

04.76.18

PMM/A-203

COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
DEPENDIENTE DE LA PRESIDENCIA DE LA NACION

PROGRAMA MULTINACIONAL DE METALURGIA
(Programa Regional de Desarrollo Científico y Tecnológico - OEA)

MICROSCOPIA ELECTRONICA DE LAMINAS DELGADAS

M. Ipohorski

Buenos Aires-Argentina

1976

I EL MICROSCOPIO ELECTRONICO POR TRANSMISION

- I.1 Introducción
 - I.1.1. Imágenes Electrónicas
 - I.1.2. Origen del Contraste
- I.2 Breves Nociones de Optica Electrónica
 - I.2.1. Trayectoria de un Haz de Electrones en un Campo Magnético Uniforme
 - I.2.2. Focalización de un Haz de Electrones por un Campo Magnético de Revolución
 - I.2.3. Lentes Magnéticas Delgadas
 - I.2.4. Aberración Esférica
 - I.2.5. Astigmatismo
 - I.2.6. Aberración Cromática
 - I.2.7. Aberración por Difracción
- I.3 El Microscopio Electrónico de Transmisión
 - I.3.1. Cañón Electrónico
 - I.3.1.1. Filamento. Cilindro de Wehnelt
 - I.3.1.2. Anodo Acelerador
 - I.3.2. Lentes Condensadoras
 - I.3.3. Lente Objetivo
 - I.3.4. Lente Intermedia y Lente Proyectora
 - I.3.5. Difracción por un Area Selecta
 - I.3.6. Poder de Resolución de un Microscopio Electrónico de Transmisión
 - I.3.7. Profundidad de Campo y Profundidad de Foco
- I.4 El Microscopio Electrónico Philips EM 300
 - I.4.1. Columna. Aperturas de Objetivo y Difracción. Platina de Alta Resolución y Goniométrica
 - I.4.2. Portamuestras
 - I.4.3. Sistema de Anticontaminación
 - I.4.4. Calibración del Instrumento
 - I.4.4.1. Calibración de la Magnificación
 - I.4.4.2. Calibración de las Rotaciones

II TEORIA CINEMATICA DE LA DIFRACCION DE ELECTRONES

- II.1 Límites de la Aproximación Cinemática
 - II.1.1. Función de Onda Asociada a un Haz de Electrones
- II.2 Difusión de Electrones por un Atomo. Factor de Difusión
- II.3 Difracción de Electrones por un Cristal
 - II.3.1. Cristalografía. Conceptos Fundamentales
 - II.3.2. Difracción por una Red Geométrica Dimensional
 - II.3.3. Esfera de Ewald
 - II.3.4. Difracción por una Estructura Cristalina. Factor de Estructura
 - II.3.4.1. Estructura Cúbica de Caras Centradas
 - II.3.4.2. Estructura cúbica de Cuerpo Centrado
 - II.3.4.3. Estructura Hexagonal Compacta
 - II.3.4.4. Estructura Tipo Diamante
 - II.3.5. Intensidad Difractada fuera de la Orientación de Bragg
 - II.3.5.1. Ensanchamiento de los Nodos en el Espaciado Recíproco. Dominios de Difracción
 - II.3.6. Líneas de Kikuchi
 - II.3.6.1. Confección de las líneas de Kikuchi Asociadas a un Diagrama de Difracción
 - II.3.6.2. Medición del Parámetro de Desviación s
 - II.3.7. Doble Difracción de Bragg

III CONTRASTE DE DEFECTOS CRISTALINOS SEGUN LA APROXIMACION CINEMATICA

- III.1 Aproximación de la Columna. Aproximación de dos Haces
- III.2 Contraste de una Lámina Cristalina Perfecta
 - III.2.1. Franjas de Igual Espesor e Igual Inclinación
 - III.2.2. Construcción de Fresnel. Diagrama Fase Amplitud

- III.3 Contraste de Defectos Cristalinos
 - III.3.1. Contraste de Fallas de Apilamiento
 - III.3.2. Contraste de una Falla Paralela a las Superficies de la Lámina
 - III.3.3. Contraste de una Falla Inclínada
 - III.3.4. Contraste de Dislocaciones
 - III.3.5. Contraste de una Dislocación de Hélice Paralela a las Superficies de la Lámina
 - III.3.6. Contraste de una Dislocación de Hélice Inclínada
 - III.3.7. Contraste de una Dislocación Rectilínea Mixta
 - III.3.8. Contraste de Lazos de Dislocaciones
- III.4 Contraste de Precipitados de una Segunda Fase
 - III.4.1. Contraste de la Matriz. Precipitados Coherentes
 - III.4.2. Contraste del Precipitado. Partículas Incoherentes
- III.5 Imágenes Periódicas
 - III.5.1. Resolución Directa
 - III.5.2. Resolución Indirecta
 - III.5.3. Efecto de las Imperfecciones cristalinas sobre las Imágenes Periódicas

IV APLICACION DE LAS TECNICAS DE MICROSCOPIA ELECTRONICA

- IV.1 Campo Oscuro
 - IV.1.1. Imágenes Múltiples en Campo Oscuro
 - IV.1.2. Campo Oscuro. Apertura Desplazada
 - IV.1.3. Contraste en una Micrografía de Campo Oscuro
- IV.2 El Microscopio Electrónico Utilizado como Cámara de Difracción
- IV.3 Microscopía Electrónica de Alto Voltaje

AGRADECIMIENTOS

Se desea agradecer a las siguientes personas e instituciones:

- Al Programa Multinacional de Metalurgia (Programa Regional de Desarrollo Científico y Tecnológico-OEA) por la financ ción del presente trabajo.
- Al Sr. Oscar Curotto por su eficaz colaboración durante la impresión de este trabajo.
- A la Sra. Alicia P. de Semino por el esmerado trabajo de tipografía.
- Al Sr. F. Segovia y al Sr. P. Nieto por la labor fotográfica del presente trabajo y por su permanente colaboración
- Al Sr. N. Marccone por su asistencia técnica durante las observaciones en el microscopio electrónico.

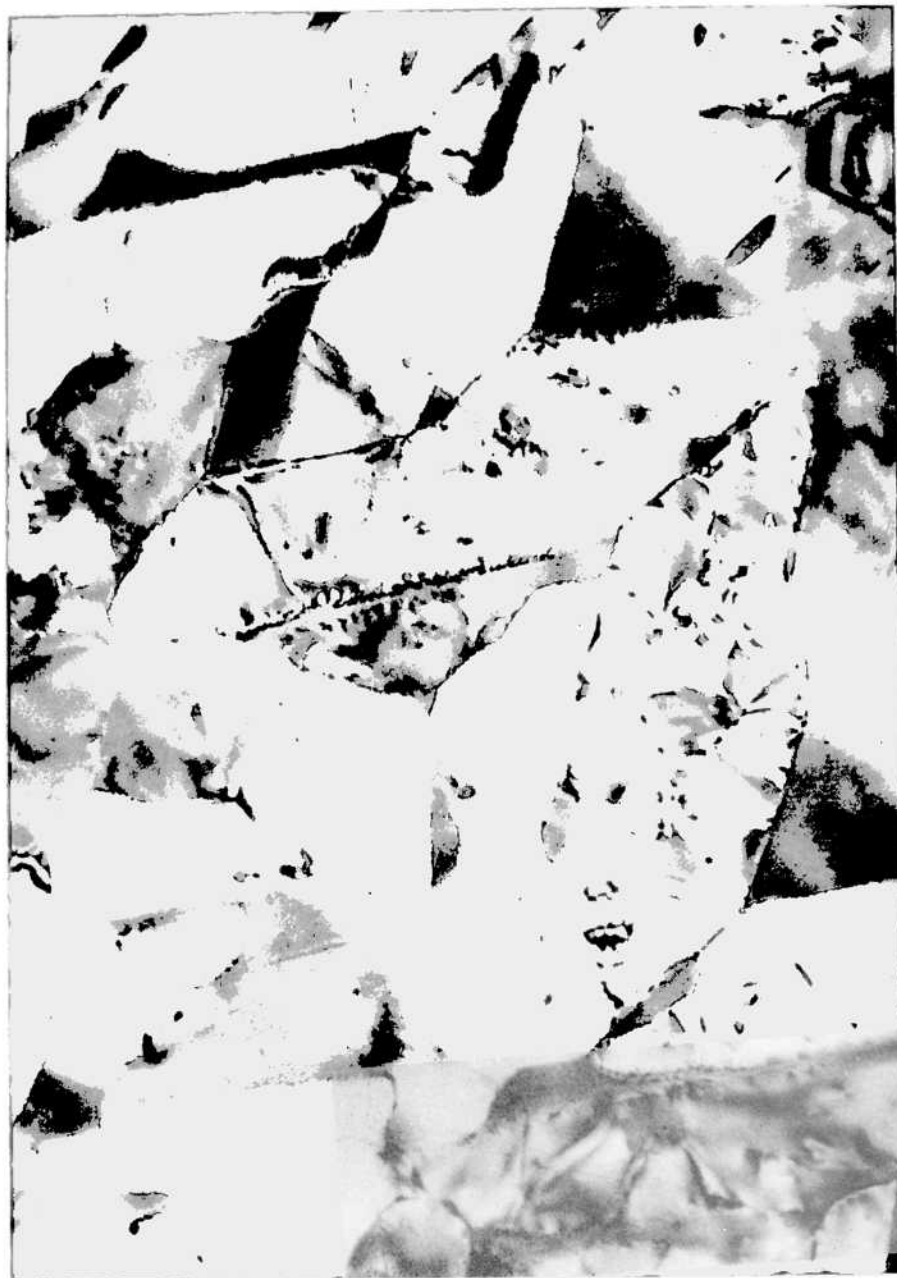


Fig. 1. Lámina delgada de una aleación Zr-2.5% Nb templada y recocida. Pueden observarse distintos granos cristalinos, precipitados de una segunda fase, y dislocaciones en los límites de grano. $M = 40.000$. Atención: Raúl A. Versaci

I. EL MICROSCOPIO ELECTRONICO

I.1 INTRODUCCION

El fenómeno de difracción limita una observación en un microscopio óptico a un valor máximo de resolución, dado por la expresión

$$\Delta r = \frac{0.61 \lambda}{n \operatorname{sen} \alpha} \quad (\text{I.1})$$

donde λ es la longitud de onda de la luz incidente, n el índice de refracción del medio situado entre la muestra y la lente objetivo, y α es el ángulo de semiapertura (1). En una observación baja un microscopio de alta resolución, por ejemplo dotado de un objetivo de inmersión

$$\lambda = 0.5 \mu \quad n = 1.5 \quad \operatorname{sen} \alpha = 0.95$$

y por lo tanto

$$\Delta r \approx 0.2 \mu$$

valor que se puede considerar como el límite de resolución de la microscopía óptica. La longitud de onda de la luz visible no permite por lo tanto la observación de detalles inferiores a algunas décimas de micrón.

El descubrimiento de los rayos X en 1897, y más concretamente las experiencias de difracción realizadas por Bragg en 1913, pusieron en evidencia la existencia de una radiación electromagnética, de naturaleza similar a la luz visible, de longitud de onda mucho menor, del orden de los 1.5 Å. Pero dada la imposibilidad de construir lentes para obtener imágenes focalizadas, el desarrollo de las técnicas de rayos X se centró en la determinación de estructuras cristalinas a partir de la interpretación de los diagramas de difracción.

La microscopía electrónica tuvo su origen en las experiencias de difracción de Davisson y Germer (2), quienes comprobaron el postulado formulado por De Broglie en 1924, según el cual un haz de partículas aceleradas posee en ciertas condiciones naturaleza ondulatoria, siendo la longitud de onda λ asociada a cada partícula inversamente proporcional a su energía. Por ejemplo un haz de electrones acelerados por

un potencial de 100 kV es asimilable a una radiación de longitud de onda igual a 0.037 Å. Este valor es mucho menor que el correspondiente a la luz visible, y aún menor que el correspondiente a los rayos X. Entonces la resolución alcanzable por algún tipo de instrumento que permitiera obtener imágenes focalizadas a partir de un haz de electrones, sería del orden de

$$\frac{0.61 \times 0.037}{2 \times 10^{-3}} \approx 10 \text{ Å}$$

suponiendo $n=1$, y que las "lentes" de tal instrumento solo pudieran ser efectivas con aperturas muy pequeñas ($\sin \alpha \approx \alpha \approx 2 \times 10^{-3}$ rad). El conocimiento de la fuerza que ejerce un campo magnético sobre un electrón en movimiento, desviando de esta manera su trayectoria, permitió efectivamente encarar el diseño de lentes electrónicas. Las leyes de la óptica geométrica, válidas para la luz visible, resultaron también aplicables a las trayectorias de un haz de electrones en un campo magnético. El rápido desarrollo de la óptica electrónica condujo finalmente a la construcción del primer microscopio electrónico en 1932 (3). Para una breve reseña de la evolución de la microscopía electrónica puede consultarse en el libro de Heidenreich (4), o sino para una descripción más detallada, una publicación reciente (5). Es interesante notar que ya antes de la Segunda Guerra Mundial, el prototipo desarrollado por Borries y Ruska y manufacturado luego en escala comercial por Siemens, poseía un poder de resolución de 20 Å. Los instrumentos fabricados actualmente en escala comercial (Philips, Jeol, Siemens, AEI, Hitachi) pueden resolver detalles del orden de los 4 Å. En particular, el microscopio electrónico Philips EM 300 garantiza, en condiciones óptimas de funcionamiento, una resolución punto a punto de 3.5 Å. Los potenciales de aceleración de estos instrumentos varían normalmente entre 100 y 200 kV. Para la observación de láminas de mayores espesores, caso de aceros y muestras biológicas, existen microscopios comerciales de 1000 kV (AEI, Jeol) y prototipos de 2000 y 3000 kV en funcionamiento.

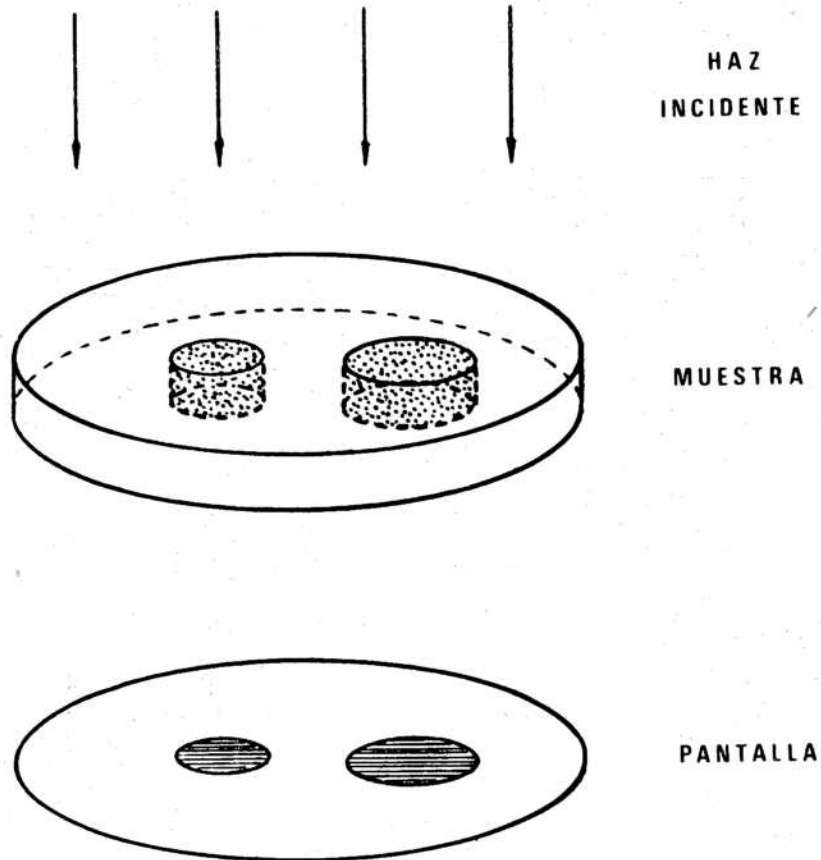


Fig. 1.2 - Origen del contraste en una micrografía electrónica de una muestra no cristalina. Si las partículas contenidas en su interior son más absorbentes frente al haz electrónico, el contraste observado en una pantalla fluorescente será un conjunto de sombras oscuras en medio de un fondo más claro. El sistema de lentes magnéticas reproducen en la pantalla final esta distribución de intensidades aumentada convenientemente.

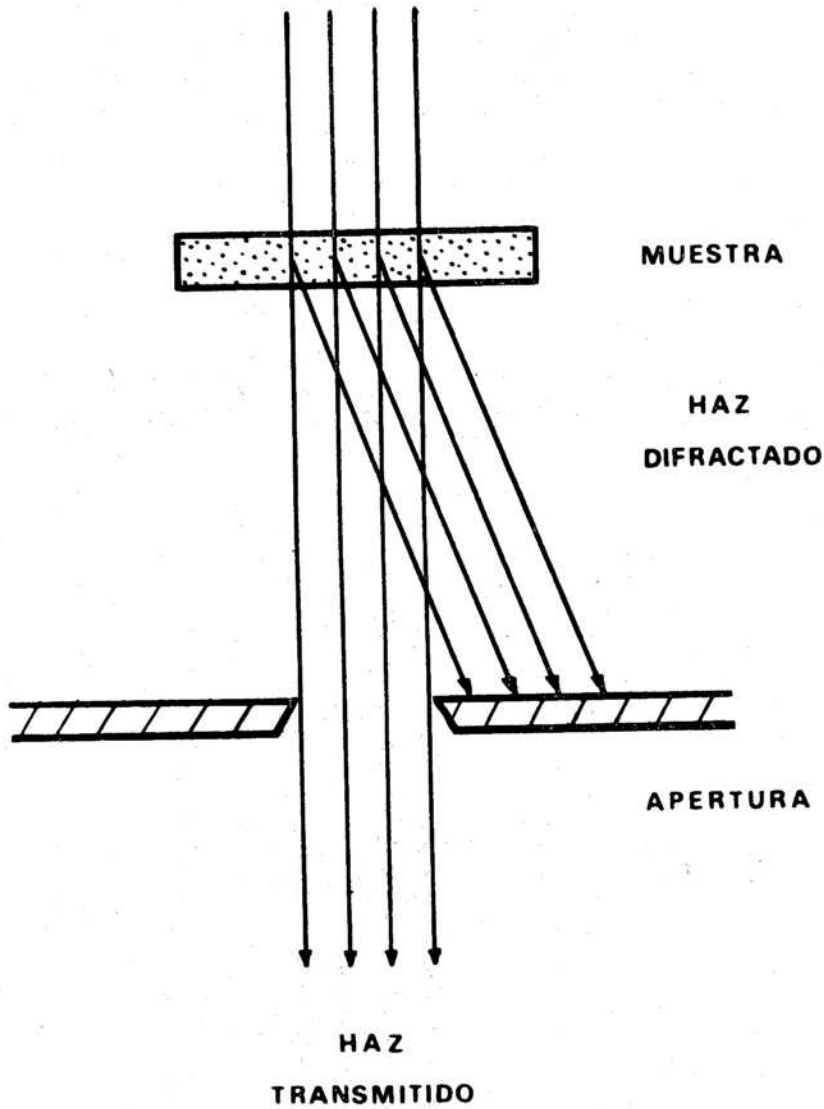


Fig. I.3 - Contraste por difracción, campo claro. El contraste es producido por las variaciones de las intensidades difractadas por las distintas zonas de la lámina cristalina observada.

I.1.1 Imágenes Electrónicas

Comunmente se denomina 'micrografía electrónica' al registro de las intensidades (cantidad de electrones) transmitidas a través de la muestra observada. Si los electrones de un haz monoenergético inciden sobre una lámina delgada, serán más o menos absorbidos según la zona particular de la muestra que atraviesan. El sistema de lentes magnéticas reproduce sobre la pantalla de observación del microscopio esta distribución de intensidades aumentada convenientemente. El objetivo final de todas las técnicas de microscopía electrónica es relacionar esta imagen electrónica, o contraste, con la naturaleza y estructura de la muestra observada. Para ello es necesario conocer los mecanismos mediante los cuales los electrones de un haz pueden ser removidos al atravesar una lámina delgada de material.

I.1.2 Origen del Contraste

Según que la lámina delgada esté compuesta por un material amorfo o cristalino, se suele hablar de contraste por difusión y contraste por difracción, aunque ambos en realidad son consecuencia de un mismo fenómeno: la difusión (*) de electrones por los átomos que componen la muestra.

Para fijar ideas, consideremos una muestra como la esquematizada en la Fig. I.2, compuesta por un material amorfo, que contiene en su interior una partícula de un material más "denso" frente al haz electrónico. Por lo tanto la fracción del haz incidente que incide sobre esta partícula perderá más electrones, y el contraste correspondiente observado en una pantalla fluorescente será una sombra oscura en medio de un fondo más claro. La forma de la zona oscura corresponde a la sección de la partícula según un plano normal al haz incidente. Fue en base a este mecanismo simple que se interpretaron las observaciones realizadas hasta el año 1940. Este es efectivamente el origen del contraste

(*) Utilizamos aquí el término "difusión de electrones" como traducción de "electron scattering".

que se observa en cuerpos amorfos como son las réplicas de carbono de superficies metálicas, y la mayoría de las sustancias biológicas.

Pero en 1940, Borries y Ruska (6) observaron que las distribuciones de intensidad de ciertas imágenes de láminas de óxido crómico no estaban de acuerdo con la interpretación basada en el mecanismo de contraste por difusión. Posteriormente numerosos autores fueron informando sobre imágenes anómalas similares. Un factor común caracterizaba estas experiencias: las sustancias observadas eran todas cristalinas en mayor o menor grado. Para explicar los contrastes observados fue necesario entonces considerar el fenómeno, ya conocido, de la difracción de electrones por un cristal. En 1927 Davisson y Germer observaron que la incidencia de un haz de electrones sobre un cristal de níquel daba origen a una serie de haces, caracterizados por distintas densidades, que se propagaban en distintas direcciones. Aunque la teoría de la difracción por un cristal requiere un tratamiento relativamente extenso, sección II, es fácil ver esquemáticamente cual es el origen del contraste por difracción.

Supondremos, para simplificar, que la lámina cristalina de la Fig. I.3 está orientada de tal manera que la incidencia de un haz de electrones sobre la misma da origen a un solo haz difractado. Interponiendo convenientemente una apertura de tal manera que solamente el haz transmitido sea amplificado por las lentes magnéticas del microscopio, se tendrá en la pantalla de observación una imagen electrónica que se denomina de campo claro. La intensidad difractada localmente, es decir la cantidad de electrones que son removidos del haz incidente y pasan al haz difractado, depende directamente de la estructura de la muestra. Aun si la muestra es homogénea, pueden existir en el cristal ciertos defectos que afectan la intensidad difractada en distintas zonas de la lámina, y dan origen por lo tanto a un contraste por difracción.

