielo térmicamente y/o químicamente mediante el método de la réplica plástica, o bien contaminan la superficie del hielo colocando sobre la misma películas metálicas delgadas. En este trabajo se presenta un método que permite estudiar cualitativamente el groove de un borde de grano sin producir ningún cambio en la muestra de hielo y sin impedir continuar con la observación de la misma. El método se basa en un análisis digital de las imágenes del groove del borde de grano obtenidas por fotografías ópticas en campo oscuro. Esta técnica experimental permite comparar cualitativamente la profundidad del groove en distintas zonas de un mismo bicristal. Los resultados obtenidos pueden ser aplicados al estudio de la posible influencia del groove en el movimiento de los límites de grano.

Some authors have measured the absolute grain boundary energy in ice by studying the groove formed in the ice grain boundary. To do this they used experimental methods that attack the ice surface chemically or thermally using the plastic replica method, or else by contaminating the surface of the ice by placing thin metallic films on it. In this paper we present a method that allows a qualitative analysis of the grain boundary groove without producing any changes in the ice sample and without interfering a continued observation. This method is based on a digital analysis of the grain boundary groove images obtained from optical microscope photography on a dark field. This experimental technique allows a qualitative comparison of the groove deepness over different zones of the same bicrystal. The results can be applied to the study of the groove's influence on grain boundary limits movement.

I. INTRODUCCIÓN

El cavamiento superficial que se forma en una muestra cristalina en la región donde el borde de grano interseca a la superficie libre de la muestra ("groove"), puede formarse por efecto de evaporación-condensación o por difusión de los átomos superficiales en la muestra bicristalina. En ambos casos la profundidad y ancho del "groove" dependen de γ_{sm} y de γ_{bg} . (donde γ_{bg} es la energía superficial del borde de grano, γ_{sm} es la energía superficial entre el cristal, s , y el medio, m) (Mullins W.W. 1957¹). Muchos autores midieron la energía del borde de grano para diferentes condiciones físicas en distintos materiales, estudiando el "groove" formado en el mismo.

Ketchman W. M. y Hobbs P. (1969)² midieron la energía del borde de grano en hielo para distintas orientaciones cristalinas, estudiando el "groove" mediante un microscopio interferométrico. Para ello realizaron réplicas plásticas con Formvar de la superficie del hielo donde estaba el borde de grano y luego aplicaron un plateado sobre dicha réplica, a fin de convertirla en una superficie reflectante. Las réplicas plásticas con Formvar tienen en general irregularidades producidas por el ataque térmico y químico; dichas réplicas son plateadas y al ser estudiadas por métodos interferométricos producen un patrón distorsionado de interferencia. Para evitar esta desventaja, Suzuki S. y Kuroiwa D. (1972)³ emplearon un nuevo método que consistía en colocar una delgada película de bronce de 0,3 μ m de espesor sobre el hielo y aplicar una presión con un paño limpio sobre la misma, quedando replicada la superficie del hielo y el borde de grano. Esta técnica permitió observar el groove por medio de micros-

copía interferométrica sin distorsiones pero produciendo contaminación y deformación sobre la muestra de hielo.

A diferencia de los trabajos previos, en este trabajo se presenta un método experimental para determinar características cualitativas del "groove" de borde de grano, que no afecta—por ejemplo mediante contaminación o deformación—a la muestra estudiada. Esta técnica se basa en el análisis de fotografías obtenidas con microscopio óptico en campo oscuro. El método experimental permite, entre otras cosas, caracterizar el groove durante la migración del límite de grano y estudiar el efecto de frenado del mismo. Además al conocer las características geométricas del groove se puede individualizar la dependencia de la energía del borde de grano con la desorientación cristalina y la inclinación del borde de grano, y su relación con la movilidad de los mismos.

II. MÉTODO EXPERIMENTAL

Se obtuvieron bicristales de hielo siguiendo el método descrito por Di Prinzio y col. (1992)⁴ a partir de agua ultrapura (conductividad eléctrica 0,33 μ S). Los bicristales eran de tipo tilt obtenidos por una rotación de 60° alrededor del eje $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ ($\langle 10\bar{1}0 \rangle / 60^\circ$). Antes de preparar las muestras, el bicristal fue fotografiado y se armó un mosaico del borde de grano y sus vecindades. Luego se cortaron tres partes del mismo perfectamente individualizadas en el mosaico anterior. De una de ellas se obtuvo una réplica plástica (Nasello 1987⁵) que se ubicó correctamente en un portaobjeto respetando la orientación de dicha parte respecto del bicristal. Con las otras partes se prepararon dos

muestras bicristalinas, siguiendo el método descrito por Di Prinzio y col. (1995)⁶, teniendo en cuenta en todo momento sus ubicaciones en el bicristal. De esta manera se pudo determinar la ubicación de los ejes cristalinicos principales en cada muestra y la ubicación del borde de grano respecto a los mismos.

