

MIGRACION DE LIMITES DE GRANO EN HIELO II: ESTUDIO EN POLICRISTALES

L. E. Arena*, O. B. Nasello**, y E. A. Ceppi***

Facultad de Matemáticas, Astronomía y Física, Universidad Nacional de Córdoba, Laprida 854, 5000 Córdoba

Se estudia el crecimiento de grano en policristales de hielo ultrapuro (concentraciones de impurezas solubles menores que 0,02 ppm) obtenidos a partir de una transformación de fase sólido-sólido realizada a -80°C y una presión de 10 Kbar.

Se realizan experiencias de recocidos isotérmicos con seguimiento discreto de la evolución temporal del tamaño medio del grano y con temperaturas de recocido en el rango de 0 a -20°C . Se determina la rapidez "k" con que crece el tamaño medio de grano en función de la temperatura de recocido.

En general se encuentran valores del parámetro k dentro del rango de los obtenidos por otros autores; se destaca, además, que existe una gran dispersión en dichos valores experimentales.

Los resultados obtenidos se analizan teniendo en cuenta los resultados descritos en la parte I y utilizando el modelo de Ceppi y Nasello¹ que simula la migración de límites de grano en muestras policristalinas.

INTRODUCCION

El estudio de crecimiento de grano en hielo es de interés tanto en Física de Nubes como en Glaciología. Las muestras policristalinas naturales sometidas a estudio tienen un contenido de impurezas disueltas y de burbujas y una forma de cristales que varían fundamentalmente de una muestra a otra. Sin embargo, el estudio de crecimiento de grano en hielo se ha realizado en general, en muestras libres de impurezas solubles^{2,5}.

Ceppi en 1985⁴ realiza una sistematización de los resultados de crecimiento de grano en hielo que se encuentran en la literatura; así, este autor analiza la evolución temporal del área media de los cristales de muestras sometidas a recocidos isotérmicos, suponiendo que la ecuación que rige el fenómeno es del tipo

$$\frac{d\bar{D}}{dt} = k \left[\frac{1}{\bar{D}} - \frac{1}{D_f} \right]$$

donde \bar{D} es el diámetro correspondiente a un cristal circular que tiene un área igual al área media de los cristales y, k y D_f son parámetros de ajuste que representan, respectivamente, la rapidez con que pueden crecer los cristales y el posible efecto de frenado ejercido por inclusiones de aire.

Los resultados obtenidos para hielo puro por distintos autores, según el análisis antes indicado, arrojan valores de k que pueden diferir en varios

órdenes de magnitud. Ceppi⁴ y Achával et al.⁵ notaron que las impurezas pueden afectar la cinética de crecimiento de grano, por lo cual las discrepancias observadas en la rapidez de crecimiento en los policristales podría deberse a que las muestras consideradas puras contienen cantidades no controladas de impurezas disueltas.

Para analizar este fenómeno, en el presente trabajo se estudia el crecimiento de grano en hielo puro en muestras policristalinas con contenido de impurezas menores que 10^{-3} ppm.

DESARROLLO EXPERIMENTAL

Se realizan experiencias de recocido isotérmico en muestras de hielo policristalino de alta pureza. Estos policristales se obtienen mediante la recristalización por cambio de fase sólido-sólido de un monocristal de concentración de impurezas menores que 10^{-3} ppm⁶.

Las muestras analizadas son cilíndricas con 1,6 cm de diámetro y aproximadamente 2 cm de altura, tienen granos poliédricos y orientación cristalina del eje c aleatoria. El diámetro medio inicial \bar{D}_0 de los granos es de aproximadamente $200\mu\text{m}$. La estructura cristalina de las muestras se analiza con el método de réplicas plásticas⁷.

Los cilindros policristalinos estudiados son inhomogéneos y se pueden distinguir zonas de cristales chicos ($D_0 \sim 100\mu\text{m}$) con un alto contenido de burbujas y zonas de cristales grandes ($\bar{D}_0 \sim 200\mu\text{m}$) libres de burbujas.

En la zona de cristales chicos y burbujas no se observa, en general, crecimiento de grano. En las zonas libres de burbujas se estudia la evolución tem-

*Becario del CONICET

** Investigador del CONICET

poral del diámetro medio de los cristales \bar{D} y se observa que los resultados experimentales obtenidos para tiempos de recocido menores que 400 hs pueden representarse satisfactoriamente por una expresión de la forma

$$\bar{D}^2 - \bar{D}_0^2 = k t \quad (1)$$

Los resultados obtenidos para el parámetro k se muestran en la tabla I. Se incluyen además los resultados obtenidos por Ceppi⁴, Jellinek y Gouda², Higashi y Achával et al.⁵.

DISCUSION Y CONCLUSIONES

Los resultados obtenidos pueden ser analizados teniendo en cuenta el modelo de simulación numérica del crecimiento de grano desarrollado por Ceppi y Nasello¹.