A título de ejemplo, consideraremos un defecto cristalino sencillo, como es el caso de una dislocación de borde. Una dislocación de este tipo es un plano extra en una familia de planos cristalinos, Fig. I.4. Supondremos además que los planos están orientados de tal manera que el ángulo θ bajo el cual incide el haz electrónico, es menor que el ángulo θ_B de Bragg (una familia de planos cristalinos de espaciado d , origina un fuerte haz difractado si su orientación respecto del haz incidente es tal que se verifica la ley de Bragg $2 d \sin \theta_B = \lambda$, donde λ es la longitud de onda de los electrones (ver sección II). La

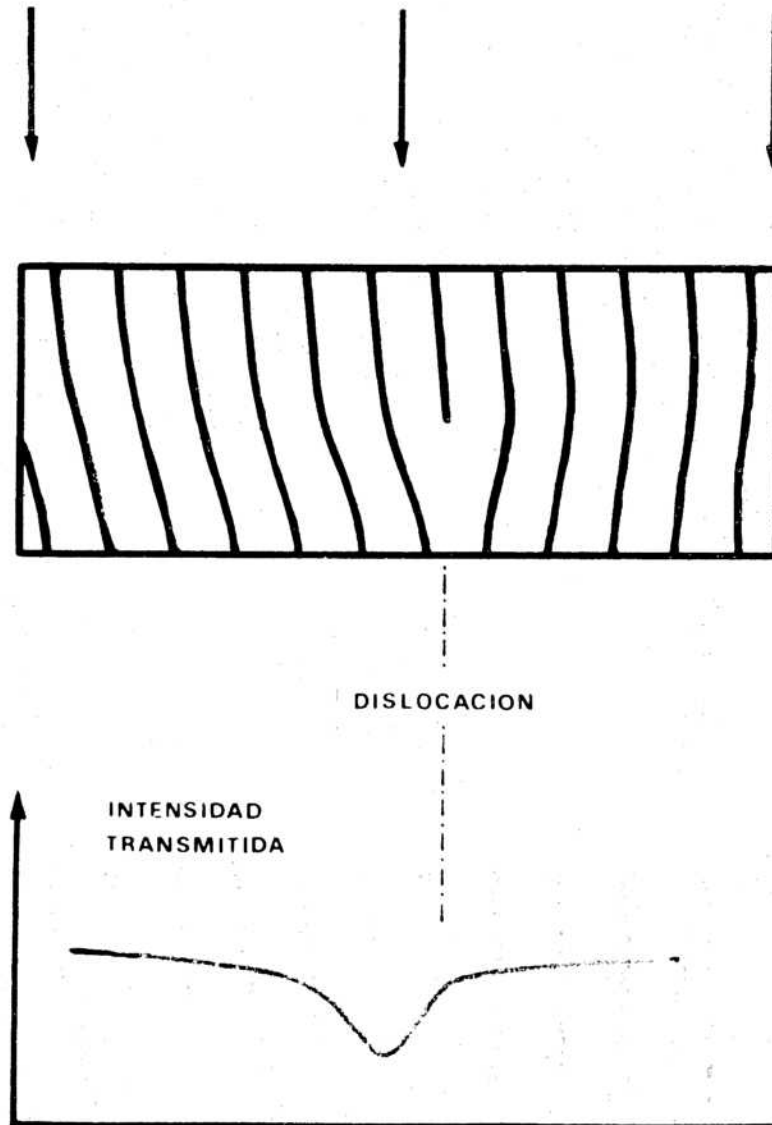
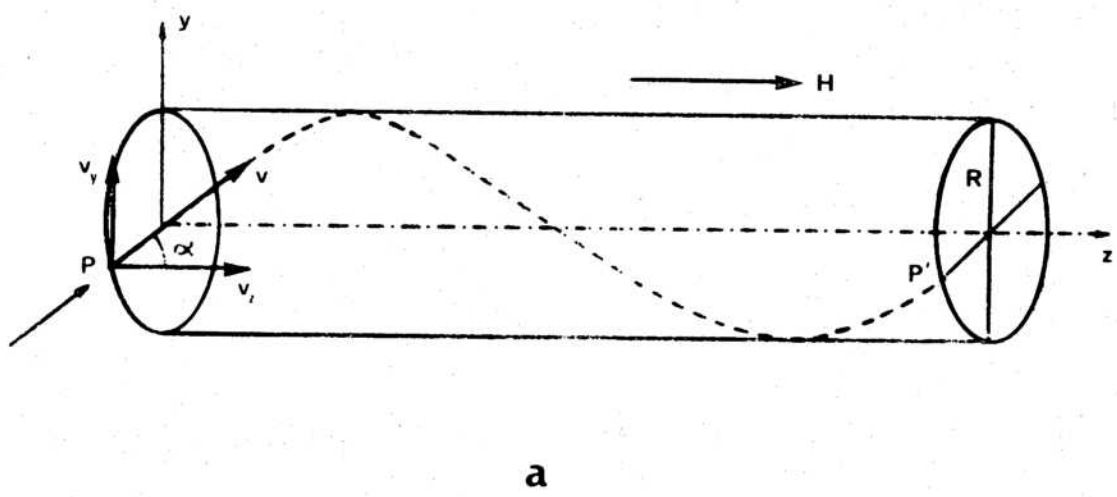
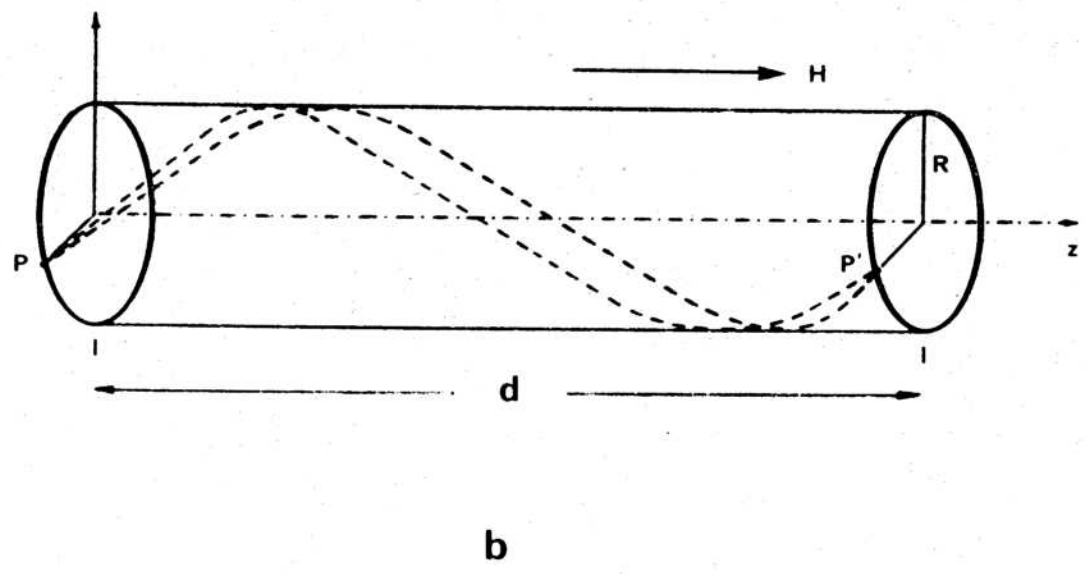


Fig. I.4 - Contraste producido por una dislocación de borde en una lámina delgada. Las distorsiones a la izquierda de la dislocación orientan los planos cristalinos hacia la posición de Bragg. Estas zonas dan origen a un fuerte haz difractado, y por lo tanto en una micrografía electrónica de campo claro, se observa una línea oscura desplazada a un lado de la línea de dislocación.



a



b

Fig. I.5 - a) Trayectoria de un haz de electrones en campo magnético uniforme.
 b) Focalización de un haz ligeramente divergente de electrones por un campo magnético uniforme. Si a partir del punto P diverge un haz de electrones, será focalizado por el campo magnético en un único punto P'.

intensidad del haz transmitido a través de la lámina de la Fig. I.4 tendrá un cierto valor constante que depende de las condiciones de la observación. Pero en regiones cercanas a la dislocación los planos cristalinos están deformados, y en particular las distorsiones a la izquierda de la misma son tales que reorientan los planos hacia la posición de Bragg. Esta zona dará por lo tanto origen a un fuerte haz difractado, y la intensidad transmitida será así menor a la izquierda de la línea de dislocación. Por lo tanto, en una micrografía electrónica de campo claro obtenida en las condiciones de difracción mencionadas, el contraste que presenta una dislocación de borde es una línea oscura desplazada a un lado de la misma. La dislocación se hace visible porque altera localmente las condiciones de difracción del cristal. Si se varían estas condiciones, por ejemplo rotando ligeramente la lámina, se altera consecuentemente la imagen de la dislocación, y eventualmente el contraste puede llegar a desaparecer completamente. El conocimiento de las condiciones de difracción en las cuales fue obtenida una micrografía dada es por lo tanto fundamental para la interpretación correcta de toda imagen electrónica.

I.2 BREVES NOCIONES DE OPTICA ELECTRONICA

Una lente magnética consta esencialmente de una bobina por la que circula una corriente I , y una pieza polar cilíndrica situada en su interior. En el entrehierro de la pieza polar se establece por lo tanto un campo magnético \vec{H} , cuya homogeneidad depende de la geometría de la pieza, y cuya estabilidad está dada directamente por las fluctuaciones de la corriente I .

Una lente de este tipo puede focalizar un haz de electrones, y más aún, proporcionar imágenes electrónicas focalizadas, debido a la existencia de la fuerza de Lorentz que actúa sobre toda partícula de carga q que entra a un campo magnético \vec{H} con una velocidad \vec{v} , dada por

$$\vec{F} = q \vec{v} \times \vec{H} \quad (I.2)$$

Como esta fuerza es constantemente normal a la dirección del movimiento, modifica solamente la dirección de la velocidad \vec{v} , pero no su módulo, y en consecuencia la energía de la partícula permanece constante.

Consideraremos a continuación las trayectorias de un haz de electrones en un campo magnético uniforme y en un campo de revolución, antes de pasar al caso de una lente magnética delgada.

I.2.1 Trayectoria de un Haz de Electrones en un Campo Magnético Uniforme.

Si un electrón de carga eléctrica e y masa m , entra a un campo magnético uniforme de tal manera que \vec{v} es perpendicular a \vec{H} , en todo momento se verifica que la fuerza centrífuga es igual a la fuerza de Lorentz

$$\frac{m v^2}{R} = e v H$$

de donde

$$R = \frac{mv}{eH} = \text{constante}$$

y el electrón describe una circunferencia. Por el contrario, si \vec{v} es paralela a \vec{H} es $\vec{F} = 0$ y su trayectoria no se ve modificada. En el caso general, si \vec{v} forma un cierto ángulo α con el campo \vec{H} , la componente

$$v_y = v \cos \alpha$$

origina un movimiento circular, mientras que la componente v_z paralela al campo provoca un desplazamiento uniforme. La trayectoria del electrón es entonces una hélice contenida en una superficie cilíndrica, Fig. I.5(a). El tiempo necesario para completar una vuelta está dado por

$$T = \frac{2\pi R}{v_y} = 2\pi \frac{m v_y}{eH} \frac{1}{v_y} = \frac{2\pi m}{eH}$$

y durante el tiempo T el electrón se desplaza una distancia

$$d = v_z T = v \cos \alpha \frac{2\pi m}{eH}$$

que, para ángulos pequeños ($\cos \alpha \approx 1$) es constante, y depende solo del módulo de la velocidad y la intensidad del campo. Por lo tanto si a par-

tir del punto P, Fig. I.5(b), diverge un haz de electrones de igual energía (igual velocidad) en direcciones poco inclinadas respecto de \vec{H} , será focalizado por el campo magnético en un único punto P'. Este es el principio general en el cual se basa la construcción de todas las lentes magnéticas.

1.2.2 Focalización de un Haz de Electrones por un Campo Magnético de Revolución.

Veremos a continuación que no es necesario un campo magnético \vec{H} estrictamente uniforme para focalizar un haz divergente de electrones. De manera más general, un haz de partículas aceleradas puede ser focalizado por un campo magnético no uniforme, siempre que exista simetría de revolución alrededor de un eje. Este es el caso real de un entrehierro de forma cilíndrica. Supondremos que entre los planos P_1 y P_2 de la Fig. I.6(a) existe un campo magnético con simetría de revolución alrededor del eje z. En coordenadas semi-polares (r, θ, z) las componentes del campo \vec{H} son

$$H_r, 0, H_z$$

y las componentes de la velocidad del electrón

$$v_r = \frac{dr}{dt} \quad v_\theta = r \frac{d\theta}{dt} \quad v_z = \frac{dz}{dt}$$

La fuerza de Lorentz que ejerce el campo sobre un electrón en movimiento, ec. I.2, se expresa en estas coordenadas

$$F_r = -ev_\theta H_z \quad F_\theta = e(v_r H_z - v_z H_r) \quad F_z = ev_\theta H_r$$

Las ecuaciones de movimiento resultan entonces (7)

$$\begin{aligned}
m \left[\frac{d^2 r}{dt^2} - r \left(\frac{d\theta}{dt} \right)^2 \right] &= -erH_z \frac{d\theta}{dt} \\
\frac{m}{r} \frac{d}{dt} \left(r^2 \frac{d\theta}{dt} \right) &= e \left(H_z \frac{dr}{dt} - H_r \frac{dz}{dt} \right) \quad (I.3) \\
m \frac{d^2 z}{dt^2} &= erH_r \frac{d\theta}{dt}
\end{aligned}$$

Es posible expresar H_r en función de H_z , teniendo en cuenta que el flujo total de \vec{H} a través de un pequeño volumen cilíndrico de radio r y altura dz , es nulo (8). El flujo neto a través de las bases del cilindro, Fig. I.6(b), es

$$\pi r^2 \left[(H_z + dH_z) - H_z \right]$$

y el flujo a través de la superficie lateral

$$2 \pi r dz H_r$$

Por lo tanto

$$\begin{aligned}
\pi r^2 dz H_r + \pi r^2 dH_z &= 0 \\
\therefore H_r &= -\frac{r}{2} \frac{dH_z}{dz} \quad (I.4)
\end{aligned}$$

Las ecuaciones de movimiento (I.3) se pueden expresar

$$\begin{aligned}
\frac{d^2 r}{dt^2} - r \left(\frac{d\theta}{dt} \right)^2 &= -\frac{e}{m} r H_z \frac{d\theta}{dt} \\
\frac{d}{dt} \left(r^2 \frac{d\theta}{dt} \right) &= \frac{er}{m} \left(H_z \frac{dr}{dt} + \frac{r}{2} \frac{dH_z}{dz} \frac{dz}{dt} \right) = \frac{e}{m} \frac{d}{dt} \left(\frac{r^2}{2} H_z \right) \quad (I.5) \\
\frac{d^2 z}{dt^2} &= -\frac{e}{m} \frac{r^2}{2} \frac{dH_z}{dz} \frac{d\theta}{dt}
\end{aligned}$$

La segunda ecuación puede integrarse respecto del tiempo

$$r^2 \frac{d\theta}{dt} = \frac{e}{m} \frac{r^2}{2} H_z + \text{constante}$$

La constante de integración es nula si el haz de electrones es emitido a partir de un punto del eje z , Fig. I.6(a), o bien si su velocidad inicial \vec{v} está contenida en el plano meridiano zy . En ambos casos es

$$\frac{d\theta}{dt} = 0 \quad \text{para } r = 0$$

y por lo tanto

$$\frac{d\theta}{dt} = \frac{e}{2m} H_z \quad (I.6)$$

Para un electrón emitido en el plano meridiano bajo un ángulo α pequeño respecto del eje z

$$dz = v dt$$

y reemplazando en (I.6)

$$\frac{d\theta}{dz} = \frac{e}{2mv} H_z$$

Finalmente, integrando

$$\theta = \frac{e}{2mv} \int H_z dz \quad (I.7)$$

El movimiento de un electrón a través de un campo magnético de revolución se puede describir entonces mediante dos movimientos:

- Por un lado el plano meridiano gira en un ángulo θ , dado por la ec. (I.7), alrededor del eje z .
- Sobre este plano el electrón describe una trayectoria, que se puede calcular de la manera siguiente:

Introduciendo (I.6) en la primer ecuación de movimiento (I.5)

$$\begin{aligned} \frac{d^2 r}{dt^2} - r \left(\frac{e}{2m} H_z \right)^2 &= - \frac{e}{m} r H_z \left(\frac{e}{2m} H_z \right) \\ \frac{d^2 r}{dt^2} &= - \left(\frac{e}{2m} \right)^2 r H_z^2 \end{aligned} \quad (I.8)$$

Como

$$dt = \frac{dz}{v} \quad (I.9)$$

entonces

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{dr}{dt} \right) = v^2 \frac{d^2 r}{dz^2}$$

y reemplazando en (I.8)

$$\frac{d^2 r}{dz^2} + \frac{e^2}{4m^2 v^2} r H_z^2 = 0 \quad (I.10)$$

Si V es la diferencia de potencial a través de la cual se aceleran los electrones

$$\frac{1}{2} m v^2 = eV \quad (I.11)$$

la ec.(I.10) resulta finalmente

$$\frac{d^2 r}{dz^2} + \frac{e}{8mV} r H_z^2 = 0 \quad (I.12)$$

En esta última ecuación se puede ver que r y $d^2 r/dt^2$ son siempre de signo opuesto, y por lo tanto el electrón es desviado hacia el eje z cualquiera sea el signo del campo H_z . Las lentes magnéticas son por lo tanto siempre convergentes.

La solución general de la ecuación diferencial (I.12) es de la forma

$$r(z) = C_1 r_1(z) + C_2 r_2(z)$$

Consideremos el caso de un haz de electrones que diverge a partir de un cierto punto A , Fig. 1.7(a), situado en el plano $z = -z_0$, que llamare-

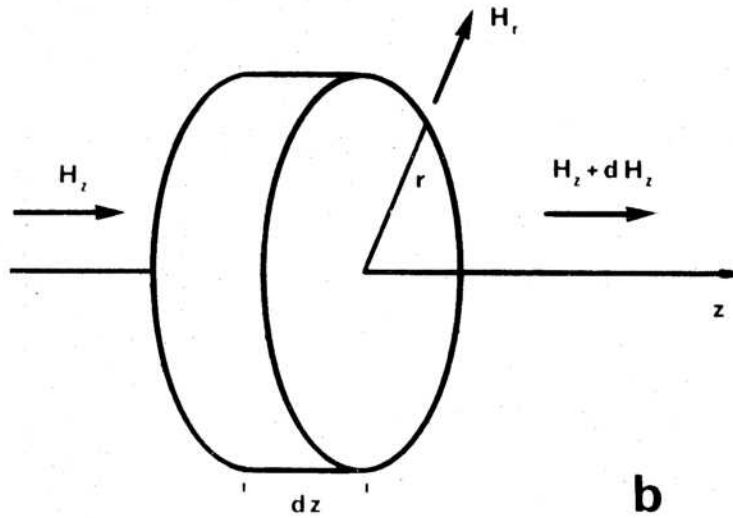
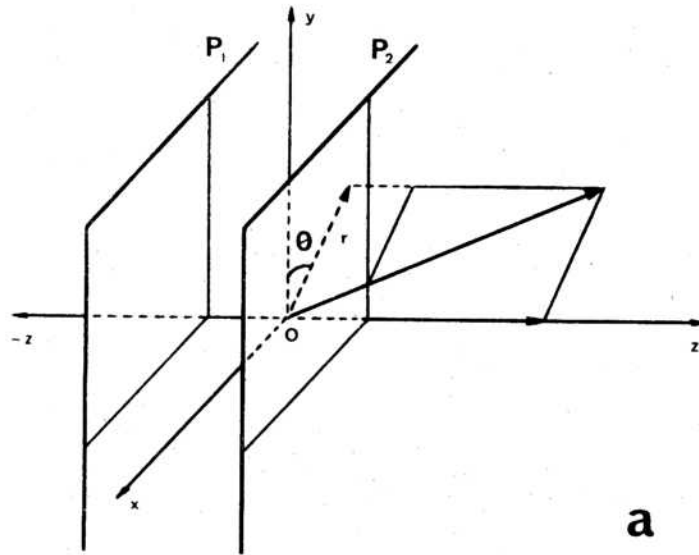
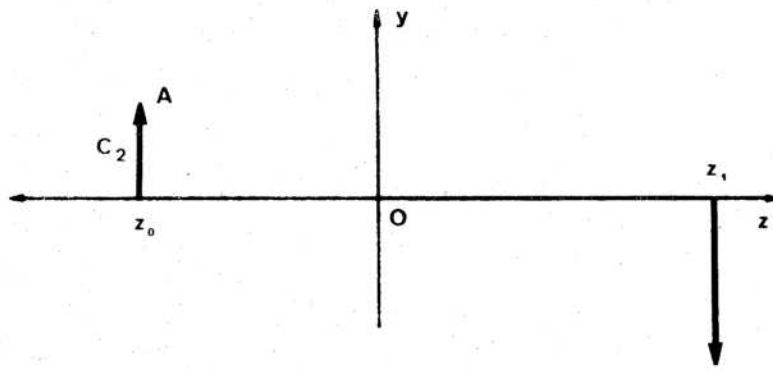
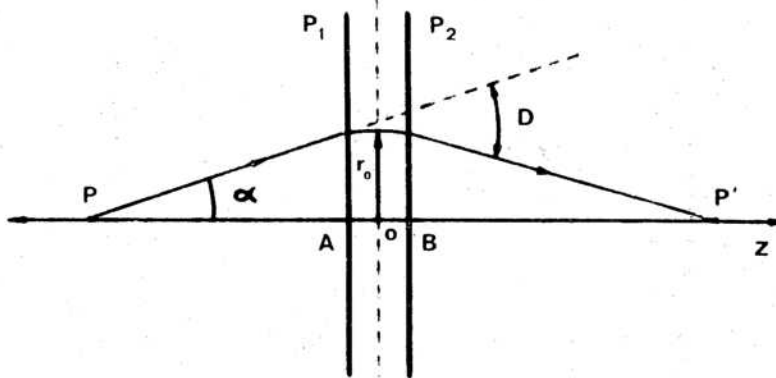


Fig. I.6 - a) Focalización de un haz de electrones por un campo magnético de revolución.
 b) Flujo del campo magnético \vec{H} a través de la superficie de un cilindro de radio r y altura dz .



a



b

- Fig. 1.7 - a) Magnificación de una imagen electrónica por un campo magnético de revolución. Si un haz de electrones diverge a partir de un cierto punto A del plano objeto situado a una distancia C_2 del eje z, será focalizado en un punto A' del plano imagen situado a una distancia $M C_2$ del eje z.
- b) Esquema de una lente magnética delgada. Entre dos planos próximos P_1 y P_2 se establece un campo magnético de revolución. Un haz de electrones emitido a partir del punto P, es focalizado en un punto P'. Una lente magnética delgada es asimilable a una lente óptica convergente.

mos plano objeto, a una distancia C_2 del eje z . Entonces debe ser

$$r(-z_0) = C_2$$

para lo cual es suficiente que

$$r_1(-z_0) = 0 \quad \text{y} \quad r_2(-z_0) = 1$$

Es posible demostrar que, con esta condición, existe un valor z_1 para el cual

$$r_1(z_1) = 0$$

y entonces sobre el plano $z=z_1$, que denominaremos plano imagen, es

$$r(z_1) = C_2 r_2(z_1)$$

Todos los electrones originados en el punto A del plano objeto convergen en un punto del plano imagen situado a una distancia $r(z_1)$ del eje z . A un objeto de longitud C_2 le corresponde entonces una "imagen" aumentada en el factor

$$M = \frac{C_2 r_2(z_1)}{C_2} = r_2(z_1)$$

Un campo magnético, sin otro requisito que el de la simetría de revolución alrededor de un eje, puede así focalizar un haz divergente de electrones, y en principio, proporcionar imágenes electrónicas focalizadas y magnificadas.

I.2.3 Lentes Magnéticas Delgadas

Por analogía con el caso óptico, se denomina lente delgada a un campo magnético de revolución alrededor de un eje, limitado a una pequeña región del espacio, por ejemplo entre los planos P_1 y P_2 de la Fig. I.7(b).

Si un electrón es emitido desde el punto P bajo un ángulo pequeño su trayectoria será modificada solamente entre P_1 y P_2 , y en muy buena aproximación se puede suponer que describe un pequeño arco de circunfe-

rencia de radio constante r_0 . La ecuación diferencial (I.10) se expresa para este caso

$$-\frac{d^2 r}{dt^2} = \left(\frac{e}{2m}\right)^2 r_0 H_z^2$$

o también, según (I.9)

$$-\frac{d}{dz} \frac{dr}{dz} = \left(\frac{e}{2m}\right)^2 \frac{r_0}{v^2} H_z^2$$

Una primera integración nos proporciona el valor del ángulo de desviación D , Fig. I.7(b)

$$D = \left. \frac{-dr}{dz} \right|_A^B = \left. \frac{-dr}{dz} \right|_B + \left. \frac{dr}{dz} \right|_A = \frac{e^2}{4m^2 v^2} r_0 \int_A^B H_z^2 dz$$

La desviación que sufre el haz resulta así proporcional a r_0 , como en el caso de un rayo luminoso refractado por una lente delgada convergente.