Estos bicristales fueron puestos en aceite de siliconas y recocidos 900 horas a una temperatura de -5°C . Durante este lapso el borde de grano había avanzado en la forma que se ve en la figura 1 y el groove se formó en todos ellos. Al final de la etapa de migración, sin retirar la muestra del aceite de siliconas, se obtuvieron fotografías del groove en las dos partes del borde de grano donde el mismo se curva e interseca la superficie libre de la muestra bicristalina, utilizando un microscopio óptico con ampliación $20\times$ y mediante campo oscuro (luz no directa). Una de estas fotografías se muestra en la figura 2a.

Cada una de estas fotografías fueron digitalizadas utilizando un scanner Microtek y el programa PhotoShop. En la figura 2b se muestra un ejemplo de las fotos digitalizadas. En estas imágenes se trazaron sobre el contorno del borde de grano segmentos tangentes al mismo, como se muestra en la figura 2c.

Definiendo como *intensidad* en un punto de la fotografía al porcentaje de negro que había en ese punto en la imagen digitalizada, se midieron una serie de perfiles de intensidad en forma perpendicular a cada uno de los segmentos tangentes al borde de grano. Para ello se tomaron 5 valores de intensidad espaciados una distancia de 0,05mm hacia cada lado del borde de grano, más el valor en el borde de grano mismo. La variable espacial perpendicular al borde de grano se denominó "x". Para cada borde de grano se determinaron los ángulos β que se forman entre el eje \bar{c} del cristal que disminuye su volumen (cristal 1 en la figura 1) y la tangente al mismo en las dis-

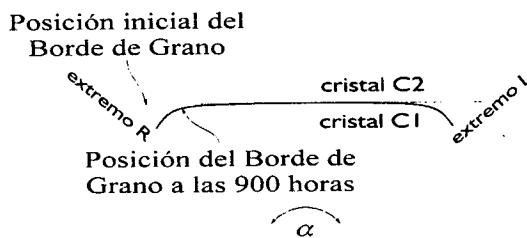


Figura 1: Bicristal representativo con dos posiciones inicial y final del borde de grano.

tintas zonas de la muestra. Estos ángulos fueron determinados con un error de 5° aproximadamente, utilizando el mosaico de cada bicristal y la réplica plástica correspon-

TABLA 1: VALORES DE INTENSIDAD O PORCENTAJE DE NEGRO PARA EL LADO R CON $\beta = 90^{\circ}$

		Coord. normal al BG [0.05mm]										
		-5	-4	-3	-2	-1	0	1	2	3	4	5
Intens. [%]		9	9	11	14	11	9	25	32	24	27	32
		22	25	20	20	20	13	17	26	25	32	29
		24	19	22	35	33	14	30	34	40	40	42
		37	36	38	35	27	15	37	37	38	49	45
		24	22	26	24	24	20	43	32	37	31	37

diente.

A modo de ejemplo en la tabla 1 se presentan una serie de estas mediciones de intensidad normales al borde de grano correspondientes a $\beta = 90^{\circ}$. Como se puede observar en esta tabla, hay una gran fluctuación entre los valores de intensidad correspondientes a una línea normal y a otra. Este defecto, que es debido a un efecto fotográfico, fue corregido como se detalla a continuación.