Estos autores simulan la evolución temporal de una muestra policristalina bidimensional considerando que cada punto de los límites de granos está impulsado sólo por capilaridad. Es decir que Ceppi y Nasello estudian el crecimiento de grano cuando el radio de curvatura r de un punto del límite de grano sigue la ley.

$$\frac{dr}{dt} = 2 M \gamma / r \quad (2)$$

donde M y γ son respectivamente la movilidad y la energía superficial del límite de grano.

La evolución temporal del radio medio \bar{r} de los cristales obtenido a partir de estos estudios de simulación puede expresarse como

$$\bar{r}^2 - \bar{r}_0^2 = k_p p / 4 \quad (3)$$

donde p es el paso de computadora y el parámetro de ajuste k_p , para una muestra con granos equiaxiados, resulta $k_p = 7,5$ puntos. Además, dichos autores comparan la evolución temporal de una muestra real con la de la simulación obteniendo:

$$\Delta t = \frac{a^2}{6 M \gamma} \Delta p \quad (4)$$

con t el tiempo real y $a = \alpha x$, donde a es un parámetro intrínseco del modelo de simulación ($a = 7$ puntos) y α es un factor de escala que realaciona puntos de la computadora con longitudes de la muestra medidas en cm.

Utilizando la expresión (4), se pueden correlacionar las expresiones (1) y (3) correspondientes a los mejores ajustes de los puntos experimentales y los obtenidos en la simulación respectivamente. De esta comparación se obtiene

$$k = k_p \frac{6 M \gamma}{a^2} \quad (5)$$

Esta ecuación relaciona las variables $M\gamma$ que se pueden obtener estudiando la migración de un único punto de un límite de grano, con la cantidad k , que identifica la evolución temporal colectiva de los bordes de grano de un policristal.

En la tabla I se dan los valores de k calculados a partir de la ecuación (5) para los valores máximos y mínimos del producto $M\gamma$ obtenidos por Di Prinzio et al.⁸ en bicristales de hielo puro.

T	POLICRISTALES					BICRIST. ⁸	SIMULACION
[°C]	K [10 ⁻⁸ cm ² /s]					Mγ [10 ⁻⁸ cm ² /s]	k [10 ⁻⁸ cm ² /s]
	[9]	[2]	[3]	[4]	[5]	[8]	
-2	0.1	1.4	1.5	0.7 1.4	0.1	0.2 1.5	0.16 1.3
-6	0.07	0.5	0.4	0.03 0.3	0.05	0.06 0.1	0.05 0.09
-10	0.07	0.2	0.3	0.07 0.08		0.02 0.5	0.02 0.4
-20	0.04	0.1			0.01	-	-

TABLA I. Valores de la rapidez de crecimiento del tamaño medio de grano k publicado por diferentes autores y valores de k calculados teniendo en cuenta los resultados experimentales obtenidos en bicristales y utilizando un modelo de simulación por computadora del crecimiento de grano en hielo. ⁹ presente trabajo.

Comparando estos valores de k calculados con los obtenidos experimentalmente por diferentes autores (ver tabla I) se observa que en general a -2°C y -10°C , los valores experimentales caen dentro de las cotas de los k calculados. Mientras a la temperatura de -6°C los datos de Jellinek y Gouda y de Higashi se apartan notablemente de los valores máximos y mínimos calculados para k .

En consecuencia, se podría concluir que, en general, la dispersión de los valores de k podría deberse a la variación de los valores de $M\gamma$, encontrada por Di Prinzio et al.⁸, la cual es producida por diferencias en la orientación relativa del eje c cristalográfico de los granos adyacentes. En el caso particular de $T = -6^\circ\text{C}$, los altos valores de k obtenidos por Higashi y Jellinek y Gouda podrían deberse a que las muestras analizadas por estos autores contenían mayor concentración de impurezas que la

utilizada en el presente trabajo (10^{-3} ppm). Esta conclusión es respaldada por las observaciones de Ceppi⁴ y Achával et al.⁵, que las impurezas afectan la migración de los límites de grano aumentando la rapidez con que ellos pueden migrar.

REFERENCIAS

1. Ceppi, E. y Nasello, O., Computer Simulation of Microstructural Evolution. Ed. D. Srolovitz (1985), pp 1-20.
2. Jellinek, H, y Gouda, V, (1986); Phys, Stat. Sól. 31, 413.
3. Azuma, N. e Higashi, A. (1983), J. Phys. Chem. 87, 4060-4064.
4. Ceppi, E. (1985); "Crecimiento de Grano en Hielo". Tesis Doctoral. IMAF-UNC.
5. Achaval, E. M., Nasello O. B. y Ceppi E. A. (1987), Journal de Physique Colloque C1, s. 3, Tome 48.
6. Arena, L. E. y Nasello O. B. (1985). Trabajo Especial. IMAF-UNC.
7. Higuchi, K. (1957); J. Glaciar 3; 131-2.
8. C. L. Di Prinzio, O. B. Nasello, E. A. Ceppi. "Migración de límites de grano en hielo". AFA 1989.