Además, de la Fig. I.7(b)

$$\left. \frac{-dr}{dz} \right|_B = \frac{r_0}{p'} \quad \left. \frac{dr}{dz} \right|_A = \frac{r_0}{p}$$

y resulta

$$\frac{1}{p} + \frac{1}{p'} = \frac{e^2}{4m^2 v^2} \int_A^B H_z^2 dz \quad (I.13)$$

Esta expresión es análoga a la fórmula de los focos conjugados, que relaciona las inversas de las distancias objeto (p) e imagen (p') con la inversa de la distancia focal f . Esta última resulta dada entonces por

$$\frac{1}{f} = \frac{c^2}{4m^2 v^2} \int_A^B H_z^2 dz = \frac{e}{8mV} \int_A^B H_z^2 dz$$

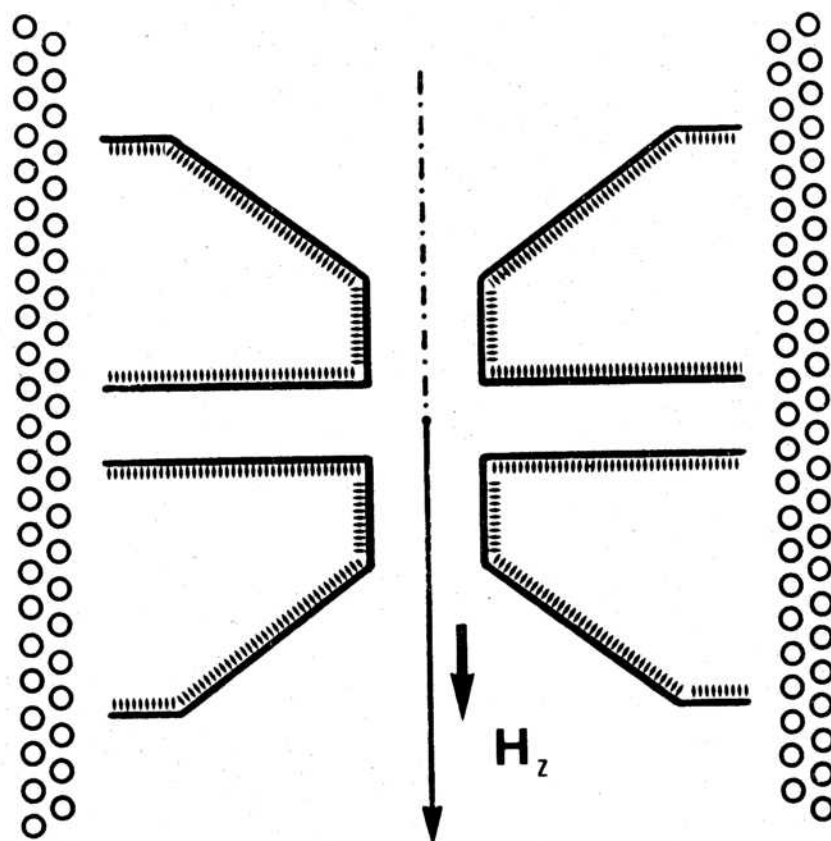


Fig. I,8 - Esquema de una lente magnética. La corriente I que circula por una bobina genera un campo magnético de revolución en el interior de una pieza polar cilíndrica. El diámetro del entrehierro es normalmente de unos 2 o 3 mm. La lente se hace más poderosa (menor distancia focal) aumentando la corriente I .

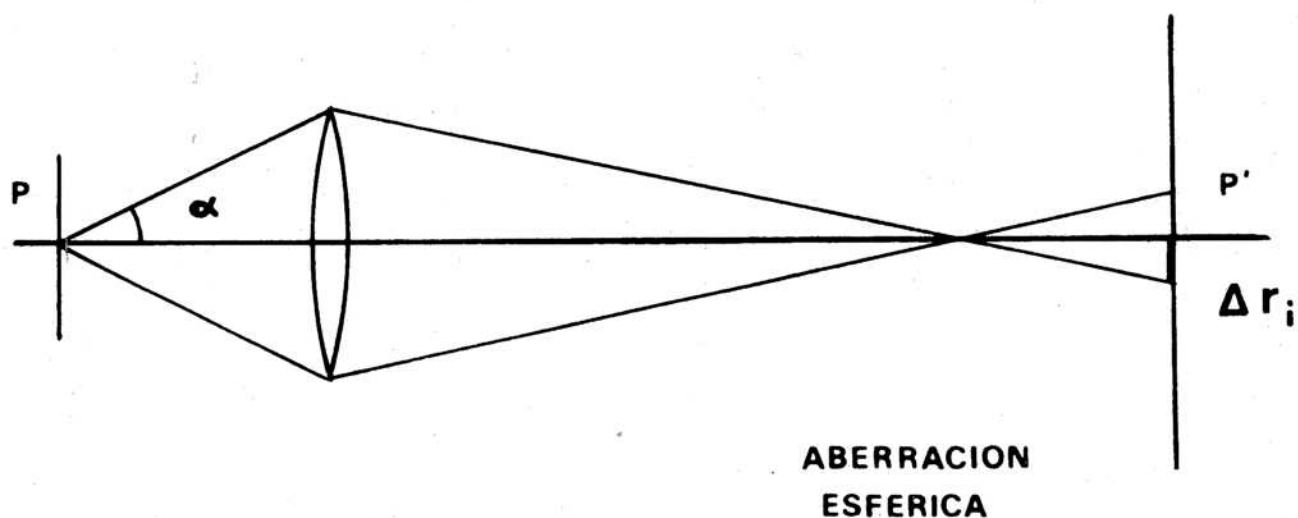


Fig. I.9 - Aberración esférica. Constituye la mayor imperfección de una lente magnética. Los electrones que atraviesan un punto P del objeto formando un ángulo α con el eje óptico cortan al plano imagen ideal (o gaussiano) a una distancia Δr_i del punto imagen gaussiano P', que sería la imagen de P dada por una lente sin aberraciones. La única manera de disminuir el efecto de aberración esférica es introduciendo aperturas que limiten el ángulo α .

Si H_z se expresa en gauss, y V (tensión de aceleración) en volts, el valor numérico de f , en cm, se calcula mediante

$$\frac{1}{f(\text{cm})} = \frac{0.022}{V(\text{volts})} \int_A^B H_z^2 (\text{gauss}) dz \quad (\text{I.14})$$

Normalmente en una lente magnética de un microscopio electrónico comercial, el valor de f es próximo a los 3 mm.

Por lo tanto conocida la distancia focal f de una lente magnética, la imagen electrónica de un objeto atravesado por un haz de electrones, se puede obtener gráficamente mediante las trayectorias de los rayos principales, de acuerdo a las leyes de la óptica geométrica. Así, un haz de rayos paralelos al eje óptico converge en el punto focal imagen, un rayo que pasa por el centro de la lente no es desviado, y un rayo que pasa por el punto focal objeto emerge paralelo al eje óptico. Todo haz de rayos paralelos entre sí focaliza en un punto de un plano denominado plano focal imagen, ver más adelante, Fig. I.14.

En la práctica, un campo magnético de revolución localizada en una pequeña región del espacio se obtiene mediante una pieza polar cilíndrica, que define un entrehierro de unos 2 o 3 mm de diámetro, rodeada por un solenoide, Fig. I.8. Si I es la corriente que circula por el mismo, H_z es directamente proporcional a I , y según la ec. (I.14)

$$\frac{1}{f} \approx \frac{I^2}{V} \quad (\text{I.15})$$

Entonces, una lente magnética se hace más poderosa (menor distancia focal) cuanto mayor es la corriente que circula por el arrollamiento.

Efectivamente, según la breve reseña hecha en esta sección, el comportamiento de una lente magnética delgada frente a un haz monoenergético de electrones es análogo al de una lente óptica convergente. Solamente es necesario tener en cuenta la rotación adicional de la imagen, dada por la ec. (I.7). Si el campo magnético se expresa en gauss, y la tensión de aceleración en volts, resulta de (I.7) y (I.11),

$$\theta (\text{radianes}) = \frac{0.148}{\sqrt{V(\text{volts})}} \int_A^B H_z dz \quad (\text{I.16})$$

I.2.4 Aberración Esférica

Como en todo sistema óptico, la resolución de la imagen final depende directamente de la calidad de la lente objetivo, puesto que cualquier aberración de la primer imagen dada por esta lente será aumentada por el sistema de lentes subsiguiente.

La aberración esférica constituye la mayor imperfección de una lente magnética y proviene del hecho de que no todos los rayos originados en un mismo punto objeto son desviados de la misma manera. En una lente real los rayos que forman ángulos mayores con el eje óptico son más desviados que aquéllos próximos a dicho eje, Fig. I.9. Los electrones que atraviesan un punto P del objeto formando un ángulo α con el eje óptico cortan al plano imagen ideal (o gaussiano) a una distancia

$$\Delta r_i = M C_s \alpha^3 \quad (\text{I.17})$$

del punto imagen gaussiano P', que corresponde a la imagen de P si no existiera aberración alguna. Por cada punto del objeto se tiene entonces, por efecto de aberración esférica, un círculo de confusión de radio Δr_i en el plano imagen. M es el aumento de la lente, y el parámetro C_s es la constante de aberración esférica. Sus dimensiones son de longitud y para objetivos de alta resolución es del orden de los 2 mm. Para un valor típico de $\alpha = 5 \times 10^{-3}$ rad es

$$\frac{\Delta r_i}{M} = 2 \times (5 \times 10^{-3}) \text{ mm} = 2.5 \text{ \AA}$$

y por lo tanto el círculo de confusión, sobre el plano objeto, tiene un diámetro de 5 \AA solamente debido a la aberración esférica de la lente objetivo. En el caso de la luz visible una combinación apropiada de lentes convergentes y divergentes permite corregir apreciablemente este tipo de aberración. Pero en óptica electrónica, dado que no es posible diseñar lentes magnéticas divergentes, no existen maneras eficaces para corregir la aberración esférica. La única manera de disminuir su efecto es mediante aperturas adecuadas que limiten el ángulo α , pero tal como se verá en I.2.7, ésto solamente es posible hasta un cierto límite.

I.2.5 Astigmatismo

El astigmatismo se origina en un apartamiento de la simetría de revolución de una lente. En el caso óptico, una variación local del radio de curvatura de la lente da origen a esta aberración. En una lente magnética, cualquier inhomogeneidad en la manufactura de las piezas polares o una partícula magnética extraña, pueden dar origen a una distorsión de la simetría cilíndrica del campo magnético. En consecuencia, las distancias focales son distintas para rayos contenidos en dos planos distintos, Fig. I.10, variando entre un valor mínimo f_m para un cierto plano, y un valor máximo f_M para un plano perpendicular al anterior. De esta manera en una lente astigmática la imagen de un punto objeto P sobre un plano imagen ubicado entre f_m y f_M es en general una elipse, y en una posición particular intermedia es un círculo, denominado círculo de mínima confusión.

Para obtener una resolución de unos 5 \AA en un microscopio electrónico, las piezas polares de la lente objetivo deberían estar maquinadas dentro de unos 0.05μ . Dada la imposibilidad de alcanzar esta precisión, se introduce en el objetivo un dispositivo llamado comúnmente astigmador, que consiste en dos pares de pequeñas bobinas. La corriente que circula por ellas se puede ajustar desde el exterior del instrumento de tal manera de producir un campo magnético igual y de sentido opuesto al producido por los defectos de construcción.

Otra causa común de astigmatismo es la contaminación producida por el haz sobre las distintas aperturas, y sobre todo la de objetivo. Si el grado de contaminación no es muy grande, se puede corregir este efecto mediante el mismo astigmador. En caso contrario es necesario cambiar la apertura, o utilizar las llamadas aperturas de no-contaminación, sección I.4.1.

I.2.6 Aberración Cromática

Los electrones que atraviesan una lámina delgada sufren distintos procesos de interacción con los átomos que componen la muestra. En los procesos de difusión elástica, que dan origen al fenómeno de difracción, sección II, la energía de los electrones no es alterada. Pero en otro tipo

de procesos, denominados genéricamente difusión inelástica, un electrón puede perder una cierta fracción de su energía. Por lo tanto el haz que después de atravesar la muestra entra al campo magnético de la lente objetivo, no es estrictamente monoenergético, y se caracteriza por una cierta distribución de longitudes de onda. Análogamente al caso óptico, donde cada longitud de onda (color) es refractada de manera diferente por el material de la lente, el campo magnético de la lente objetivo desvía de manera diferente cada electrón según cual sea su longitud de onda (energía), ver por ejemplo ec. (I.14) y (I.16). Entonces a cada punto del plano objeto le corresponde un círculo en el plano imagen. Se puede demostrar que el radio de este nuevo círculo de confusión está dado por

$$\Delta r_c = M C_c \alpha \frac{\Delta E}{E} \quad (I.18)$$

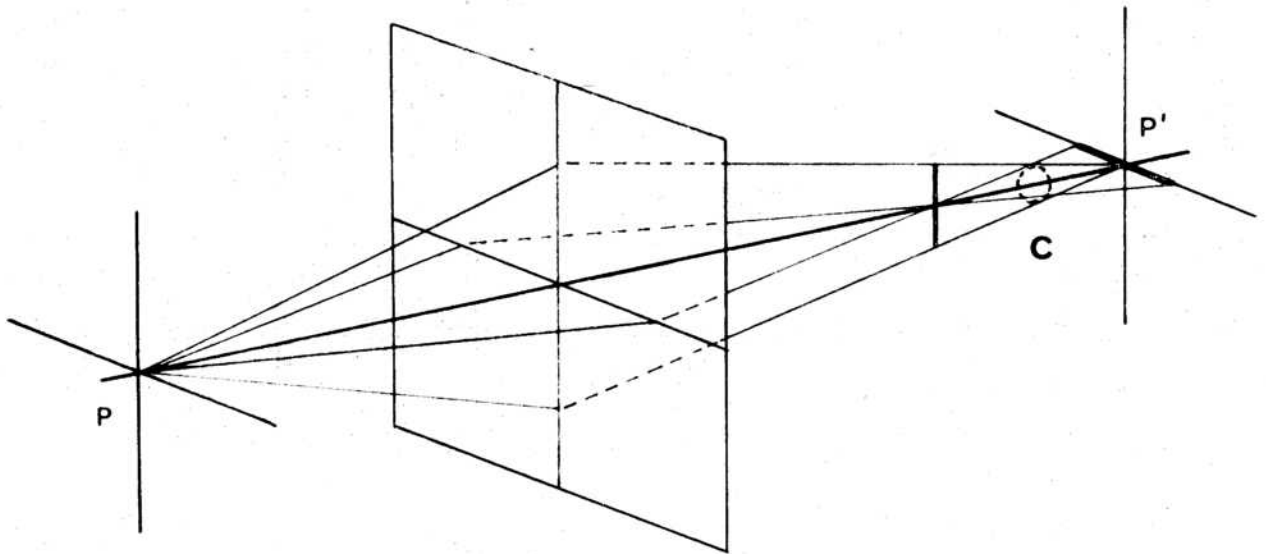
donde $\Delta E/E$ es la pérdida relativa de energía de los electrones del haz transmitido, α es el mismo ángulo de apertura definido en (I.2.4), ec. (I.17), M el aumento de la lente objetivo, y C_c la denominada constante de aberración cromática. Sus unidades son de longitud, y normalmente su valor numérico es muy próximo al valor f de la distancia focal de la lente.

I.2.7 Aberración por Difracción

Ya se mencionó en la sección I.2.4 que no existen dispositivos adecuados para eliminar la aberración esférica de una lente magnética. Su efecto se puede disminuir solamente introduciendo aperturas que limiten el ángulo α , ec. (I.17). Pero entonces es necesario tener en cuenta el efecto de difracción que afecta a toda radiación que atraviesa un obstáculo. En el caso de una apertura circular, la aberración por difracción da origen a un círculo de confusión, cuyo radio está dado por la ec. (I.1). En un microscopio electrónico es $n=1$ y $\sin \alpha \approx \alpha$, y por lo tanto el límite de resolución por efecto de difracción es

$$\Delta r_d = \frac{0.61}{\alpha} \lambda \quad (I.19)$$

donde λ es la longitud de onda de De Broglie del haz electrónico incidente. Según esta expresión, cuanto menor es el ángulo α , es más apreciable la aberración por difracción, mientras que según la ec. (I.17)



astigmatismo

Fig. I.10 - Astigmatismo. Cualquier apartamiento de la simetría de revolución de una lente magnética da origen al astigmatismo. En consecuencia las distancias focales son distintas para rayos contenidos en dos planos distintos. En una lente astigmática la imagen de un punto P es en general una elipse, y en una posición particular intermedia es un círculo C, denominado círculo de mínima confusión.

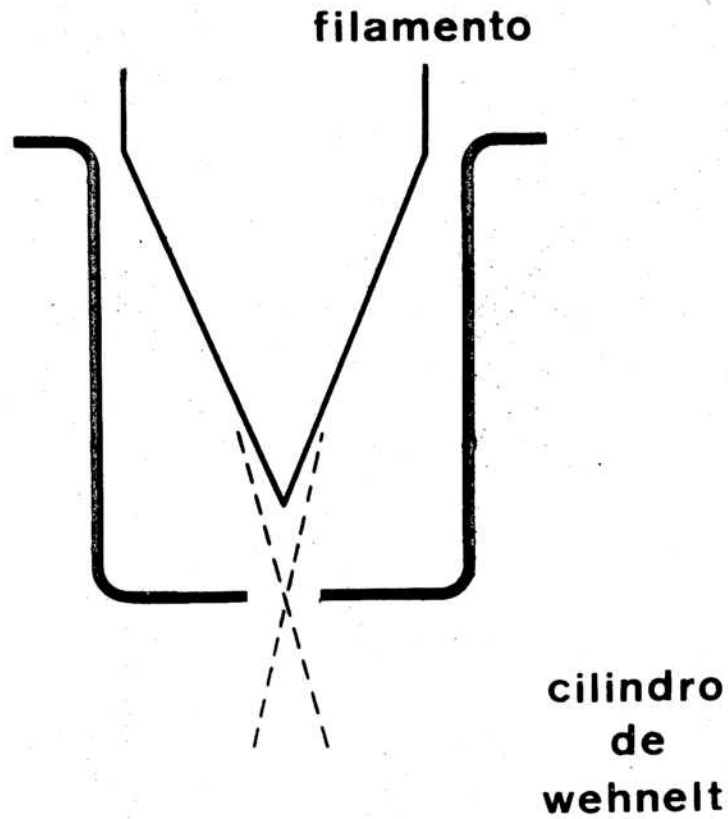


Fig. I.11 - Esquema de la fuente emisora de electrones de un microscopio electrónico. El filamento de tungsteno, calentado al rojo blanco por una corriente eléctrica, está rodeado por una pieza cilíndrica denominada cilindro de Wehnelt. Este está polarizado negativamente respecto del filamento. El campo eléctrico resultante focaliza el haz emitido en un punto de entrecruzamiento de unos 50μ de diámetro, que constituye la fuente de electrones del sistema óptico del microscopio.

la aberración esférica disminuye. Por lo tanto existe un ángulo de apertura α óptimo, para el cual la aberración resultante de ambos efectos es mínima. Sus valores están dados por

$$\alpha_{\text{opt}} = A \lambda^{1/4} C_s^{-1/4} \quad \Delta r_{\text{min}} = B \lambda^{3/4} C_s^{1/4} \quad (\text{I.20})$$

Las constantes A y B son del orden de la unidad. La elección de las aperturas en un sistema óptico electrónico se realiza entonces de acuerdo con las expresiones (I.20). Normalmente resulta

$$\alpha_{\text{opt}} = 5 \times 10^{-3} \text{ rad} = 0.3^\circ$$

que corresponde a una apertura de objetivo de unos 40μ . El valor de Δr_{min} resulta así del orden de unos pocos Å.

I.3 EL MICROSCOPIO ELECTRONICO DE TRANSMISION

En esta sección se describirán los principales elementos que componen un sistema óptico electrónico, y la función que desempeña cada uno de ellos en el microscopio de transmisión. En la sección I.4 se tratará el caso particular del microscopio Philips EM 300 instalado en el Departamento de Metalurgia de la C.N.E.A.

I.3.1 Cañón Electrónico

I.3.1.1. Filamento. Cilindro de Wehnelt

El primer elemento de todo sistema óptico electrónico es la fuente emisora de electrones. En los microscopios comerciales se utilizan normalmente filamentos de tungsteno calentados al rojo blanco por medio de una corriente eléctrica. El filamento está rodeado por una pieza cilíndrica, denominada cilindro de Wehnelt (Fig. I.11), que se mantiene a un potencial relativo variable, del orden de 200 a 400 Volts, valor controlado por la corriente de emisión. Este cañón electrónico (tipo triodo), con potencial de polarización autorregulado permite obtener una emisión

electrónica estable, y además limita la zona del filamento a partir de la cual se emiten electrones. El campo eléctrico establecido entre el cilindro de Wehnelt y el filamento, focaliza los electrones emitidos sobre una zona de diámetro próximo a los 50μ . Este punto de entrecruzamiento es en realidad la fuente de electrones del sistema óptico del microscopio.

Aumentando la corriente de calefacción, aumenta la temperatura del filamento y por lo tanto la emisión electrónica. En el sistema tipo triodo se llega a un punto de saturación, que no es conveniente sobrepasar pues, en caso contrario, se disminuye la vida útil del filamento sin ninguna ventaja adicional.

El valor de la corriente de filamento correspondiente a la saturación puede variar ligeramente con el tiempo de uso, y es por lo tanto conveniente verificar periódicamente el punto de operación correcto. Normalmente un filamento de tungsteno alcanza unas 40 horas de uso.

Recientemente se han desarrollado cátodos de hexaboruro de lantano ($La B_6$) mucho más durables que los filamentos de tungsteno y que permiten obtener mayor brillo en las imágenes (9). El filamento emisor es en este caso una varilla de $La B_6$ calentada indirectamente por radiación o bombardeo electrónico a partir de una espina de tungsteno, Fig. I.12. El radio de curvatura en la punta del filamento es de $\sim 1 \mu$ y por lo tanto mejora también la resolución de las imágenes finales. Para una operación estable de este tipo de cátodo se necesita un vacío del orden de 10^{-6} torr.

La búsqueda de fuentes electrónicas más intensas condujo al desarrollo de sistema de emisión de campo, también llamada cátodo frío. El fenómeno de emisión de electrones bajo la acción de un campo electrónico se conoce desde hace mucho tiempo, pero recién en 1970 se aplicó a la construcción de una fuente emisora en un microscopio electrónico. Este nuevo cañón electrónico está compuesto por un cátodo de tungsteno muy agudo (radio de curvatura 600 a 2000 Å) y un ánodo muy cercano conectado a un alto potencial positivo. El campo eléctrico resultante, unos 10^7 volts/cm sobre la punta, es suficiente para arrancar electrones de la misma. La emisión aumenta además orientando cristalográficamente la aguja de tungsteno. De esta manera se pueden obtener intensidades hasta 10000 veces mayores que las correspondientes a la emisión termoiónica, aunque por razones de construcción se reducen a un factor 30 o 50. El sistema de emisión de campo solamente puede operar con un vacío del orden de 10^{-10} torr.