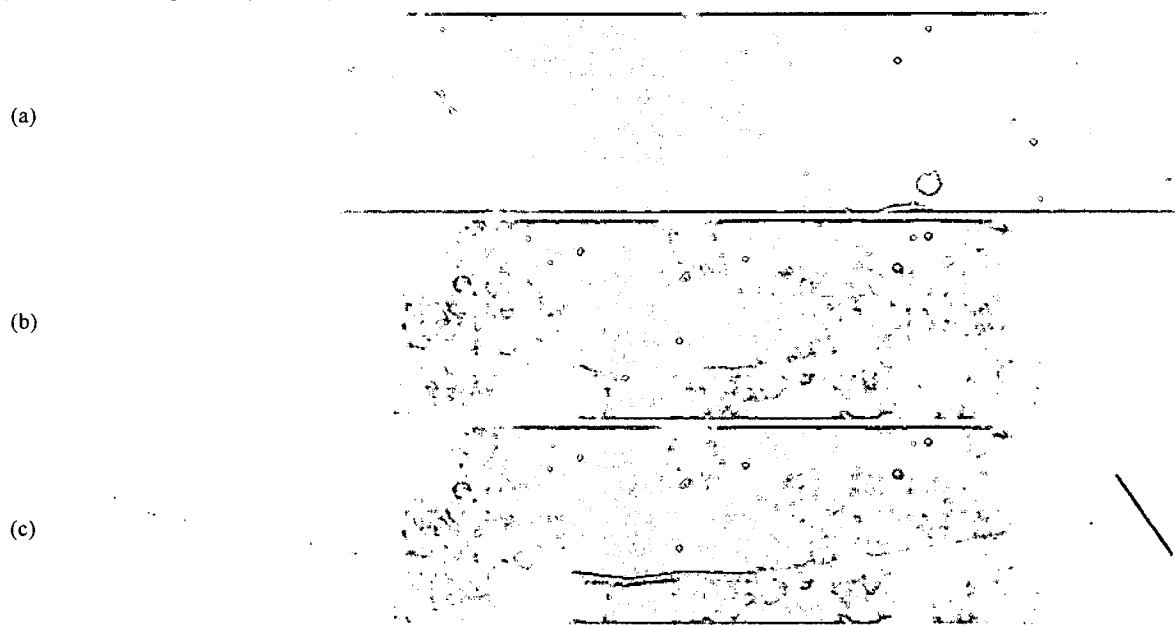


Figura 2: a) Fotografía del extremo L de la muestra bicristalina con desorientación cristalina $\langle 10\bar{1}0 \rangle / 60^{\circ}$. b) Imagen digitalizada de la fotografía presentada en a). c) Imagen idéntica a b) donde además se ven las tangentes y los puntos donde se midieron los perfiles.

Agrupamos los datos correspondiente a cada β en una matriz, de 11 columnas por n filas, N_{ij} , ($i = 0, \dots, n$; $j = -5, \dots, 5$) y calculamos el promedio de los datos en cada fila,

$$\tilde{N}_i = \frac{1}{11} \sum_{j=-5}^5 N_{ij}, \quad (1)$$

luego dividimos cada valor por el promedio de las mediciones en esa línea normal,

$$I_{ij} = \frac{N_{ij}}{\tilde{N}_i}, \quad (2)$$

finalmente promediamos estos valores 'normalizados' entre todas las mediciones,

$$\tilde{I}_j = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n I_{ij}. \quad (3)$$

Posteriormente, por propagación de errores, se calculó el error en la determinación de \tilde{I}_j , ($\Delta\tilde{I}_j$), considerando que todas las mediciones tienen el mismo error ΔN ,

$$\Delta\tilde{I}_j = \frac{\Delta N}{n} \sqrt{\sum_{i=1}^n \frac{1}{\tilde{N}_i^2} \left[1 + \frac{1}{11} \left(\frac{N_{ij}}{\tilde{N}_i} \right)^2 \right]}. \quad (4)$$

A fin de poder verificar la validez de los resultados encontrados para el "groove" en las muestras bicristalinas se procedió a obtener fotografías de los mismos mediante un microscopio electrónico de barrido (MEB). Para ello, las muestras fueron sacadas del aceite de siliconas, lavadas

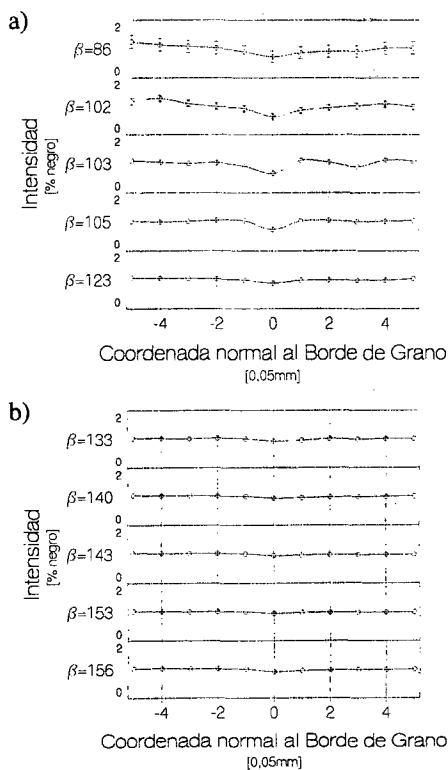


Figura 3: Perfiles del groove para cada valor de β medido. a) lado R; b) lado L.

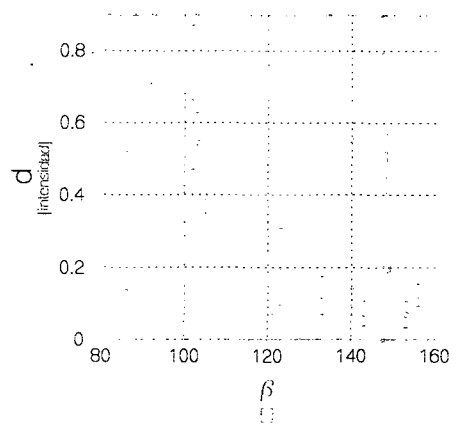


Figura 4: Profundidad en función del ángulo β

con exano y replicadas siguiendo el método anteriormente descrito. Las réplicas plásticas fueron metalizadas para ser observadas con el MEB.