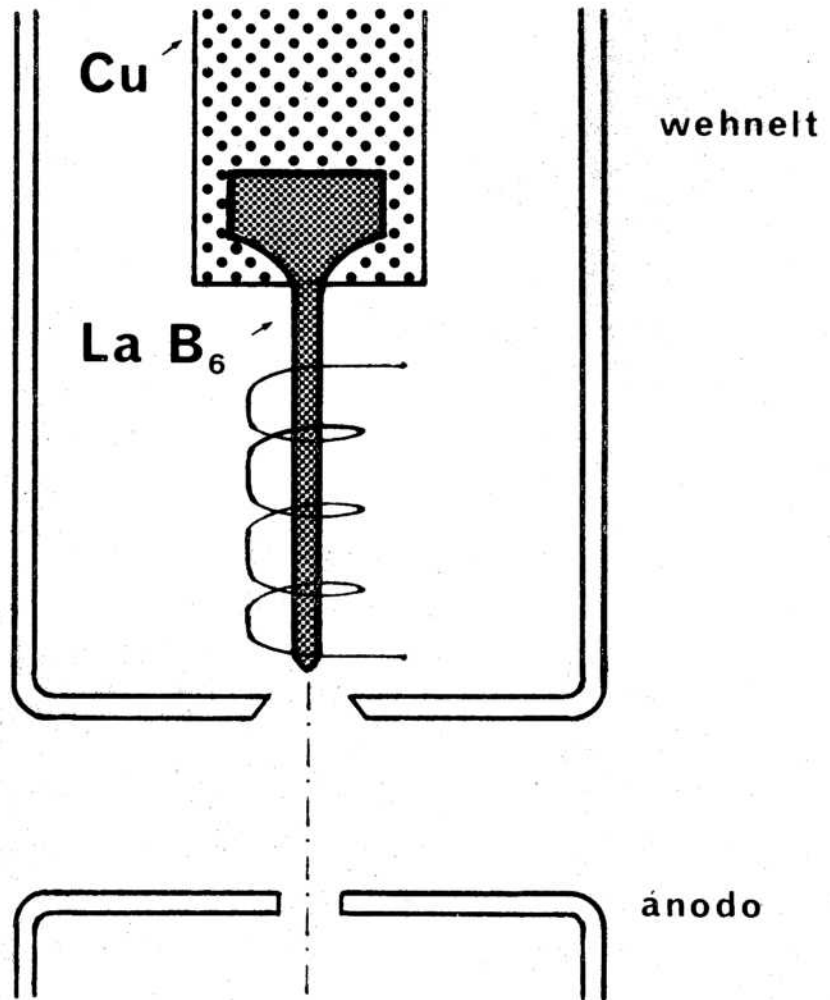


Fig. I.12 - Esquema de una fuente de electrones de hexaboruro de lantano. El filamento emisor es una varilla de La B_6 calentada por radiación o bombardeo electrónico a partir de una espira de tungsteno. Este tipo de fuente permite obtener mayor intensidad en las imágenes electrónicas, y una cierta mejora de la resolución.

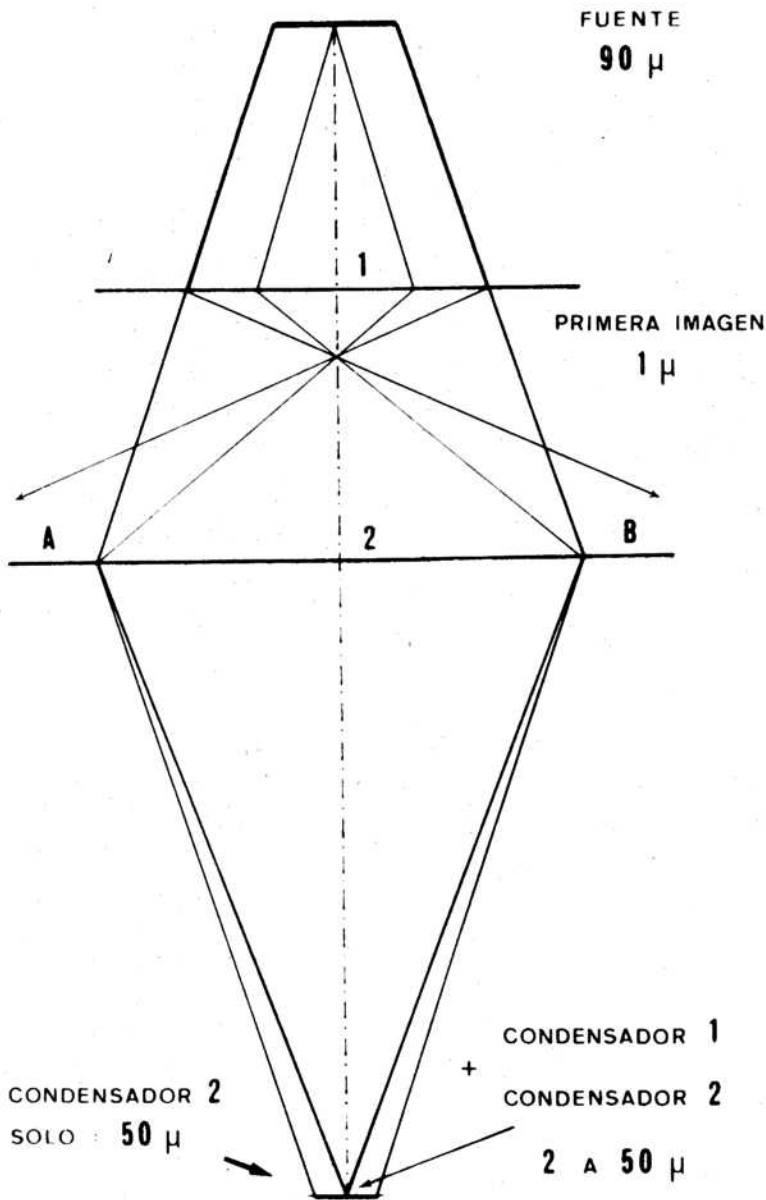


Fig. I.13 - Esquema de un sistema de doble condensador. El primer condensador proyecta una imagen del punto de entrecruzamiento de magnificada en un factor ≈ 100 . La segunda lente proyecta a su vez esta imagen sobre la muestra, aumentada en un factor ~ 2 . Variando la potencia del segundo condensador es posible variar en forma continua el diámetro de la zona iluminada, desde un valor mínimo de $\sim 2 \mu$ hasta un máximo de $\sim 50 \mu$.

I.3.1.2 Anodo Acelerador

Los electrones emitidos por el filamento y pre-focalizados por el cilindro de Wehnelt, son acelerados por un ánodo situado a unos pocos milímetros por debajo del cilindro de Wehnelt. En el microscopio Philips EM 300 la tensión de aceleración puede variarse entre un valor mínimo de 20 kV y un máximo de 100 kV. Dentro de este rango la variación de la longitud de onda de los electrones no es tan grande como para afectar apreciablemente la resolución del instrumento, que, como se ha mencionado en I.2.4 está limitada fundamentalmente por la aberración esférica. Por lo tanto la selección de la tensión de operación de un microscopio electrónico depende de las características de la muestra.

Un haz de mayor energía permite observar detalles del interior de una muestra de gran espesor, que podrían ser indetectables con un haz de baja energía. Pero al aumentar el potencial acelerador disminuye la difusión de electrones por los átomos de una muestra, y el contraste es en consecuencia más débil. Por lo tanto en la observación de muestras de espesores menores que unos 1000 Å, sobre todo si son réplicas de carbono o muestras amorfas en general, conviene seleccionar tensiones de aceleración bajas. Por el contrario en muestras de mayores espesores, o sustancias cristalinas en general, se prefiere trabajar con un haz de mayor energía. Aunque el contraste disminuye ligeramente, se obtiene en cambio una mayor penetración, una mejor resolución, y se aumenta considerablemente el brillo de la imagen en la pantalla final de observación.

La intensidad del haz electrónico puede controlarse variando el potencial de polarización del cilindro de Wehnelt. Aumentando la intensidad del haz, aumenta la densidad de corriente sobre la muestra y por lo tanto la iluminación de la imagen. En general, por problemas de contaminación ver sección I.4.3, conviene operar con las intensidades más bajas posibles, compatibles con un brillo adecuado de la imagen final.

I.3.2 Lentes Condensadoras

La función del sistema de lentes condensadoras es concentrar un

haz paralelo de electrones sobre una cierta zona de la muestra.

El sistema de iluminación de los primeros instrumentos, compuesto por una única lente condensadora, proyectaba sobre la muestra una imagen del punto de entrecruzamiento demagnificada en un factor $\approx 2/3$. De acuerdo a I.3.1.1 la zona de la muestra iluminada por el condensador era un círculo de unos 50 a 60 μ de diámetro. Como normalmente en una lámina delgada cristalina se observan zonas no mayores a unos 20 μ , el sistema de condensador único introducía una contaminación innecesaria sobre grandes zonas de la muestra, además de significar un bajo rendimiento desde el punto de vista óptico.

La introducción del sistema de doble condensador por Siemens constituyó así un gran adelanto para la microscopía electrónica de láminas cristalinas. En la Fig. I.13 se detalla el principio de este sistema. El primer condensador, generalmente una lente de gran poder, proyecta una imagen del punto de entrecruzamiento demagnificada en un factor ≈ 100 . La segunda lente condensadora proyecta a su vez esta imagen sobre la muestra aumentada aproximadamente dos veces. El diámetro del haz incidente es por lo tanto de unos 2 μ . Variando la excitación del condensador 2 es posible variar en forma continua el diámetro de la zona iluminada, desde el valor mínimo de 2 μ hasta un máximo de unos 50 μ .

Con el sistema de doble condensador, por lo tanto

- solamente es iluminada la zona de la muestra que aparece en la pantalla de observación, evitándose una contaminación inútil de las zonas adyacentes;
- se disminuyen los efectos de carga eléctrica de la muestra, factor particularmente importante en muestras no conductoras;
- la divergencia angular del haz es menor y los diagramas de difracción resultan así más precisos.

I.3.3 Lente Objetivo

La lente objetivo es el componente más importante de todo el sistema óptico de un microscopio electrónico. La resolución de la imagen final depende fundamentalmente de la calidad de esta lente y de la corrección de sus aberraciones.

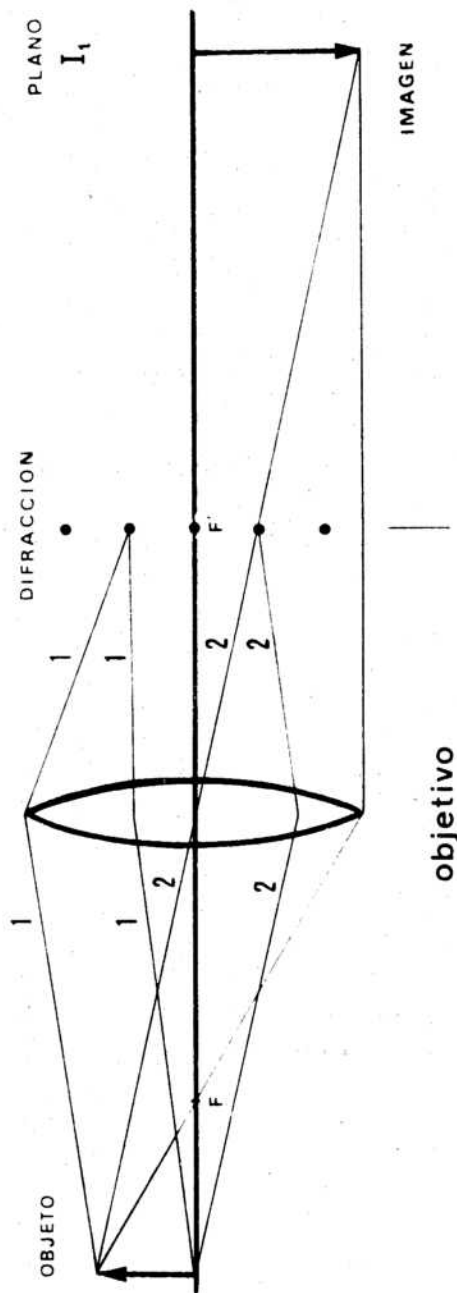


Fig. I.14 - Formación de la primera imagen y de su diagrama de difracción por la lente objetivo de un microscopio electrónico. Los rayos principales esquematizados en la figura no necesariamente coinciden con las trayectorias reales de los electrones. El haz de rayos paralelos producidos por los condensadores atraviesa la muestra, y una primera imagen electrónica de ésta, invertida 180°, se forma sobre el plano I₁. Los haces difractados son focalizados sobre el plano focal imagen de la lente. Es importante notar que la lente objetivo no invierte el diagrama de difracción de la muestra.

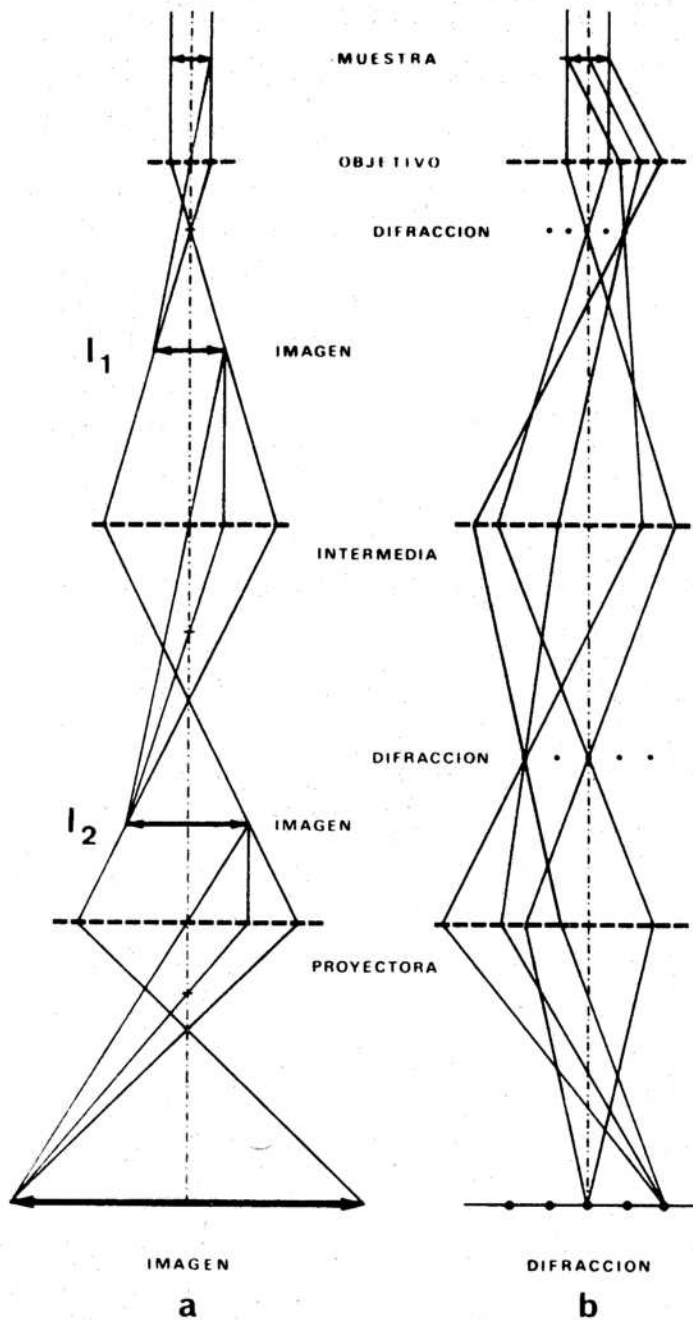


Fig. I.15 - Esquema de la formación de una imagen (a) y de su diagrama de difracción (b) en un microscopio electrónico. Se indican las trayectorias reales de los electrones, así como la construcción de imágenes por medio de rayos principales, de acuerdo a las leyes de la óptica geométrica. Nótese que las trayectorias de los electrones son las mismas hasta la lente intermedia. La variación de la corriente de esta última hace aparecer en la pantalla de observación la imagen electrónica de la muestra o su diagrama de difracción.

Las trayectorias de los rayos principales en la lente objetiva, si no necesariamente coinciden con las trayectorias reales de los electrones, ver sección I.2.3, se esquematizan en la Fig. I.14. El haz de rayos paralelos proyectado por el sistema de condensadores, atraviesa una muestra, y una primera imagen electrónica de ésta se forma sobre un plano I_1 a una distancia p^1 de la lente, recordar ec. (I.13). Esta imagen, real e invertida (rotada además en un ángulo θ dado por la ec. (I.16)) sirve a su vez de objeto para la lente siguiente, denominada lente intermedia. En condiciones normales de operación del microscopio, la corriente de la lente intermedia (y por lo tanto su distancia focal f , ec. (I.14)) se ajusta de manera de reproducir sobre la pantalla final, convenientemente aumentada, la distribución de intensidades electrónicas del plano I_1 . Se suele decir que en estas condiciones el microscopio opera en iluminación normal de imagen.

Por otro lado los haces difractados por la muestra son focalizados por la lente objetivo sobre su plano focal imagen. Por lo tanto sobre este plano se forma el diagrama de difracción de la muestra. Disminuyendo la corriente de la lente intermedia se puede ajustar el sistema óptico de manera que focalice ahora sobre este plano, y que en la pantalla aparezca el diagrama de difracción magnificado en un cierto factor. El microscopio opera entonces en difracción. Normalmente la operación de pasaje de imagen a difracción se realiza mediante un solo movimiento de la perilla que controla la corriente de la lente intermedia.

Es importante notar que la lente objetivo no invierte el diagrama de difracción proyectado sobre el plano focal imagen. Este hecho deberá tenerse en cuenta siempre que se quiera relacionar una imagen electrónica con su correspondiente diagrama de difracción, ver sección I.4.4.2.

I.3.4 Lente Intermedia y Lente Proyectora

La lente intermedia produce en algún otro plano I_2 del sistema óptico electrónico, una segunda imagen de la muestra, o de su figura de difracción, Fig. I.15. La corriente de las bobinas de esta lente puede variarse dentro de un rango muy amplio, controlándose de esta manera la magnificación final sobre la pantalla de observación. En los

instrumentos modernos, el pasaje de un aumento a otro se realiza directamente con la perilla de control de corriente. El microscopio Philips EM 300 dispone además de una segunda lente intermedia, llamada lente de difracción, ver sección I.4.1.

Finalmente la lente proyectora aumenta unas 100 veces la imagen producida por la lente intermedia y la proyecta sobre la pantalla fluorescente. En general la corriente de esta lente se ajusta a un valor conveniente para minimizar las distorsiones, y se mantiene fija durante el curso de las observaciones. En la Fig. I.15 (a) y (b) se muestra el esquema de formación de imágenes o diagramas de difracción, respectivamente, a través del sistema óptico de un microscopio electrónico.

I.3.5 Difracción por un Area Selecta

En un microscopio electrónico es posible obtener el diagrama de difracción de una zona bien determinada de la muestra, mediante la técnica conocida como difracción por un área selecta. Para ello en el plano donde se forma la primer imagen dada por la lente objetivo, I_1 en la Fig. I.14, se introduce una apertura de un cierto diámetro D , denominada generalmente apertura de difracción o apertura de área selecta. Suponiendo que la lente esté libre de aberraciones esta operación es equivalente a introducir una apertura de diámetro M veces menor sobre la muestra. Por lo tanto solo los electrones que han atravesado un área de diámetro D/M llegarán a la pantalla final, tanto para formar la imagen electrónica como el respectivo diagrama de difracción. Esta técnica permite obtener así el diagrama de difracción de una partícula o fase aislada en una muestra inhomogénea. Por ejemplo, con una apertura de 25μ , y $M=25$, valor común del aumento de una lente objetivo, es posible observar el diagrama de difracción de un precipitado de 1μ . Si además, desplazando la apertura de difracción, se obtiene el diagrama de la zona adyacente al precipitado, es posible determinar la relación cristalográfica entre las dos fases, ver sección II. Normalmente en un microscopio electrónico el plano I_1 es fijo, y coincidente con el plano en el cual desliza la apertura de área selecta.

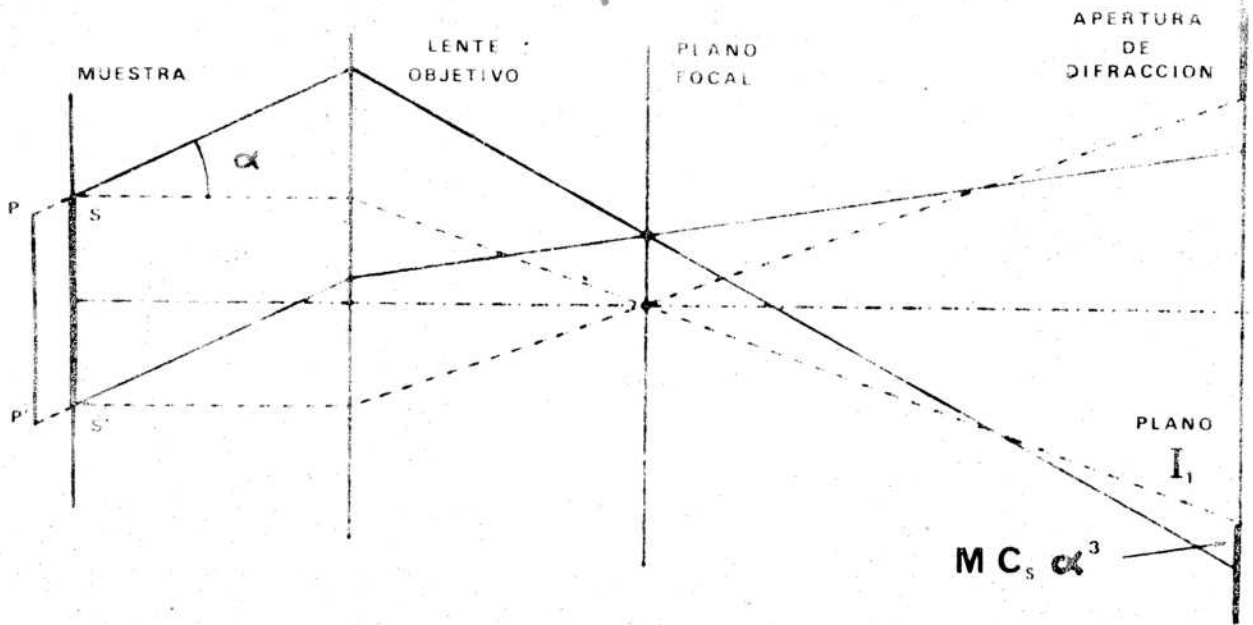


Fig. I.16 - Efecto de la aberración esférica de la lente objetivo sobre la precisión de un diagrama de difracción por un área selecta. La imagen de la zona SS' formada por el haz transmitido está comprendida dentro de la apertura de difracción, pero no sucede lo mismo con la imagen formada por el haz difractado (hkl), pues debido a la aberración esférica ésta se desplaza hacia abajo una distancia $MC_s \alpha^3$. En consecuencia, en un diagrama de difracción, algunos haces difractados pueden originarse en zonas situadas fuera de la apertura de difracción.

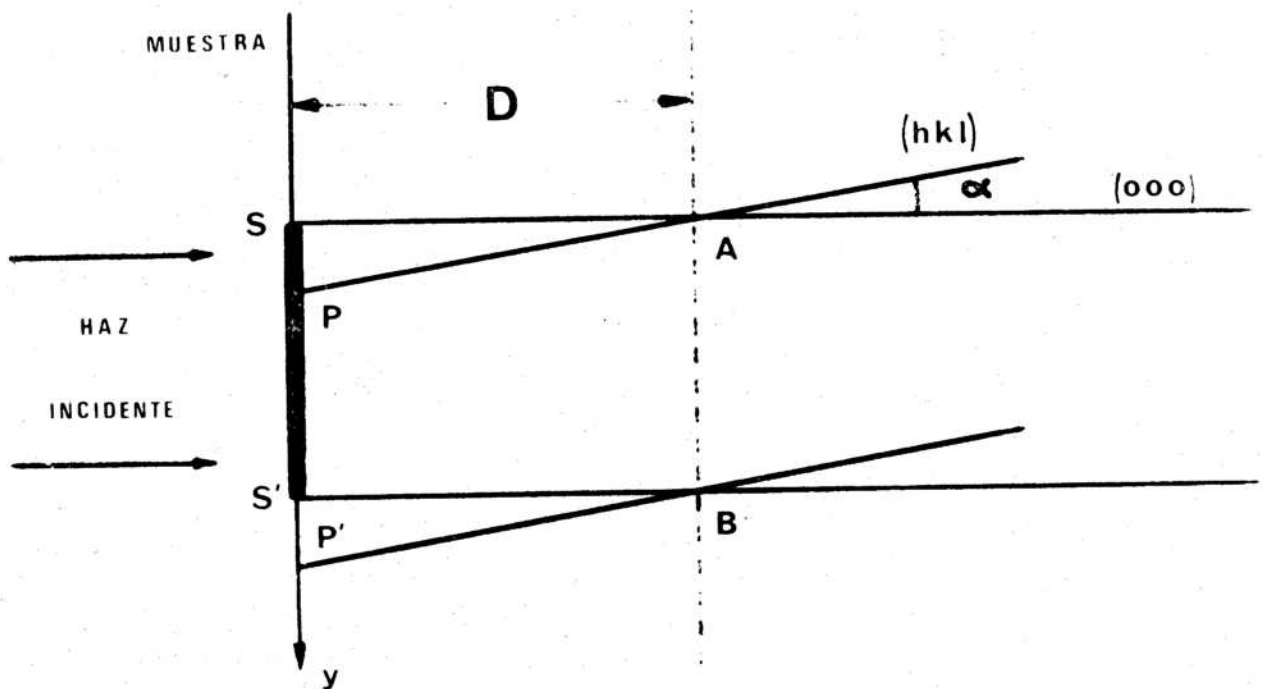


Fig. I.17 - Efecto de una focalización incorrecta de la lente objetivo sobre la precisión de un diagrama de difracción por un área selecta. Si la lente se focaliza erróneamente sobre un cierto plano AB, desplazado una distancia D respecto de la muestra, el haz (000) proviene del área SS elegida en la muestra, pero el haz (hkl) que atraviesa AB proviene de otra zona PP', ligeramente desplazada de la anterior en un valor $y = D \alpha$.

Las operaciones para obtener un diagrama de difracción por un área selecta depende de cada instrumento en particular, pero todas ellas corresponden a la siguiente secuencia:

- Se introduce la apertura de difracción; en la pantalla de observación aparece la sombra correspondiente superpuesta con la imagen;
- se ajusta la posición de la apertura hasta que coincida con la zona cuyo diagrama se desea obtener,
- se ajusta la corriente de la lente intermedia hasta focalizar la sombra de la apertura,
- se focaliza la imagen mediante las perillas de la lente objetivo; de esta manera la primer imagen está focalizada sobre el mismo plano donde desliza la apertura de difracción,
- se disminuye la corriente de la lente intermedia con la perilla correspondiente y en la pantalla de observación aparece el diagrama de difracción correspondiente a la zona de la muestra comprendida dentro de la apertura de área selecta.

En realidad las aberraciones de la lente objetivo afectan la precisión de un diagrama de difracción por un área selecta, puesto que éste no corresponde exactamente a la zona delimitada por la apertura de difracción. El principal error proviene de la aberración esférica. En la Fig. I.16 la imagen de una zona dada SS' de la muestra, está comprendida dentro de la apertura situada en el plano I_1 . Si la lente objetivo está correctamente focalizada, en la pantalla de observación aparece en foco la imagen y esta apertura. Consideremos ahora el haz transmitido (000) y uno de los haces (hkl) difractados bajo un cierto ángulo α . La imagen de la zona SS' formada por el haz transmitido está comprendida dentro de la apertura de difracción, pero no sucede lo mismo con la imagen formada por el haz (hkl), pues debido a la aberración esférica ésta se desplaza hacia abajo una distancia $MC_s \alpha^3$, según la expresión (I.17). La zona de la muestra que origina el haz (hkl) no es ya SS' sino que es otra zona PP' desplazada una distancia

$$y = C_s \alpha^3 \quad (I.21)$$

Los haces (000) y (hkl) del diagrama de difracción se originan por lo tanto en distintas regiones de la muestra. El desplazamiento relativo y entre las mismas depende de α^3 y se hace apreciable para haces difractados de alto orden. En consecuencia en un diagrama de difracción estos últimos haces pueden originarse en zonas situadas fuera de la apertura de difracción.

Otra fuente de error en un diagrama de difracción por un área selecta proviene de la focalización incorrecta de la lente objetivo. Si esta lente se focaliza erróneamente sobre un cierto plano situado a una distancia D de la muestra, Fig. I.17, la imagen de la zona delimitada por AB es la que aparece dentro de la apertura de difracción. Esta zona es atravesada por el haz (000) proveniente del área elegida SS' de la muestra, pero el haz (hkl) que atraviesa AB proviene de otra área PP'. En la Fig. I.17 se ve fácilmente que el desplazamiento y entre las dos zonas está dado por

$$y = D \alpha \quad (I.22)$$

donde D es positivo para el caso de sobrefocalización (mayor potencia de la lente objetivo) y negativo para subfocalización. Por ejemplo para un error en la focalización del orden de los 10μ , valor típico para una muestra gruesa, el desplazamiento y resulta de unos 0.15μ para la reflexión (111) del aluminio. El error cometido por mala focalización del objetivo, puede estimarse por lo tanto en 0.1 a 0.2μ . Tiene sentido entonces observar diagramas de difracción de precipitados aislados del orden de 1μ , pero el método es dudoso cuando se observan zonas menores que 0.5μ .

I.3.6 Poder de Resolución de un Microscopio Electrónico de Transmisión

En la observación de sustancias amorfas la aberración cromática es la que limita el poder de resolución de un microscopio electrónico. Como se ha tratado en la sección I.2.6 un haz de electrones que incide sobre una muestra interacciona con los átomos de la misma, dando como resultado un haz transmitido que no es estrictamente monoenergético.

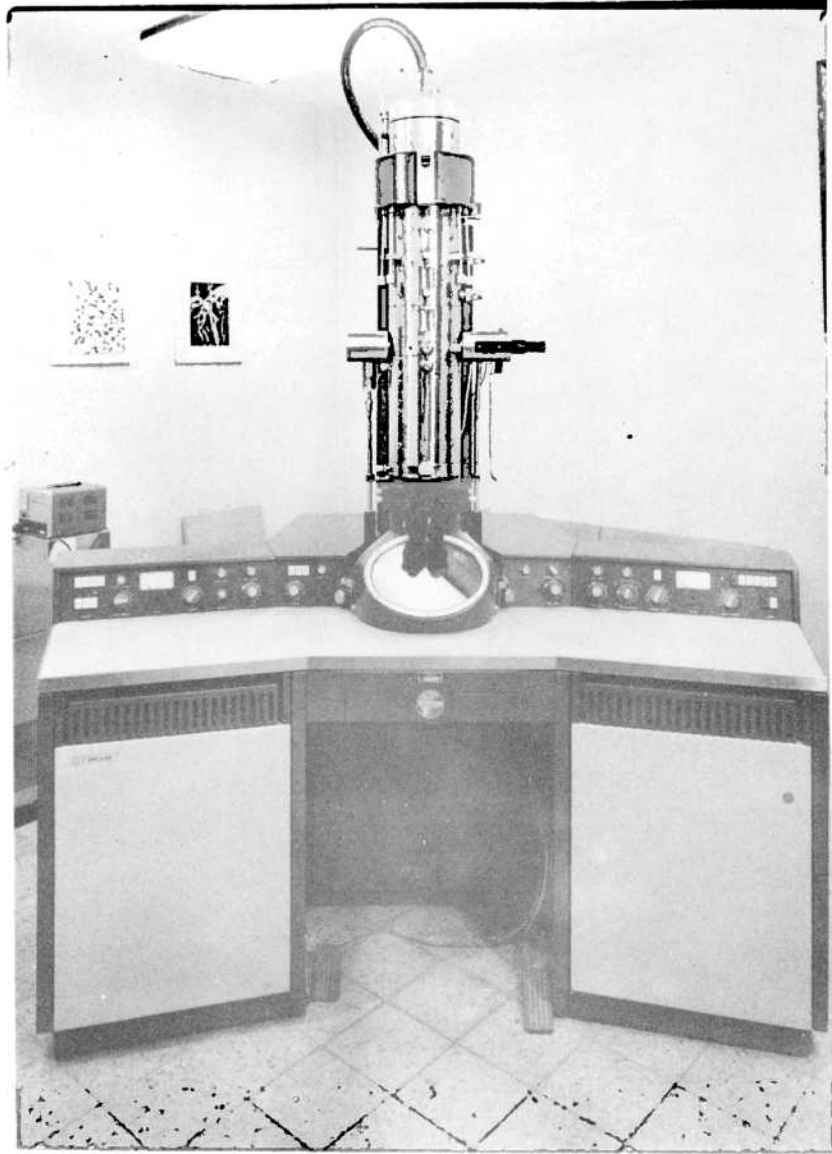


Fig. I.18 - Vista general del microscopio Philips EM 300 instalado en el Departamento de Metalurgia de la C.N.E.A. La resolución máxima del instrumento es de 3.5 Å. Atención: N.J. Marccone.

Existen evidencias experimentales de pérdidas del orden de los 20 eV en un haz de 100 kV, que se traducen en un círculo de confusión por aberración cromática de unos 25 Å, según la expresión (I.18). Por lo tanto es muy difícil observar detalles inferiores a este valor en una muestra amorfa, como es el caso de una réplica de carbono. Sin embargo en muestras cristalinas existen mecanismos de propagación mediante las cuales un haz puede ser fácilmente transmitido a través de una lámina delgada. De esta manera las pérdidas de energía son mucho menores y es posible alcanzar en este caso una resolución del orden de los 4 o 5 Å en la imagen final.

I.3.7 Profundidad de Campo y Profundidad de Foco

La profundidad de campo D es la máxima diferencia de profundidades sobre dos puntos de una lámina delgada, para la cual las respectivas imágenes aparecen simultáneamente en foco. Para todos los puntos separados por una distancia menor que D , el ensanchamiento de la imagen debido a la no-focalización es inferior a la resolución del instrumento, y por lo tanto ambas imágenes se consideran "en foco". En un microscopio electrónico moderno, la profundidad de campo es del orden de los 4000 Å. Como las muestras no sobrepasan en general los 3000 Å de espesor la focalización de un detalle dado es suficiente para garantizar la focalización de todos los detalles de una lámina delgada. Es interesante notar que en microscopía óptica la profundidad de campo es del orden del poder de resolución, mientras que en el caso electrónico, es unas 500 a 1000 veces mayor.

La profundidad de foco es la distancia que corresponde a la profundidad de campo en el espacio imagen. Debido a los grandes aumentos y las características de las lentes magnéticas de un microscopio electrónico, la profundidad de foco es superior a las dimensiones del instrumento. Normalmente la imagen electrónica se focaliza sobre la pantalla de observación y resulta también en foco al registrarse en una placa fotográfica distante algunos centímetros de la misma. En particular el microscopio Philips IM 300 dispone de una cámara de película de 35 mm situada por encima de la pantalla fluorescente, y un sistema de placas de 6.5 x 9 cm ubicadas en la parte inferior del instrumento.

I.4 EL MICROSCOPIO ELECTRONICO PHILIPS EM 300

I.4.1 Columna. Aperturas de Objetivo y Difracción. Platina de Alta Resolución y Goniométrica

La Fig. I.18 corresponde a una vista general del microscopio Philips EM 300 instalado en el laboratorio, y en la Fig. I. 19 se puede ver más en detalle la columna del instrumento. El cañón electrónico es de tipo triodo, compuesto por un filamento de tungsteno, un cilindro de Wehnelt, y un ánodo acelerador cuyo potencial puede variarse entre 20 y 100 kV. El haz electrónico es focalizado sobre la muestra por un sistema de dos lentes condensadoras. La lente objetivo da una primer imagen de la muestra aumentada unas 100 veces, que es luego magnificada por dos lentes intermedias. Según cual sea la magnificación final, pueden funcionar ambas simultáneamente o solamente una de ellas. Finalmente, la lente proyectora hace visible la imagen sobre la pantalla fluorescente de observación.

La apertura de objetivo se introduce para eliminar los haces difractados y dejar pasar solamente el haz transmitido a través de la muestra (campo claro), ver Fig. I.3, o por el contrario seleccionar uno de los haces difractados para obtener una imagen de campo oscuro. Actualmente se utilizan las llamadas aperturas de no contaminación. Estas están compuestas por láminas muy delgadas de oro, que durante las observaciones se mantienen al rojo debido al calentamiento del haz electrónico, evitando prácticamente toda contaminación en sus bordes.

La apertura de difracción o de área selecta, sección I.3.5, desliza sobre el plano donde se forma la primer imagen de la muestra dada por la lente objetivo, ver Fig. I.14. El microscopio incluye una apertura cuyo tamaño puede variarse mediante una perilla situada en el exterior de la columna.

Dos platinas, con las respectivas piezas polares de la lente objetivo, pueden colocarse en la columna del microscopio. La platina de alta resolución, o platina fija, permite alcanzar la máxima resolución del instrumento. Sin embargo, para la observación de muestras delgadas metálicas se prefiere utilizar la platina goniométrica. Aunque no es posible resolver detalles inferiores a unos 10 \AA , esta platina permite, mediante portamuestras adecuados, las inclinaciones necesarias para orientar la lámina delgada y observar así distintos defectos cristalinos. Además

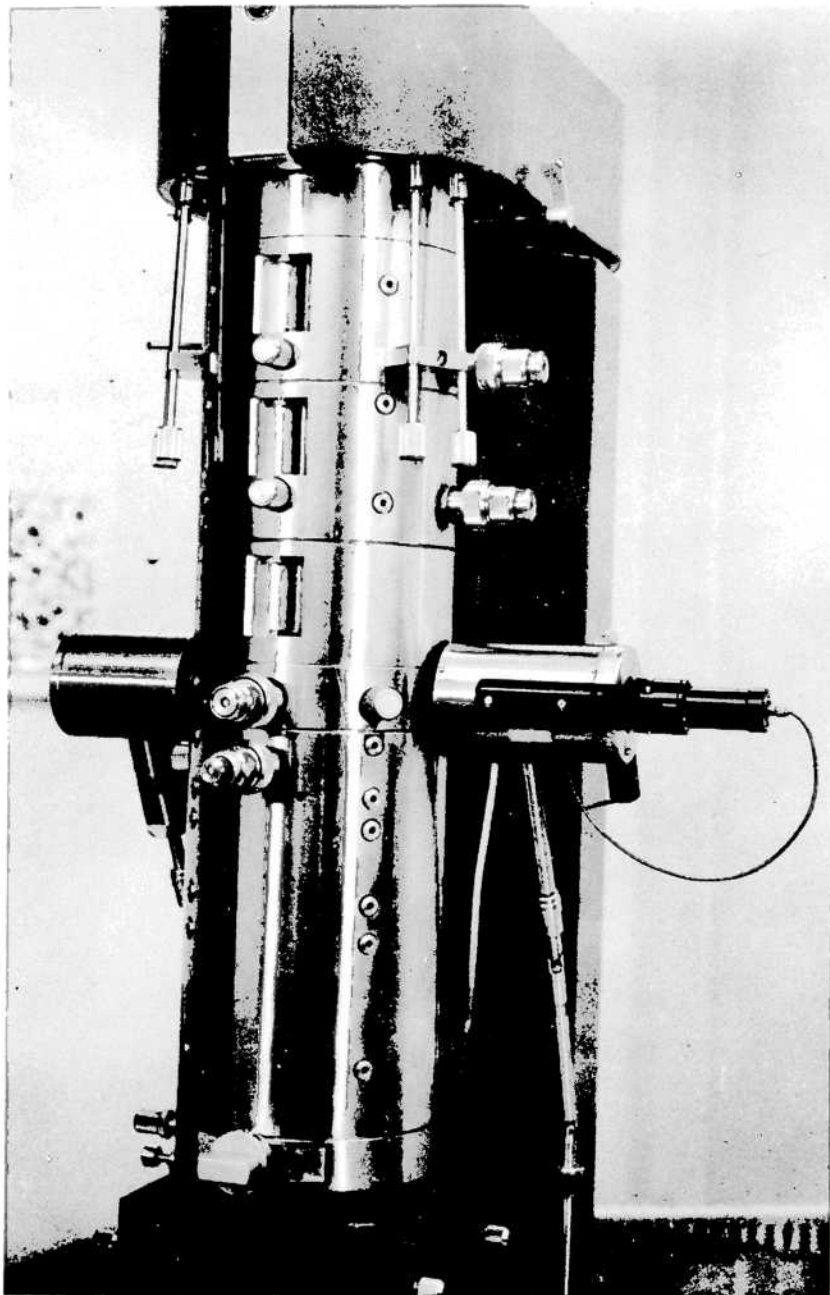


Fig. I.19 - Detalle de la columna del microscopio electrónico Philips EM 300, equipado con platina goniométrica. Esta platina permite orientar adecuadamente una lámina delgada para las observaciones de distintos defectos cristalinos. Atención: N.J. Marcone.



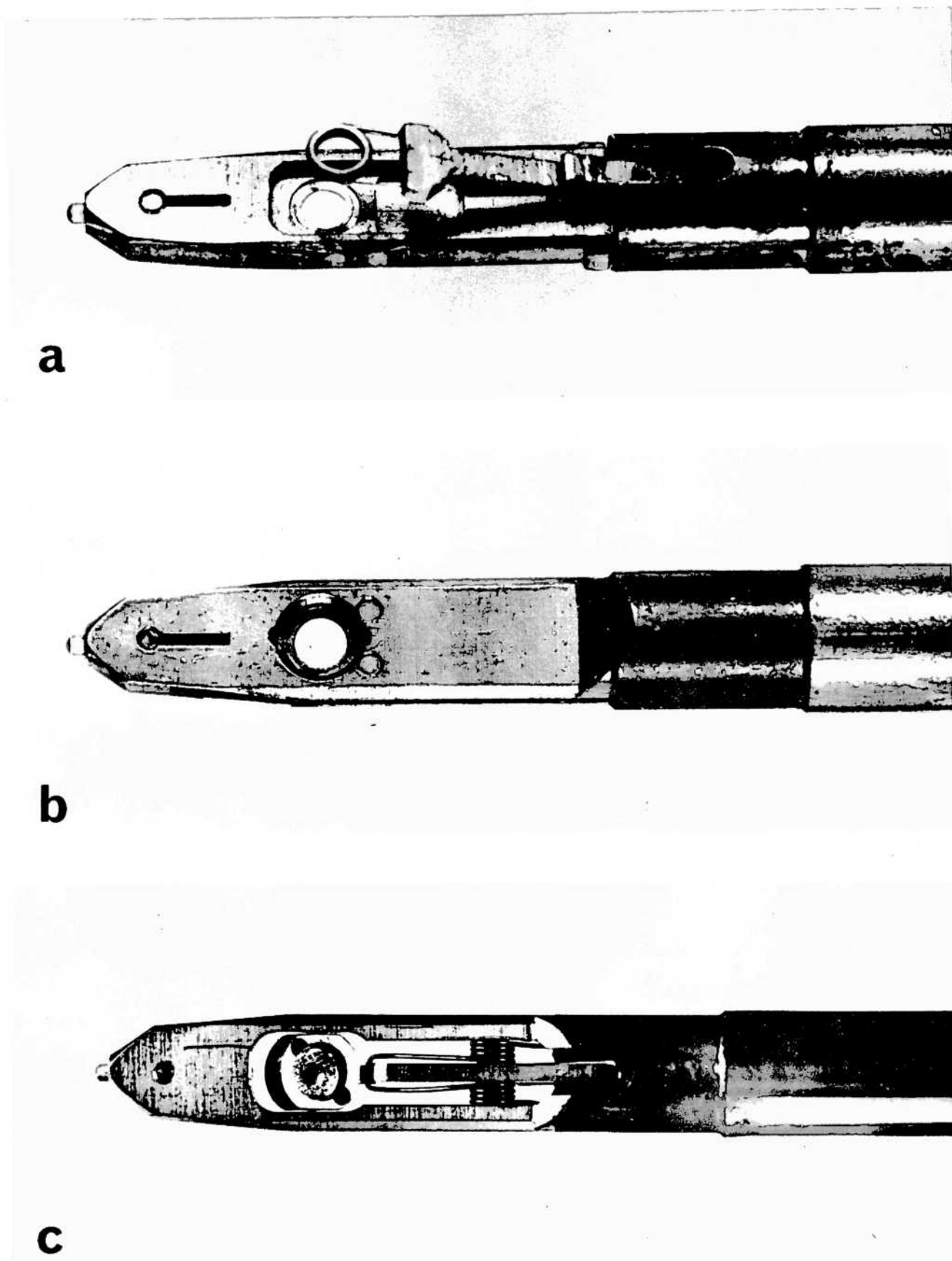


Fig. I.20 - Portamuestras disponibles en el microscopio electrónico Philips EM 300. a) Fijo - b) Rotación - c) Doble inclinación.

Atención: N.J. Marccone

dispone de un sistema para colocar cualquier zona de la muestra sobre uno de los ejes de giro. Mediante este ajuste la zona observada permanece en la pantalla de observación al variar la inclinación.

I.4.2 Portamuestras

En la Fig. I.20 se muestran los tres soportes portamuestras comúnmente utilizados en la observación de láminas cristalinas. En el soporte de la Fig. I.20 (a) la muestra se sujeta mediante un aro metálico y un resorte. Aunque permite solamente una pequeña inclinación según un solo eje, se utiliza para muestras magnéticas o de espesores mayores que 0.3 mm. El portamuestras de rotación, Fig. I.20 (b), permite rotar la muestra 360° sobre su propio plano, y una inclinación de $\pm 45^\circ$ alrededor del eje principal. En el portamuestras de doble inclinación, Fig. I.20 (c), la muestra se puede inclinar según dos ejes perpendiculares en $\pm 30^\circ$. Uno de ellos es coincidente con el eje del soporte. El espesor de la lámina delgada no debe sobrepasar 0.3 mm.

Además el instrumento dispone de un portamuestras que permite el calentamiento de las muestras durante las observaciones hasta una temperatura máxima de $\approx 1000^\circ \text{C}$, y un portamuestras en el cual la lámina delgada es enfriada hasta unos -150°C por medio de un conductor de cobre en contacto con nitrógeno líquido. Una descripción más detallada de estos soportes puede encontrarse en una publicación del laboratorio. (10).

I.4.3 Sistema de Anticontaminación

Durante la observación de una muestra en el microscopio electrónico, los hidrocarburos volátiles provenientes del aceite de la difusora o de las juntas de vacío, se depositan progresivamente sobre la muestra y son polimerizados por el haz electrónico. De esta manera se va formando una capa amorfa sobre la superficie de la muestra que afecta directamente el contraste y la resolución de la imagen. Para disminuir este efecto se introduce un sistema de anticontaminación, que consta de dos piezas de geometría adecuada que rodean la muestra, enfriadas desde el exterior

con nitrógeno líquido, Fig. I.21. Las moléculas de hidrocarburos se condensan preferentemente sobre estas superficies frías minimizando la contaminación de la muestra. De todas maneras es conveniente que las observaciones de una muestra dada sean siempre breves, evitando exposiciones inútiles frente al haz electrónico, puesto que aún con los sistemas de anticontaminación actuales, la capa amorfa crece con velocidades del orden de $1 \text{ \AA}/\text{seg}$. Por ejemplo, en una lámina delgada de cobre o aluminio, la pérdida de contraste ya se hace apreciable a los 15 o 20 minutos de observación de una zona dada. Además las tensiones generadas por la capa de contaminación van deformando la lámina delgada y suelen aparecer debido a ello contrastes no deseados, como los contornos de extinción, ver sección II.

I.4.4 Calibración del Instrumento

I.4.4.1 Calibración de la Magnificación

Para poder realizar observaciones cuantitativas en un microscopio electrónico es necesario conocer el aumento total de la imagen sobre la pantalla o la placa fotográfica. Normalmente se proveen tablas que proporcionan directamente el aumento en función de la corriente en la lente intermedia. Sin embargo estos datos corresponden a algún prototipo existente en fábrica, y pueden darse apartamientos apreciables para cada instrumento en particular.

Dos métodos se utilizan corrientemente para la calibración de la magnificación:

- observando las imágenes de réplicas de carbono de redes de difracción óptica,
- mediante la observación directa de imágenes de planos cristalinos de una sustancia conocida.