En estas fotografías se observa el borde de grano con el groove, un cierto patrón de surcos y cavaduras producidos por el ataque térmico y químico que revela la orientación del eje cristalino \bar{c} y las dislocaciones presentes en la muestra respectivamente. De esta manera se puede determinar los valores de β , a fin de poder comparar estos resultados con los obtenidos por medio del microscopio óptico. Los valores de β se determinaron con un error de 3° a 8° dependiendo de la distribución de surcos.

III. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

Los valores de β medidos se encuentran entre $133^\circ \pm 5^\circ$ y $156^\circ \pm 5^\circ$ en el lado de la muestra que llamamos L. En el otro lado, al que llamamos R, estos valores se encuentran entre $86^\circ \pm 5^\circ$ y $123^\circ \pm 5^\circ$. En las figuras 3 a y b se presentan para los lados R y L, respectivamente, los valores \tilde{I} en función de x que corresponden a todos los valores de β medidos.

Para visualizar mejor el groove, a partir de estos perfiles se calculó la diferencia entre el máximo y el mínimo valor de \tilde{I} . Los resultados obtenidos se muestran en función del ángulo β en la figura 4.

En los gráficos de la figura 3, se puede ver que para ángulos β entre 86° y 123° (figura 3a), los perfiles tienen un groove muy marcado. En la fig 3b, sin embargo, vemos que para los ángulos β entre 133° y 156° el groove es menos marcado. Esta diferencia se aprecia mejor en el gráfico 4. Por lo tanto podemos decir que en general, dentro de los errores experimentales, el lado R tiene mayor groove que el lado L.

Algunas de las fotografías obtenidas con MEB se muestran en la figura 5. Las figuras 5a y b corresponden, respectivamente, a regiones de la muestra con $\beta = 116^\circ \pm 3^\circ$ (lado R) y con $\beta = 127^\circ \pm 8^\circ$ (lado L). En estas fotografías se puede observar que el tamaño del groove correspondiente a $\beta = 116^\circ \pm 3^\circ$ es mayor que para $\beta = 127^\circ \pm 8^\circ$, en concordancia con lo observado en las figuras 3 y 4.

Vemos así que las características del groove del borde de grano obtenidas por el método óptico desarrollado son corroboradas mediante las fotografías del microscopio electrónico. Por lo tanto se puede concluir que el método desarrollado permite caracterizar cualitativamente el tamaño del groove a lo largo de todo un borde de grano, y en consecuencia estudiar su posible influencia en la migración de las distintas partes del mismo borde de grano.

IV. AGRADECIMIENTOS

Este trabajo ha sido realizado con el apoyo de CONICET y SECYT-UNC, CONICOR y fundación Antorchas. Se agradece a la Ing. Patricia Olivera, por el apoyo técnico con el MEB del CIMM-INTI.

- 1 - Mullins W.W. J.Appl.Physics, **28**(5), 333 (1957).
- 2 - Ketchman W.M. y Hobbs P. Phyl.Mag., **19**(162), 1161 (1969).
- 3 - Suzuki S. y Kuroiwa D. J.Glaciology, **11**(62), 265 (1972).
- 4 - Di Prinzio C.L. y Nasello O.B. Anales de la Asociación Física Argentina, **IV**, 300 (1992)
- 5 - Nasello O.B. Tesis Doctoral. Facultad de Matemática Astronomía y Física de la Universidad Nacional de Córdoba (1987).
- 6 - Di Prinzio C.L., Nasello O.B. y Gonzalez Kriegel B.J. Scripta Metall. **33**(12), 1889 (1995).

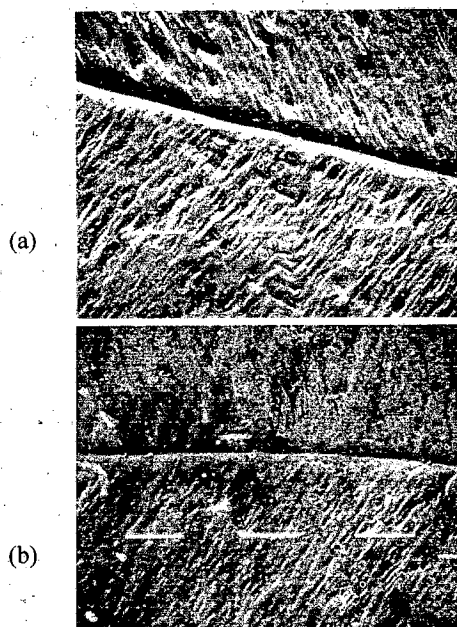


Figura 5: Fotografías con MEB de la muestra bicristalina.

(a) $\beta = 116^\circ \pm 3^\circ$ y (b) $\beta \in [121^\circ \pm 8^\circ; 127^\circ \pm 5^\circ]$