En el laboratorio se efectuó mediante el primer método la calibración del microscopio electrónico Philips EM 300 equipado con platina goniométrica, a un potencial de aceleración de 100 kV (11). En este instrumento los aumentos son independientes de la tensión puesto que la

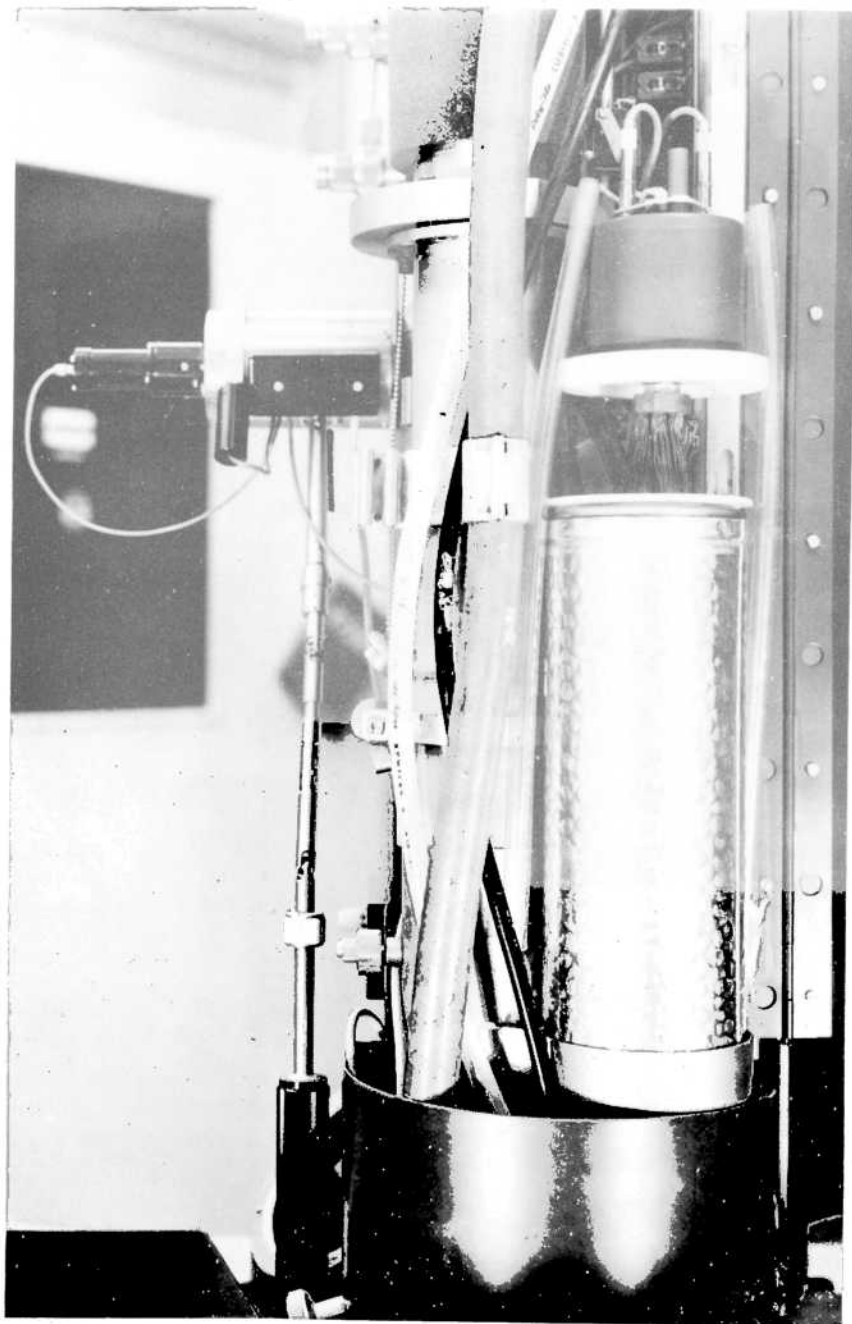


Fig. I.21 - Dispositivo de anticontaminación del microscopio Philips EM 300. Consta de dos piezas que rodean la muestra, enfriadas desde el exterior con nitrógeno líquido. Las moléculas de hidrocarburos volátiles existentes en la columna del microscopio, se conducen preferentemente sobre estas superficies frías, minimizando la contaminación sobre la muestra.
Atención: N.J. Marccone

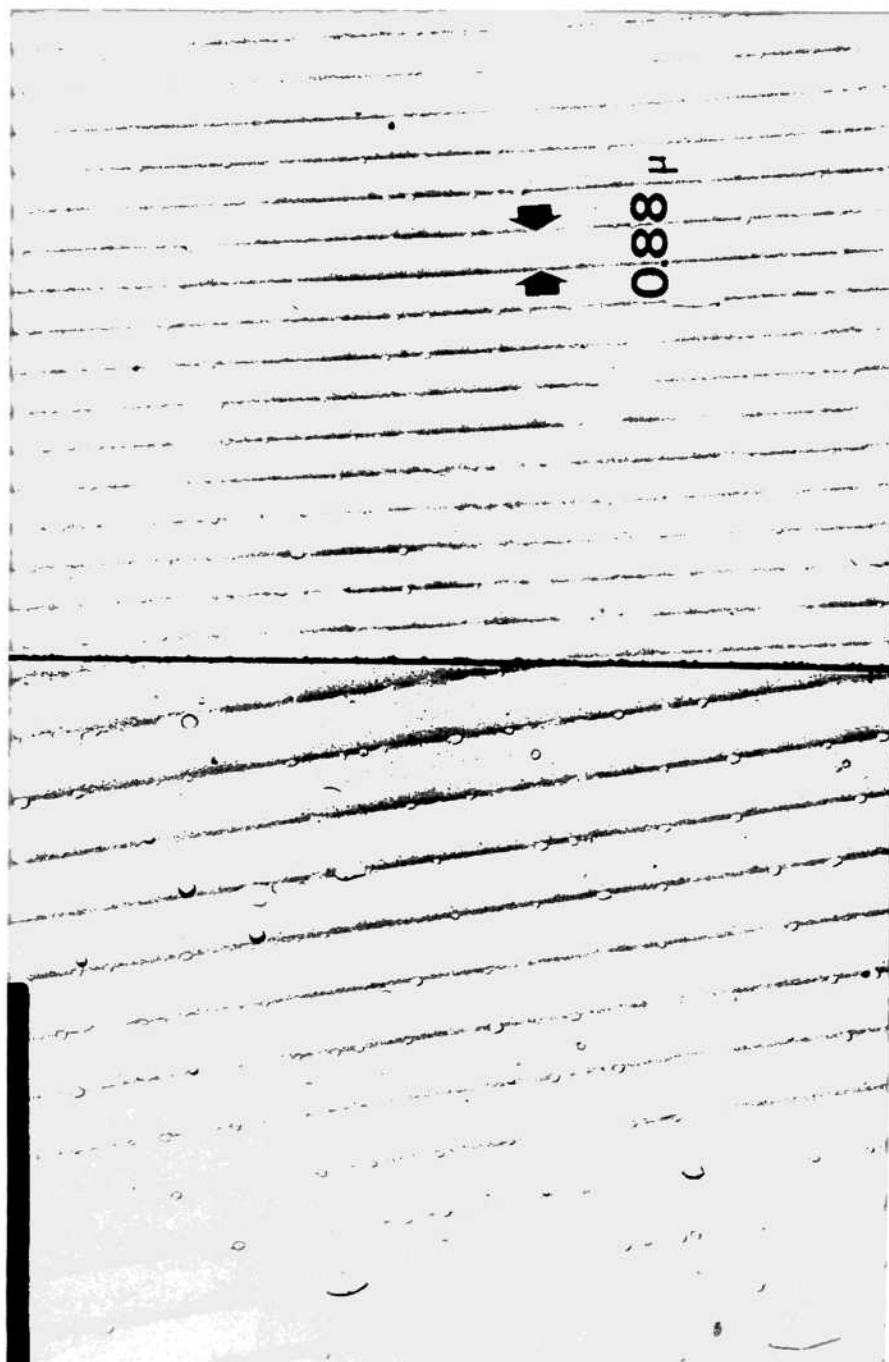


Fig. I.22 - Réplica de carbono de una red de difracción óptica de 28.800 líneas/pulgada, utilizada para la calibración de los aumentos del microscopio electrónico. Las micrografías corresponden a dos aumentos distintos del instrumento.

corriente de las lentes magnéticas se ajusta automáticamente para compensar la variación de la longitud de onda de los electrones del haz. En la calibración se utilizó una réplica de una red de difracción óptica de 28.800 líneas/pulgada (0.88×10^{-3} mm/línea), Fig. I.22. La precisión del método está determinada fundamentalmente por dos factores. Por un lado la réplica utilizada puede dilatarse debido a calentamientos locales producidos por el haz de electrones durante la observación. Por otra parte cada muestra en particular puede montarse en el soporte del microscopio en una posición ligeramente diferente de la que fue colocada anteriormente la réplica. Al focalizar la muestra puede ser necesario variar la corriente de la lente objetivo, variando de esta manera el aumento de la imagen. Debido a estos factores, además de posibles ciclos de histéresis en las piezas polares de las lentes, la calibración efectuada mediante réplicas se puede confiar dentro de un 10% (+ 5%) de error.

El método de observación directa de planos cristalinos es más preciso que el anterior, aunque la preparación de las muestras resulta un poco más compleja. Además el instrumento debe estar en condiciones óptimas de alineación para lograr este tipo de imágenes. Murray y Ferrier (12) desarrollaron una técnica para la preparación de muestras de la encima denominada "catalasa" que proporciona imágenes nítidas de una de sus familias de planos cristalinos de espaciado $d = 84.4 \text{ \AA}$. Este método permite además calibrar distintas zonas de la pantalla, en el caso bastante frecuente de distorsión de la imagen final por la lente proyectora.

Las calibraciones siempre corresponden a una pieza polar dada de la lente objetivo. Si por alguna razón ésta se debe reemplazar, es conveniente volver a efectuar la calibración completa de aumentos y rotaciones.

I.4.4.2 Calibración de las Rotaciones

En el estudio de láminas delgadas cristalinas es necesario relacionar la imagen electrónica con su respectivo diagrama de difracción para poder orientar adecuadamente la muestra e interpretar correctamente los contrastes observados. Se ha visto ya, Fig. I.14, que la primer imagen dada por la lente objetivo se forma sobre un cierto plano denominado I_1 , y que el diagrama de difracción está focalizado siempre sobre el plano focal

imagen de la misma lente. La imagen está invertida 180° respecto del objeto, pero el diagrama de difracción no sufre inversión alguna. El sistema de lentes subsiguiente produce un número igual de inversiones de ambas figuras, manteniéndose esta relación en todo el sistema óptico, y en particular sobre la pantalla final. Pero existe una rotación adicional que es necesario tener en cuenta. Se puede ver en la misma Fig. I.14 que para pasar de difracción a imagen aumenta la corriente en la lente intermedia (se hace más potente, ec. (I.15)), y, por lo tanto, según la expresión (I.16):

" La imagen de un objeto y su correspondiente diagrama de difracción están rotados en 180° más un ángulo adicional θ ."

En la pantalla de observación es necesario girar el diagrama de difracción en un ángulo $(180^\circ + \theta)$, en el sentido de las agujas del reloj, para obtener la correspondencia real entre difracción e imagen. Si se comparan los registros de dos placas fotográficas, éstas deben colocarse de la manera indicada en la Fig. I.23.

El ángulo θ puede determinarse experimentalmente, para cada aumento del instrumento, mediante un cristal de estructura conocida. Normalmente se utilizan pequeños cristales de trióxido de molibdeno, que se pueden obtener fácilmente en el laboratorio sublimando sobre un vidrio los vapores desprendidos de un filamento de molibdeno calentado al rojo. Sumergiendo el vidrio en agua destilada los cristales quedan en suspensión y pueden depositarse sobre una película de collodion o de carbono amorfo. El trióxido de molibdeno (ortorrómbico) cristaliza en forma de láminas muy delgadas según la dirección $\{010\}$. Su forma es rectangular, siendo los bordes más largos paralelos a la dirección $\{001\}$. Los bordes más cortos son por lo tanto coincidentes con la dirección $\{100\}$. Los espaciados cristalinos correspondientes son

$$d_{100} = 3.966 \text{ \AA} \quad d_{001} = 3.696 \text{ \AA}$$

De acuerdo a la ley de Bragg, sección II, el diagrama de difracción consta de un conjunto de puntos dispuestos sobre rectángulos, cuyo lado más largo corresponde a la dirección recíproca $\{001\}$, coincidente a su vez con la dirección real $\{001\}$, borde largo, Fig. I.24. La medición del ángulo θ resulta entonces muy fácil, como se indica en la Fig. I.25. Conviene siempre registrar imagen y difracción en un mismo negativo, para

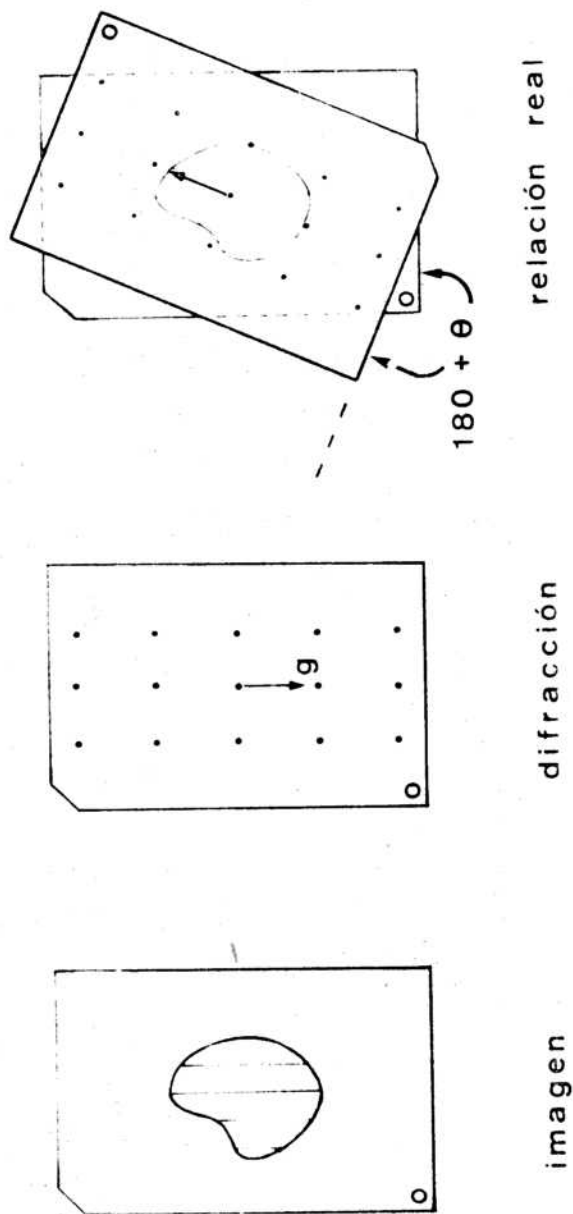


Fig. I.23 - La imagen electrónica de un objeto y su respectivo diagrama de difracción están rotados en 180° más un ángulo adicional θ . Por lo tanto, para obtener la correspondencia real entre difracción e imagen, es necesario girar el diagrama de difracción en $(180^\circ + \theta)$ en el sentido de las agujas del reloj.

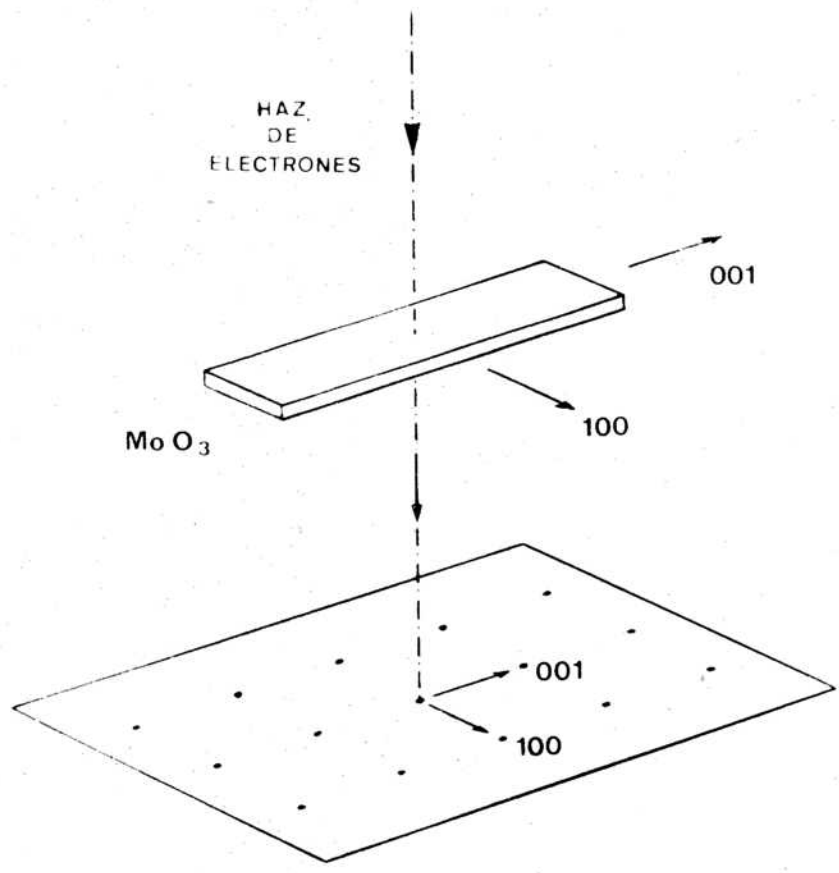


Fig. I.24 - Cristal de trióxido de molibdeno, utilizado en la calibración de las rotaciones. Los bordes más largos son coincidentes con la dirección cristalográfica $\{001\}$. El diagrama de difracción consta de un conjunto de puntos dispuestos sobre rectángulos, cuyo lado más largo corresponde a la dirección recíproca $\{001\}$, coincidente a su vez con la dirección real $\{001\}$.

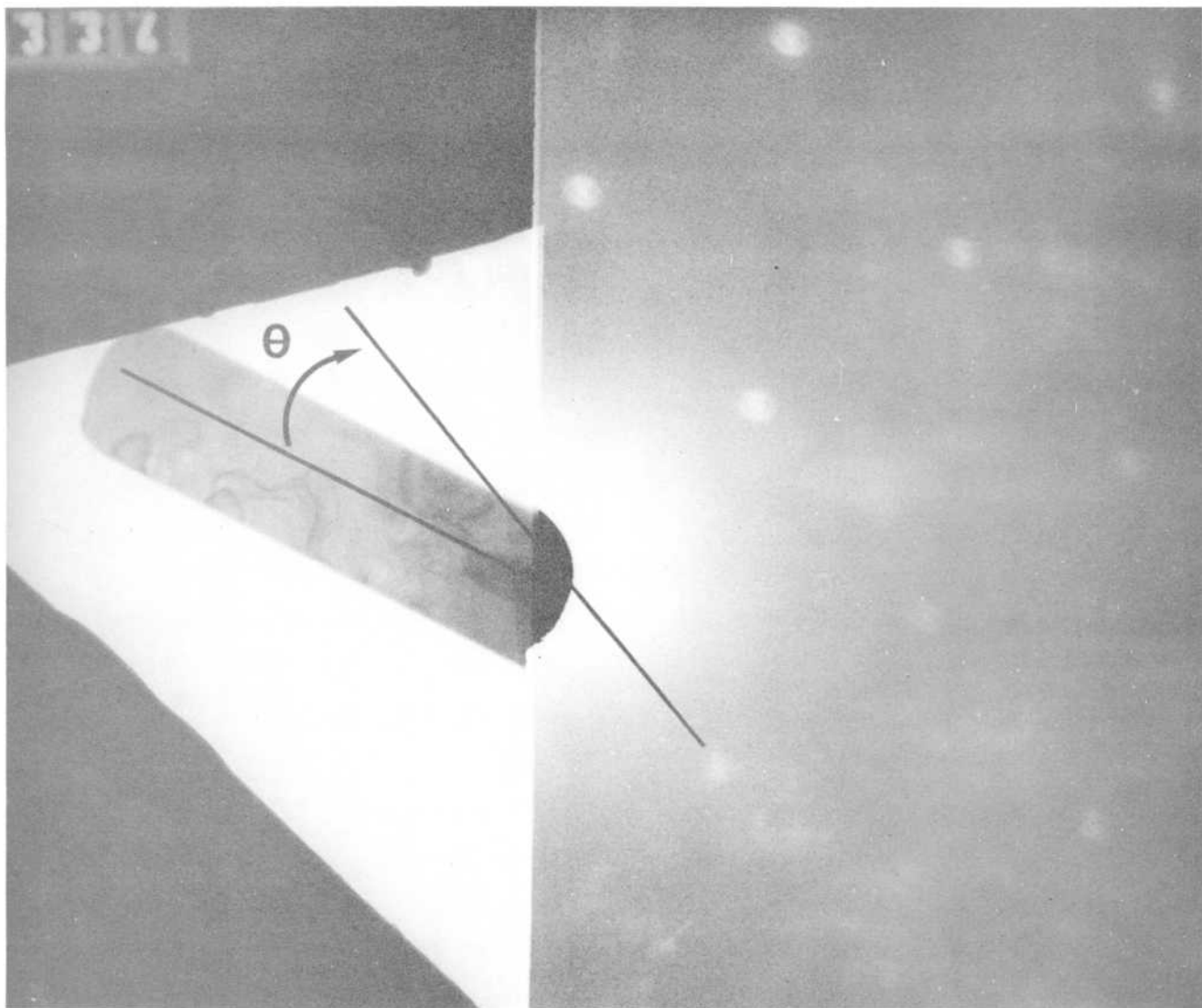


Fig. I.25 - Micrografía de un cristal de trióxido de molibdeno, y su correspondiente diagrama de difracción, registrados en una misma placa fotográfica. Se indica el ángulo θ de rotación relativa entre ambas imágenes.

evitar posibles errores de montaje de dos placas diferentes en sus respectivos soportes. La calibración de las rotaciones relativas en el microscopio Philips EM 300 se detalla en la publicación mencionada anteriormente (11).

REFERENCIAS

1. H. Modin y S. Modin, "Metallurgical Microscopy", Butterworths, London, 1968.
2. C.J. Davissón y L.H. Germer, Nature 119, 558 (1927).
3. M. Knoll y E. Ruska, Ann. d. Physik 12, 607 (1932).
4. R.D. Heidenreich, "Fundamentals of Transmission Electron Microscopy", Interscience, John Wiley, 1964.
5. T. Mulvey, "Forty years of electron microscopy", Fifth European Congress on Electron Microscopy, EMCON 72, Manchester, 1972.
6. B. von Borries y E. Ruska, Naturwiss. 28, 366 (1940).
7. "Electrodynamics of continuous media", L.D. Landau, E.M. Lifshitz, Pergamon Press, 1960.
8. "Classical Electricity and Magnetism", W.K.H. Panofsky y M. Philips, Addison Wesley, 1959.
9. A.N. Broers, "Electron gun using long-life lanthanum hexaboride cathode", Journal of Applied Physics, JAPIA, vol. 38, 1967, p. 1991.
10. "Operación del Microscopio Electrónico Philips EM 300", PMM/A-155, Décimo Curso Panamericano de Metalurgia, Departamento de Metalurgia, CNEA, Buenos Aires, 1974.
11. "Calibración de los aumentos y las rotaciones relativas en el microscopio electrónico Philips EM 300", PMM/A-63, Departamento de Metalurgia, CNEA, Buenos Aires, 1971.
12. R.T. Murray y R.P. Ferrier, J. Ultrastructure Res. 21, 361 (1968).

CAPITULO II

TEORIA CINEMATICA DE LA DIFRACCION DE ELECTRONES

II.1 Límites de la Aproximación Cinemática

Para analizar las imágenes electrónicas de láminas delgadas cristalinas es necesario conocer los mecanismos mediante los cuales se originan los haces difractados (fenómeno de difracción) así como los factores que determinan las intensidades de cada uno de ellos. Sin estos elementos teóricos no es posible interpretar correctamente una micrografía electrónica ni identificar los defectos cristalinos que puedan existir en la lámina observada. En este capítulo se deducirán, dentro de la aproximación llamada cinemática, las intensidades de las ondas difractadas por un átomo, por una red geométrica tridimensional, y finalmente por una estructura cristalina. La aproximación cinemática supone que una vez producido un haz difractado, éste no vuelve a interactuar con el cristal ni con la onda incidente a partir de la cual se originó. Esto es equivalente a considerar que en todo momento la amplitud de la onda difractada es solamente una pequeña fracción de la correspondiente a la onda incidente.

La validez de esta hipótesis depende de la interacción entre la radiación y el cristal considerados. En el caso de los rayos X las secciones eficaces de difusión (parámetros que describen el grado de interacción) son pequeñas, y la teoría cinemática es aplicable a cristales de varios micrones de espesor. En el caso de un haz de electrones las secciones eficaces son varios órdenes de magnitud mayores, y la distancia que puede atravesar un electrón sin interactuar con el cristal se reduce a unos pocos cientos de Angstroms. Como el espesor de una lámina delgada está comprendido entre unos 1000 y 2000 Å es claro que la teoría cinemática no puede predecir correctamente las intensidades electrónicas difractadas.

Pero la aproximación si es adecuada para describir algunas características generales del fenómeno de difracción, y en particular la distribución de los haces difractados (1). Veremos en este capítulo que el conocimiento de la geometría del diagrama de difracción de una muestra permite obtener una información muy valiosa sobre su estructura. En el capítulo III se verá que la teoría cinemática, a pesar de todas sus limitaciones, también constituye una buena aproximación para describir las imágenes de algunos

defectos cristalinos.

II.1.1 Función de Onda Asociada a un Haz de Electrones

La naturaleza ondulatoria de un haz de electrones acelerados, prevista teóricamente por De Broglie, fue puesta en evidencia por Davisson y Germer. Según el trabajo presentado a la revista Nature (2) estos autores comprobaron que al incidir un haz de electrones sobre un cristal de níquel, desde su superficie se propagaban haces de menor intensidad en distintas direcciones. En el mismo ejemplar de Nature, Thomson y Reid (3) informaron sobre el fenómeno de difracción de un haz a través de una lámina delgada. Entonces el movimiento de un electrón acelerado debe necesariamente describirse por medio de una cierta función de onda ψ caracterizada por una longitud de onda λ .

De acuerdo al formulismo de la mecánica ondulatoria, esta función de onda asociada al movimiento de toda partícula de masa m y energía E debe satisfacer la denominada ecuación de Schroedinger

$$\frac{h^2}{8\pi^2 m} \nabla^2 \psi(\vec{r}) + (E - V) \psi(\vec{r}) = 0 \quad (\text{II.1})$$

donde

$$h = \text{constante de Planck} = 6.625 \times 10^{-27} \text{ erg seg} \\ = 4.1 \times 10^{-15} \text{ volt seg}$$

\vec{r} = vector posición

V = potencial que caracteriza la interacción de la partícula con el medio.

La ecuación (II.1) se puede resolver fácilmente para el caso de un haz de electrones de energía E constante, propagándose en el vacío. El potencial V es nulo en todo el espacio, y entonces (II.1) se reduce a

$$\nabla^2 \psi(\vec{r}) + \frac{8\pi^2 m}{h^2} E \psi(\vec{r}) = 0 \quad (\text{II.2})$$

Llamando

$$k^2 = \frac{8\pi^2 m}{h^2} E$$

la solución de (II.2) resulta una combinación lineal de ondas planas del tipo

$$\psi_{\vec{k}}(\vec{r}) = C_{\vec{k}} e^{2\pi i \vec{k} \cdot \vec{r}} = C_{\vec{k}} (\cos 2\pi \vec{k} \cdot \vec{r} + i \operatorname{sen} 2\pi \vec{k} \cdot \vec{r}) \quad (\text{II.3})$$

donde los coeficientes $C_{\vec{k}}$ se ajustan de manera de satisfacer condiciones de contorno y de normalización, y \vec{k} es el vector de onda, paralelo a la dirección de propagación, tal que

$$|\vec{k}| = \frac{1}{\lambda} \quad (\text{II.4})$$

donde λ es la longitud de onda de De Broglie, dada por

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{mv} \quad (\text{II.5})$$

En esta última expresión, m es la masa del electrón y v su velocidad. Como la masa del electrón es función de su velocidad

$$m = \frac{m_0}{\sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}}} \quad (\text{II.6})$$

$$\begin{aligned} m_0 &= \text{masa en reposo del electrón} = 9.1083 \times 10^{-28} \text{ gr} \\ c &= \text{velocidad de la luz} = 2.998 \times 10^{10} \text{ cm/seg} \end{aligned}$$

se obtiene finalmente

$$= \frac{h}{m_0 v} \sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}}$$

Si los electrones del haz son acelerados por una diferencia de potencial V_0 , su energía cinética dada por la expresión relativista

$$m\vec{v}^2 - m_0 c^2 = e V_0 \quad (\text{II.7})$$

donde

$$e = \text{carga del electrón} = 1.59 \times 10^{-19} \text{ coulomb}$$

Escribiendo

$$m + m_0 = \frac{m^2 - m_0^2}{m - m_0}$$

Según (II.7)

$$m + m_0 = \frac{c^2}{eV_0} \left[m^2 - m^2 \left(1 - \frac{v^2}{c^2} \right) \right] = \frac{m^2 v^2}{eV_0}$$

$$(m + m_0) e V_0 = m^2 v^2$$

Sustituyendo en (II.5)

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{(m + m_0) e V_0}}$$

y como, según (II.7)

$$m = \frac{e V_0}{c^2} + m_0$$

resulta finalmente

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{2 m_0 e V_0 \left(1 + \frac{e V_0}{2 m_0 c^2} \right)}} \quad (\text{II.8})$$

Reemplazando los valores numéricos de las constantes, se obtiene finalmente la expresión de la longitud de onda de los electrones de un haz en función de la tensión de aceleración.

$$\lambda (\text{Å}) = \frac{12.26}{V_0^{1/2} (1 + 0.9788 \times 10^{-6} V_0)^{1/2}} \quad (\text{II.9})$$

donde V_0 se expresa en volts. La corrección relativista

$$1 + 0.9788 \times 10^{-6} V_0$$

reci3n es apreciable para tensiones de aceleraci3n superiores a 10^5 volts. En la Tabla II.1 se dan los valores de la longitud de onda m/m_0 , y v/c para distintas tensiones.

TABLA II.1

V_0 (volts)	(\AA)	m/m_0	v/c
1	12.26	1.0000020	0.0020
100	1.226	1.0001057	0.0198
1000	0.3876	1.00196	0.0625
10000	0.1220	1.01957	0.1950
10^5	0.037	1.1957	0.5482
10^6	0.0087	2.9569	0.9411

Es interesante notar que para una tensi3n de 10^5 volts, valor com3n en un microscopio electr3nico de transmisi3n, el haz de electrones es acelerado hasta una velocidad del orden de la mitad de la velocidad de la luz.

II.2 Difusi3n de Electrones por un Atomo. Factor de Difusi3n

La difusi3n de un haz de electrones por un 3tomo se plantea, en t3rminos de mec3nica ondulatoria, como la difusi3n de una onda plana del tipo (II.3) por un potencial de simetr3a central $V(r)$. Este potencial representa el grado de interacci3n entre la onda incidente (electrones) y el centro difusor (3tomos). Es inmediato que cuanto mayor es $V(r)$, tanto mayor es la capacidad del 3tomo considerado para difundir un haz de electrones. La soluci3n de la ecuaci3n de Schroedinger es en este caso de la forma

$$\Psi(\vec{r}) = \Psi_1(\vec{r}) + \Psi_2(r) = e^{2\pi i \vec{k} \cdot \vec{r}} + \frac{f(2\theta)}{r} e^{2\pi i k' r} \quad (\text{II.10})$$

donde el primer t3rmino describe una onda plana, correspondiente al haz incidente, mientras que el segundo es una onda esf3rica que corres-

ponde al haz de partículas difundidas radialmente por el centro difusor. El módulo k' del vector de onda \vec{k}' , correspondiente a la onda difundida, no varía, es decir

$$k' = |\vec{k}'| = k = \frac{1}{\lambda} \quad (\text{II.11})$$

El ángulo que forma \vec{k} con \vec{k}' se denomina ángulo de difusión 2θ . La magnitud $f(2\theta)$ se llama factor atómico de difusión y está directamente ligado al potencial de interacción $V(r)$.

El factor atómico de difusión depende de la naturaleza del átomo considerado, y de la longitud de onda λ de la radiación incidente. Si se considera a un átomo de número atómico Z , como una carga central Ze positiva, rodeada por una distribución de carga negativa $\rho(r)$, tal que

$$\int_{\text{átomo}} \rho(r) dr = -Ze$$

se puede demostrar, referencia (1), capítulo 4, que la expresión del factor atómico de difusión para un haz de electrones, es

$$f(2\theta) = \frac{m_0 e^2}{2h^2} \left(\frac{\lambda}{\text{sen}\theta} \right)^2 (Z - f_x) \quad (\text{II.12})$$

donde

$$f_x = \int \rho(r) e^{2\pi i \vec{s} \cdot \vec{r}} dr$$

es el factor atómico de difusión para los rayos X, ver por ejemplo el libro de Guinier (4), sección 1.3.3.3. El vector \vec{s} , dado por

$$\vec{s} = \vec{k}' - \vec{k}$$

se denomina vector de difusión, o vector recíproco, Fig. II.1. Su módulo, ver Fig. II.1, es

$$|\vec{s}| = s = \frac{2 \text{sen}\theta}{\lambda}$$

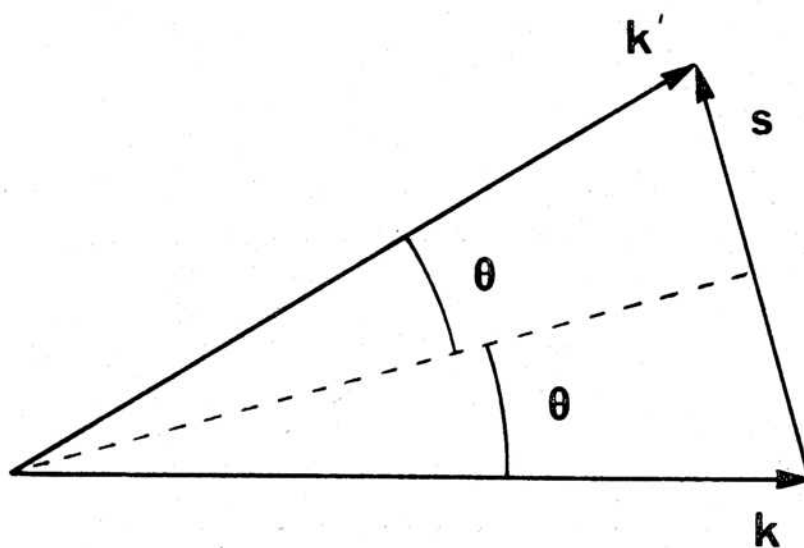


Fig. II.1. Definición del vector de difusión s . Este es igual al vector diferencia entre el vector de onda \vec{k}' de la onda difundida, y el vector \vec{k} correspondiente a la onda incidente. El ángulo 2θ se denomina ángulo de difusión.

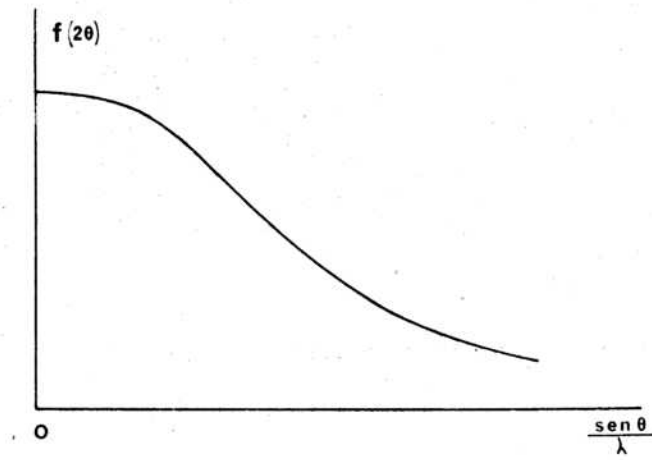


Fig. II.2. Variación del factor atómico de difusión $f(2\theta)$ con el ángulo θ .

El primer término de (II.12) corresponde a la difusión de electrones por el núcleo atómico, y el segundo da cuenta de la difusión por la nube electrónica. Debido al factor $(\sin\theta)^{-2}$ el factor atómico de difusión $f(2\theta)$ decrece rápidamente con el ángulo θ , tal como se indica esquemáticamente en la Fig. II.2.

Es fácil ver cual es la distribución de la intensidad difundida por un conjunto de átomos libres, cuando incide sobre ellos un haz de electrones monoenergéticos. Como no existe ninguna relación de orden entre los átomos del conjunto, caso de un gas, tampoco habrá una relación definida entre las fases de las ondas difundidas por cada uno de los átomos individuales. La intensidad difundida tiene simetría de revolución alrededor del haz incidente, y su variación con el ángulo de difusión 2θ es la misma que la del cuadrado del factor $f(2\theta)$. Una muestra de estas características, observada en un microscopio electrónico operado en difracción, da origen así a una mancha difusa alrededor del haz incidente, cuya intensidad decrece rápidamente con el ángulo 2θ .

La situación es distinta cuando el haz incide sobre una muestra constituida por átomos ordenados, como es el caso de un cristal.

II.3 Difracción de Electrones por un Cristal

Toda estructura cristalina se describe por medio de la repetición sistemática de un conjunto de átomos, que eventualmente puede reducirse a un átomo único, alrededor de los nodos de una red geométrica tridimensional. Por lo tanto, como paso previo al caso real de un cristal, estudiaremos primero los fenómenos de difracción de una onda por una red puntual. Como se verá luego, ciertos resultados fundamentales de este análisis son independientes del motivo atómico de repetición, y válidos para todo tipo de red.

II.3.1 Cristalografía. Conceptos Fundamentales

Un cuerpo cristalino está caracterizado por el ordenamiento riguroso de sus átomos en toda su extensión. Dado que este ordenamiento es periódico en las tres dimensiones del espacio, las estructuras cristalinas se describen en base a una abstracción geométrica: las redes tridimensionales de puntos. Luego, como se verá más adelante, un cristal real se construye asociado a cada punto de una red una cierta configuración de átomos o moléculas. El presente resumen se ha basado en una publicación del laboratorio (5).

Una red geométrica de un conjunto de puntos distribuidos regularmente en el espacio de manera que cada uno de ellos está rodeado por una distribución idéntica de puntos vecinos. Una red tridimensional se genera a partir de tres vectores no coplanares \vec{a}_1 , \vec{a}_2 y \vec{a}_3 , denominados vectores base. Cualquier punto de la red queda definido por el extremo de un vector que es combinación lineal de los vectores base

$$\vec{r}_{uvw} = u \vec{a}_1 + v \vec{a}_2 + w \vec{a}_3 \quad (\text{II.13})$$

donde u , v , w son enteros cualquiera, positivos, negativos o nulos. El punto correspondiente se denomina comunmente nodo (uvw). Según las direcciones de \vec{a}_1 , \vec{a}_2 y \vec{a}_3 , los nodos de la red se distribuyen en intervalos regulares de longitudes a_1 , a_2 y a_3 , respectivamente. Una disposición periódica similar, aunque con distintos espaciados, se observa también según cualquier otra dirección dada por un vector \vec{r}_{uvw} . Una dirección, o fila reticular, queda definida entonces por un vector del tipo (II.13), y se denomina en forma abreviada $\{uvw\}$, con u , v , w , enteros cualesquiera primos entre sí. Todas las filas reticulares paralelas a una dada tienen sus mismas características geométricas, y todo este conjunto se denomina familia de filas reticulares $\{uvw\}$.

Tres familias de filas reticulares, no coplanares entre sí, dividen al espacio en celdas tridimensionales. Toda red puede también considerarse generada por sus sucesivas traslaciones. Celdas como las marcadas con P en la Fig. II.3, que contienen solamente valores en sus vértices se denominan primitivas. Una celda como la M en la misma figura, contiene dos

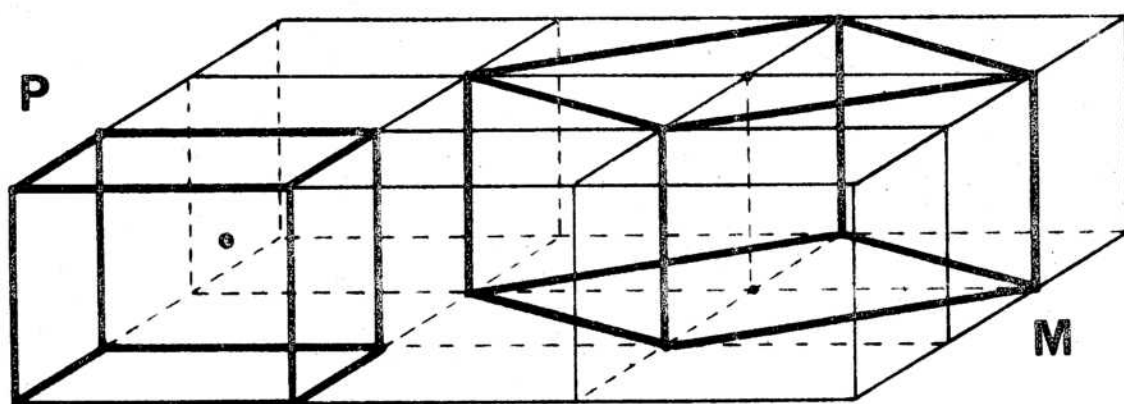


Fig. II.3. Celdas en una red tridimensional:

P : Celda primitiva; contiene solamente nodos en sus vértices, y por lo tanto, un sólo nodo propio.

M : Celda múltiple; contiene dos nodos propios: 8 en los vértices, compartidos a su vez con 2 celdas.

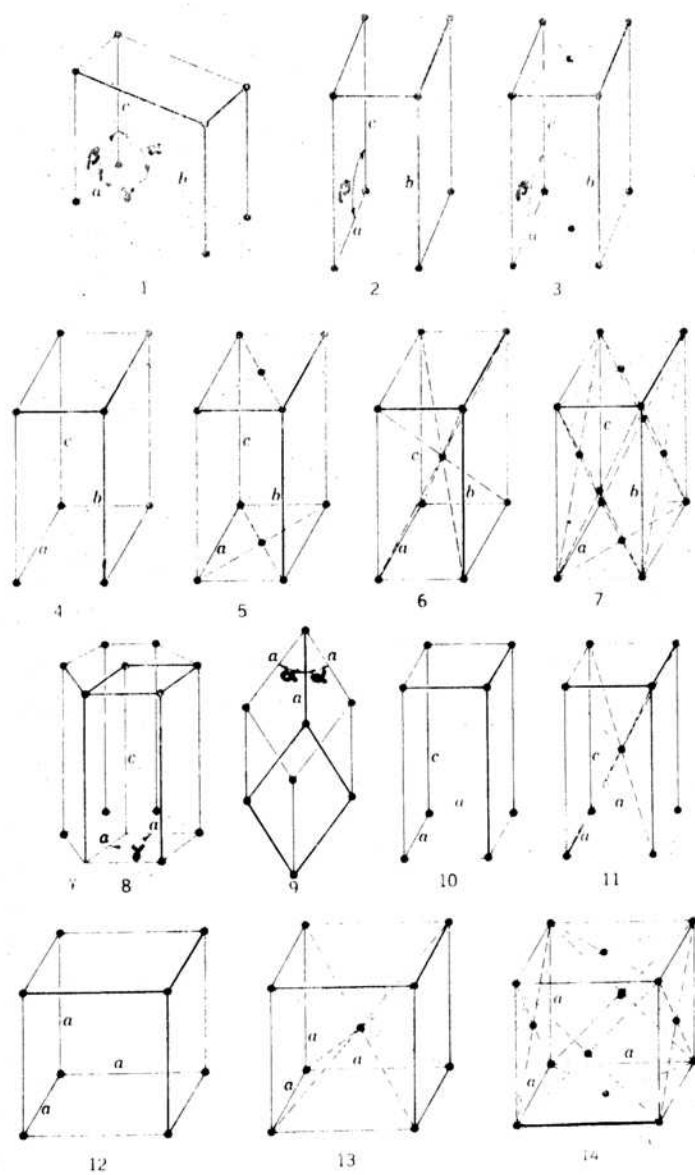


Fig. II.4. Esquema de las 14 redes de Bravais. 1: triclínico - 2,3: monoclínico - 4,5,6,7: ortorrómbico - 8: hexagonal - 9: trigonal - 10,11: tetragonal - 12,13,14: cúbico.

nodos propios (8 en los vértices, compartidos con 8 celdas vecinas, y 2 en las caras superior e inferior, compartidos a su vez con 2 celdas) y se denomina por lo tanto celda múltiple.

Es fácil demostrar que:

- el número de celdas primitivas es igual al número de nodos de la red
- todas las celdas primitivas tienen igual volumen V_C
- el volumen de una celda múltiple que contiene n nodos es igual a nV_C

La geometría de las celdas que pueden describir una red tridimensional es limitada, pues en efecto solo existen 14 formas posibles de celdas, que por sucesivas traslaciones pueden generar una red. Estas son las celdas de Bravais, que se caracterizan, además de su geometría específica, por la disposición de los nodos que contienen. Según que existan nodos en los vértices, en los centros de las caras o en el centro de los respectivos volúmenes, las celdas se denominan:

- P : primitiva; nodos en los vértices solamente.
- I : intracentrada; nodos en los vértices, más un nodo adicional en el campo de la celda.
- F : Centrada en las caras; nodos en los vértices, más nodos adicionales en los centros de cada una de las caras.
- A,B,C: centrada solamente en dos caras opuestas, perpendiculares al eje a_1 , al eje a_2 , o al eje a_3 , respectivamente.

Por propiedades comunes de simetría, las 14 redes de Bravais se agrupan a su vez en 7 sistemas cristalinos. Sus características geométricas se resumen en la Tabla II.2 y las celdas que las describen se muestran esquemáticamente en la Fig. II.4

TABLA II.2

Sistema reticular	Nº de redes posibles	Tipos de celdas posibles	Relación entre las longitudes de \vec{a}_1, \vec{a}_2 y \vec{a}_3 y sus ángulos respectivos α, β y γ
Triclinico	1	P	$a_1 \neq a_2 \neq a_3$ $\alpha \neq \beta \neq \gamma$
Monoclinico	2	P, B	$a_1 \neq a_2 \neq a_3$ $\alpha = \beta = 90 \neq \gamma$
Ortorrómico	4	P, C, I, F	$a_1 \neq a_2 \neq a_3$ $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$
Tetragonal	2	P, I	$a_1 = a_2 \neq a_3$ $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$
Trigonal	1	P	$a_1 = a_2 = a_3$ $\alpha = \beta = \gamma < 120^\circ \neq 90^\circ$
Hexagonal	1	P	$a_1 = a_2 \neq a_3$ $\alpha = \beta = 90^\circ, \gamma = 120^\circ$
Cúbico	3	P, I, F	$a_1 = a_2 = a_3$ $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$

La elección de la celda en una red dada se basa generalmente en razones de orden práctico. En ciertos casos puede resultar cómodo utilizar una celda primitiva, dada su simplicidad, pero también es común elegir alguna celda múltiple que por tener algunas aristas iguales o ángulos rectos entre las mismas resalta, más claramente algunas de las simetrías de la red que se quiere describir. Un ejemplo ilustrativo es el de la red cúbica F, Fig. II.5. La celda primitiva es trigonal de tipo P, caracterizada por

$$a_1 = a_2 = a_3$$

$$\alpha = \beta = \gamma = 60^\circ$$

Pero la red se describe normalmente por medio de una celda cúbica de tipo F, que contiene 4 nodos, puesto que es más fácil visualizar un cubo en el espacio que un romboedro.

Planos Reticulares: En una red, se denomina plano reticular a todo plano determinado por tres nodos, por dos polos reticulares paralelos, o dos filas reticulares que se cortan en un punto. En una red tridimensional infinita existen infinitos planos reticulares y dado un plano cualquiera, existe una familia de infinitos planos regularmente espaciados, paralelos al mismo. La distancia entre dos planos vecinos de una familia se denomina espaciado. Una familia de planos dada contiene todos los nodos de la red y en particular el nodo origen.

Un conjunto de planos de distintas familias que se cortan según

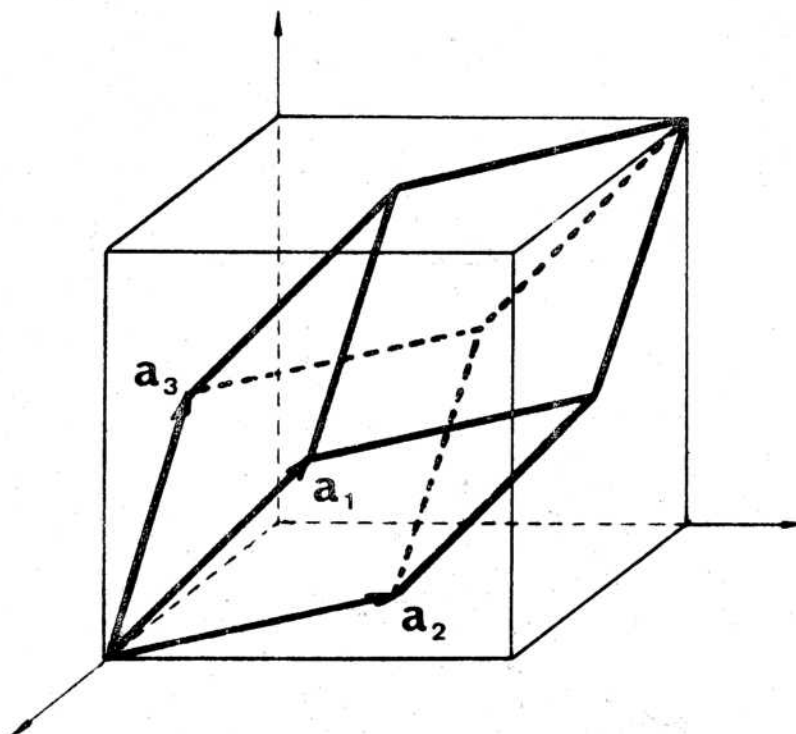


Fig. II.5. Elección de la celda en una red cúbica de caras centradas. Esta se puede describir por medio de una celda cúbica múltiple que contiene 4 nodos, o también por una celda trigonal primitiva.

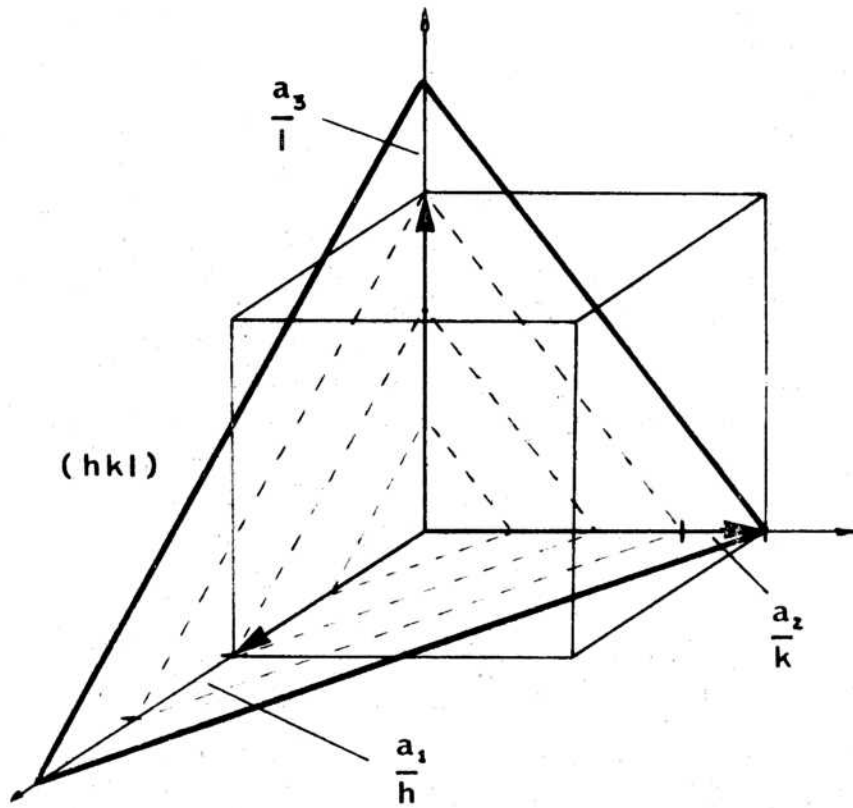


Fig. II.6. Índices de Miller (hkl) correspondientes a una familia de planos reticulares.

una misma fila reticular, define una zona. Si $[u,v,w]$ son los índices de la fila, esta constituye el eje de zona $\{uvw\}$, o más brevemente, zona $\{uvw\}$.

La orientación de una familia de planos queda determinada si se especifican los ángulos α , β y γ que forma la normal a los mismos con los tres vectores base \vec{a}_1 , \vec{a}_2 y \vec{a}_3 . También se puede visualizar la orientación de un plano dado si se conocen las intersecciones del mismo con los tres ejes de referencia. Pero resultan mucho más prácticos, y son los que utilizan normalmente, los llamados índices de Miller.

Consideremos una red definida por tres vectores base \vec{a}_1 , \vec{a}_2 y \vec{a}_3 , y una familia de planos reticulares, Fig. II.6. Un plano de la familia pasa por el origen 0, y otro por el nodo situado en el extremo del vector \vec{a}_1 . El conjunto de los planos intermedios corta al eje \vec{a}_1 en segmentos iguales, de una cierta longitud a_1/h . De la misma manera el vector \vec{a}_2 es cortado en segmentos de longitud a_2/k , y el eje \vec{a}_3 en segmentos iguales a un cierto valor a_3/l . El conjunto de números enteros (hkl) define los índices de Miller de la familia de planos considerada. Esta definición es equivalente a la que se utiliza más frecuentemente en cristalografía. Si un plano de una familia cualquiera corta a los ejes \vec{a}_1 , \vec{a}_2 y \vec{a}_3 en segmentos distantes a , b y c , respectivamente, el origen 0 (en unidades de a_1 , a_2 y a_3), los índices de Miller de la familia de planos están dados por

$$\frac{M}{a}, \frac{M}{b}, \frac{M}{c}$$

donde M es el máximo común múltiplo de a , b , y c . Inversamente, para ubicar un plano de una familia de índices (hkl) , se trazan sobre los tres vectores base segmentos de longitudes a_1/h , a_2/k , a_3/l . Por estos tres puntos pasa el plano de la familia (hkl) inmediato al que contiene el origen.

Red recíproca: La visualización de los planos de una red tridimensional no suele ser inmediata, y por ello Bravais sugirió representar las familias de planos reticulares por medio de una nueva red obtenida de la original mediante una transformación adecuada. En esta nueva red, denomi-

nada recíproca, cada nodo representa una familia de planos (hkl) de la red original, o directa. El formulismo de red recíproca, introducido inicialmente como un artificio geométrico, es de fundamental importancia en la teoría de la difracción. Más aún, como se verá más adelante, la red recíproca puede visualizarse directamente en una experiencia de difracción de electrones a través de una lámina delgada cristalina.

La representación de familias de planos por medio de los nodos de la red recíproca se ve fácilmente en el caso simple de la red bidimensional de la Fig. II.7 (a). El punto O en el origen de los vectores \vec{r}_{UV} , ec. (II.13) que describen la red directa. Con el mismo origen, se representan las distintas familias de planos (hk) asignando a cada una de ellas un vector perpendicular \vec{g}_{hk} cuya magnitud es la inversa del espaciado reticular, es decir $|\vec{g}_{hk}| = 1/d_{hk}$. Cualquiera sea la escala elegida para los vectores \vec{g}_{hk} , sus extremos describen también una red denominada recíproca. En la Fig. II.7 (a) y (b) se representan algunas familias de planos de la red y los vectores recíprocos correspondientes.

La definición rigurosa de red recíproca es la siguiente. Si la red directa está descrita en base a una celda definida por tres vectores base \vec{a}_1 , \vec{a}_2 y \vec{a}_3 , la terna de vectores

$$\vec{a}_1^* = \frac{\vec{a}_2 \times \vec{a}_3}{V_c} \quad \vec{a}_2^* = \frac{\vec{a}_3 \times \vec{a}_1}{V_c} \quad \vec{a}_3^* = \frac{\vec{a}_1 \times \vec{a}_2}{V_c} \quad (\text{II.14})$$

donde

$$V_c = \text{volumen de la celda} = (\vec{a}_1 \times \vec{a}_2) \cdot \vec{a}_3$$

describe la red recíproca de la red dada. A partir de la definición (II.14) pueden demostrarse las siguientes propiedades:

- Si V_c^* es el volumen de la celda recíproca, entonces

$$V_c V_c^* = 1$$

- Entre los vectores base de la red directa y de la red recíproca se verifican las relaciones

$$\begin{aligned} \vec{a}_1^* \cdot \vec{a}_1 &= \vec{a}_2^* \cdot \vec{a}_2 = \vec{a}_3^* \cdot \vec{a}_3 = 1 \\ \vec{a}_1^* \cdot \vec{a}_2 &= \vec{a}_1 \cdot \vec{a}_2 = \vec{a}_2^* \cdot \vec{a}_3 = \dots = 0 \end{aligned} \quad (\text{II.15})$$

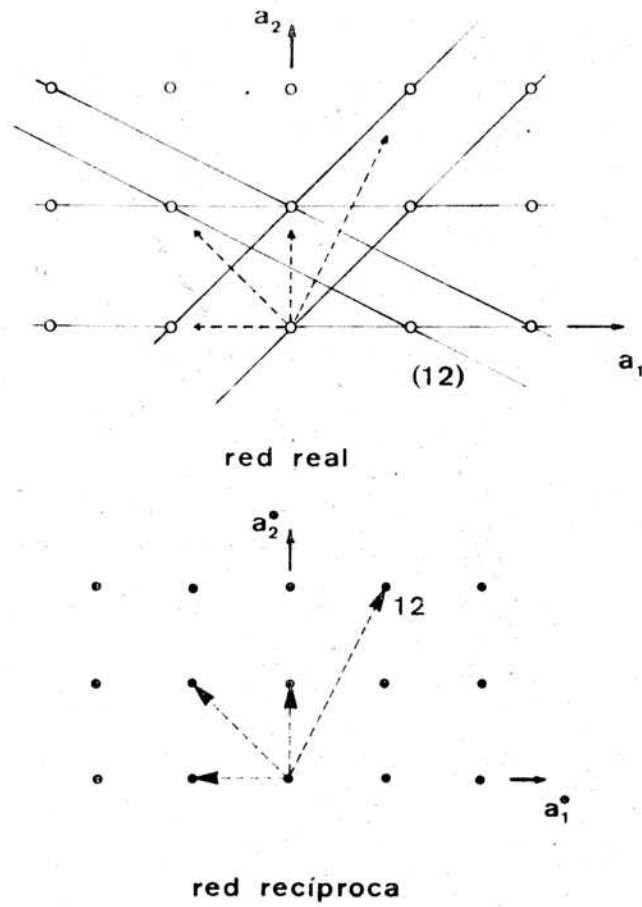


Fig. II.7. Esquema de construcción de la red recíproca de una red geométrica bidimensional. A cada familia de planos reticulares (hk) de la red directa de espaciado d_{hk} se le asigna un vector perpendicular g_{hk} tal que $g_{hk}l = 1/d_{hk}$. Los extremos de los vectores g_{hk} describen también una red, denominada recíproca.

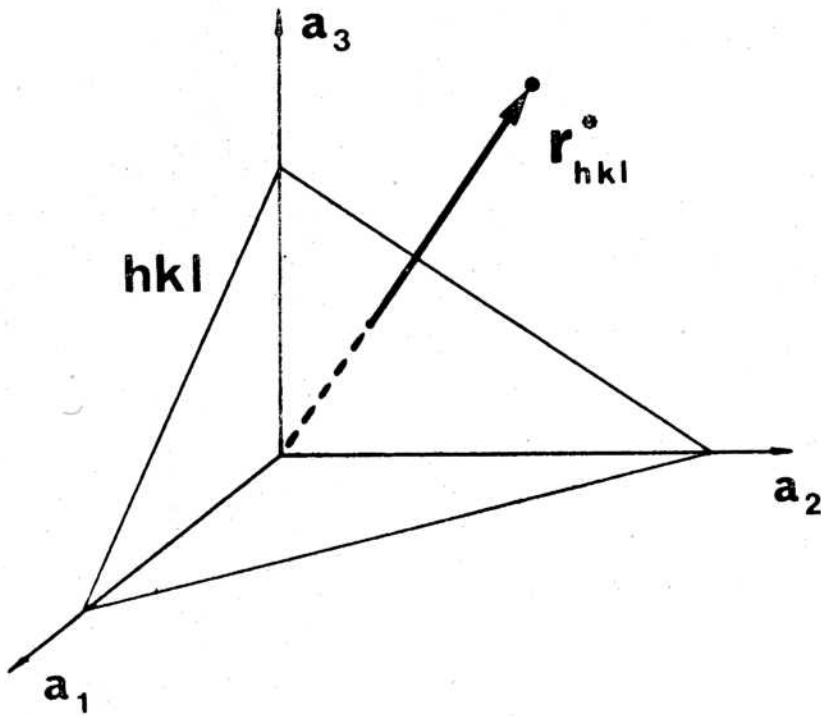


Fig. II.8. Propiedad fundamental de la red recíproca. Todo vector r^*_{hkl} es perpendicular a la familia de planos reticulares (hkl) de la red directa, y su módulo es igual a $1/d_{hkl}$.

nición de red recíproca y se utilizan continuamente en la interpretación de diagramas de difracción de electrones.

La red recíproca de una red red recíproca es la red original o directa. Por lo tanto cada nodo (uvw) de la red directa representa una familia de planos de la red recíproca.

Estructuras cristalinas: Las redes geométricas de puntos, cuyas propiedades fundamentales se han resumido en esta sección, e introducidas como una abstracción geométrica, son las que permiten describir una estructura periódica tridimensional, como es el caso de un cristal.

Toda estructura cristalina real se genera así asociando a cada nodo de una red (que tiene que ser una de las 14 redes de Bravais), un motivo o configuración de átomos o moléculas.

Una estructura cristalina queda entonces determinada por dos elementos diferentes: la red de Bravais definida por traslaciones del tipo r_{uvw} a partir de un cierto origen, ec. II.13, y una configuración atómica distribuída alrededor de cada uno de los nodos de esa red. Conocida la red, cada nodo se identifica por sus coordenadas (uvw). Para determinar completamente la posición de todos los átomos del cristal solamente falta especificar la posición de los átomos que componen el motivo de repetición. Normalmente las coordenadas atómicas se expresan en fracciones (xyz) de las longitudes de las aristas a_1 , a_2 y a_3 de la celda.

El motivo más simple es el compuesto por un único tipo de átomo. En este caso, a cada nodo se le asocia un solo átomo, y por lo tanto la red y el cristal, aunque conceptualmente diferentes, son coincidentes. La geometría de los planos de la red corresponde directamente a la geometría de los planos cristalinos. Este es el caso de numerosos metales: el Cu, Al, Ag, cristalizan según una red cúbica F, Tabla II.2, mientras que el Fe, Mo, W, son cúbicos de tipo I. En cambio, el Mg, Zn, Be, Co cristalizan según la denominada estructura hexagonal compacta, que se describe por medio de una red hexagonal P, Tabla II.2. A cada nodo de esta red se le asocia un motivo compuesto por dos átomos.

Todo vector de la red recíproca, del tipo

$$\vec{r}_{hkl}^* = h \vec{a}_1^* + k \vec{a}_2^* + l \vec{a}_3^* \quad (\text{II.16})$$

con (hkl) entero, es normal a la familia de planos de la red directa cuyos índices de Miller son (hkl) , Fig. II.8.

Propiedad fundamental de la red recíproca. El módulo de \vec{r}_{hkl}^* es igual a la inversa del espaciado d_{hkl} .

$$|\vec{r}_{hkl}^*| = \frac{1}{d_{hkl}} \quad (\text{II.17})$$

De esta manera, cada nodo (hkl) de la red recíproca representa una familia de la red directa determinando tanto su orientación como su espaciado.

Si los vectores base de la red directa \vec{a}_1 , \vec{a}_2 y \vec{a}_3 son ortogonales entre sí, entonces resultan

$$\vec{a}_1^* \parallel \vec{a}_1 \quad \vec{a}_2^* \parallel \vec{a}_2 \quad \vec{a}_3^* \parallel \vec{a}_3 \quad (\text{II.18})$$

y además

$$|\vec{a}_1^*| = \frac{1}{a_1} \quad |\vec{a}_2^*| = \frac{1}{a_2} \quad |\vec{a}_3^*| = \frac{1}{a_3}$$

Si el nodo recíproco (hkl) representa una familia de planos reticulares de espaciado d_{hkl} , el nodo siguiente $(2h, 2k, 2l)$ corresponde a una familia de planos de espaciado mitad.

$$|\vec{r}_{2h,2k,2l}^*| = \frac{2}{d_{hkl}} \quad (\text{II.19})$$

La familia de índices $(2h, 2k, 2l)$ tiene características singulares, puesto que solamente uno de cada dos planos de la misma tiene existencia real, Fig. II.9. De la misma manera, un nodo recíproco (nh, nk, nl) representa una familia de planos de índices (hkl) pero cuyo espaciado es d_{hkl}/n . Estas propiedades son consecuencia de la defi-

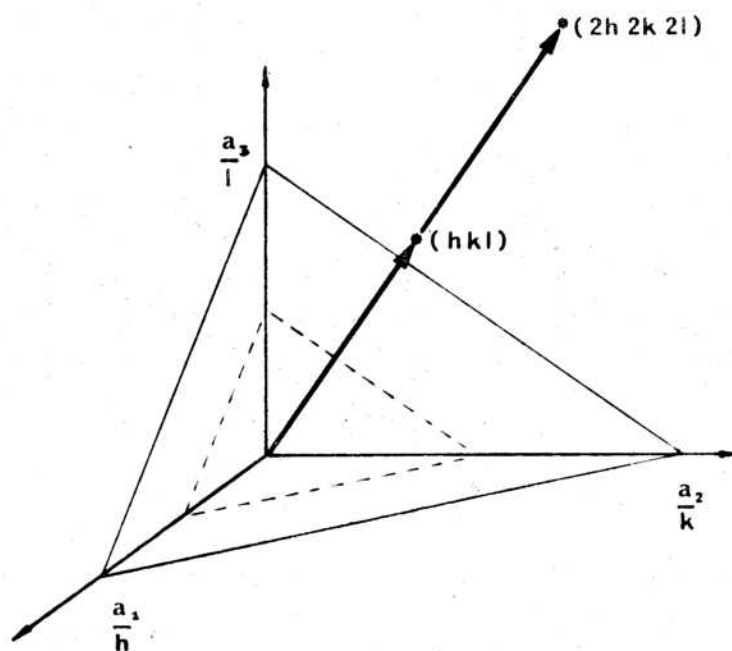


Fig. II.9. Un nodo $(2h, 2k, 2l)$ de la red recíproca representa una familia de planos reticulares de espaciado $d_{hkl}/2$.

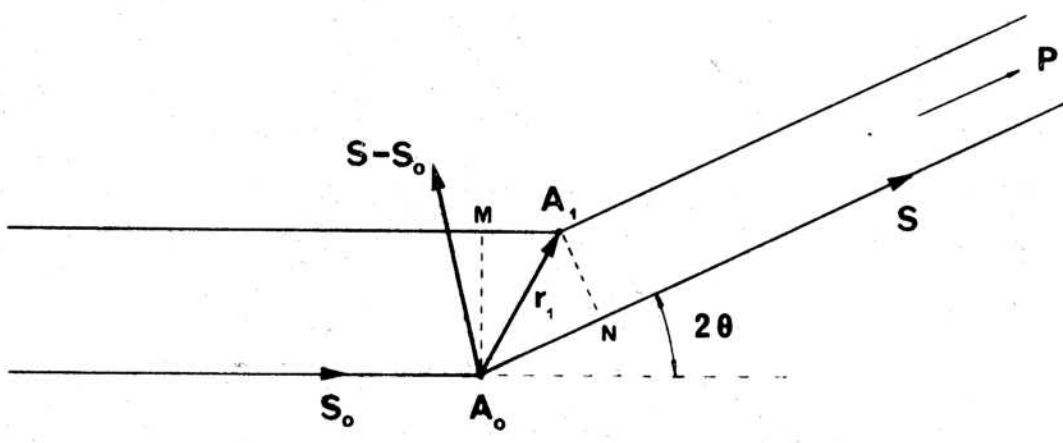


Fig. II.10. Difusión de una onda por dos nodos de una red geométrica (átomos) separados por una distancia r_1 .

II.3.2 Difracción por una Red Geométrica Tridimensional

De acuerdo al breve resumen de la sección II.3.1, todo cristal se describe por medio de la repetición sistemática de un conjunto de átomos, que eventualmente puede ser un átomo único, alrededor de los nodos de una red geométrica tridimensional. Por lo tanto, y como paso previo al análisis de un cristal real, estudiaremos primero los fenómenos de difracción de una onda por una red, considerando simplemente que cada nodos se convierte en un centro emisor de ondas esféricas, ec. (II.10), cuando sobre el mismo incide un frente de ondas planas (principio de Huygens). El tratamiento matemático así como su resultado fundamental, la ley de Bragg, son válidos para todo tipo de red, y más aún, como se verá más adelante, son independientes del motivo atómico de repetición. El formulismo de esta sección fue extraído de un trabajo a publicarse próximamente (6).

Consideremos primero el caso simple de dos centros difusores A_0 y A_1 , que pueden ser dos átomos de la misma naturaleza, separados por un vector \vec{r}_1 , sobre los cuales incide un haz de radiación de amplitud A y longitud de onda λ , Fig. II.10. Las ondas difundidas por los dos nodos interfieren y dan origen a una onda resultante, cuya amplitud queremos calcular en un cierto punto P suficientemente alejado, distante \vec{r} del origen. En la Fig. II.10 el centro difusor (o átomo) A_0 , de factor de difusión f , es coincidente con el origen O , \vec{S}_0 es un vector unitario en la dirección y sentido del haz incidente, y \vec{S} es un vector unitario que define una cierta dirección. El ángulo entre \vec{S} y \vec{S}_0 se denomina 2θ .

La onda difundida por A_0 es de la forma, ec. (II.10),

$$\frac{f}{r} e^{2\pi i \mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}}$$

donde, ec. (II.11)

$$|\vec{k}'| = k' = \frac{1}{\lambda}$$

La onda difundida por A_1 tiene una expresión similar, pero con un factor de fase \emptyset que se puede calcular rápidamente. En efecto, la diferencia de camino Δ entre la onda difundida por A_1 y la onda difundida por A_0 , es

$$\begin{aligned}\Delta &= N A_0 - M A_1 \\ &= \vec{S} \cdot \vec{r}_1 - \vec{S}_0 \cdot \vec{r}_1 \\ &= (\vec{S} - \vec{S}_0) \cdot \vec{r}_1\end{aligned}$$

y por lo tanto la diferencia de fase está dada por

$$\emptyset = \frac{2\pi}{\lambda} \Delta = 2\pi \frac{\vec{S} - \vec{S}_0}{\lambda} \cdot \vec{r}_1 = 2\pi (\vec{k}' - \vec{k}) \cdot \vec{r}_1 \quad (\text{II.20})$$

Llamando

$$\vec{s} = \vec{k}' - \vec{k} \quad (\text{II.21})$$

resulta

$$\emptyset = 2\pi \vec{s} \cdot \vec{r}_1 \quad (\text{II.22})$$

El vector \vec{s} definido por (II.21) se denomina vector recíproco, o vector de difusión, y su módulo es, Fig. II.1

$$|\vec{s}| = s = \frac{2 \operatorname{sen} \theta}{\lambda} \quad (\text{II.23})$$

La amplitud de la onda resultante está dada entonces por

$$\begin{aligned}\Lambda &= \frac{f}{r} e^{2\pi i k' r} + \frac{f}{r} e^{2\pi i k r + 2\pi i (\vec{k}' - \vec{k}) \cdot \vec{r}_1} \\ &= \frac{f}{r} e^{2\pi i k' r} \left[1 + e^{2\pi i (\vec{k}' - \vec{k}) \cdot \vec{r}_1} \right] \\ &= \frac{f}{r} e^{2\pi i k' r} \sum_{j=0}^1 e^{2\pi i \vec{s} \cdot \vec{r}_j} \quad (\text{II.24})\end{aligned}$$

Consideremos ahora una red de Bravais y dentro de ella un paralelepípedo que contiene N_1 nodos en la dirección del vector base \vec{a}_1 ,



Fig. II.11. Micrografía electrónica de una lámina delgada de níquel, en la cual puede observarse el contraste típico de un límite de macla. $M = 30.000$. Atención: Cristina O. de González.

N_2 nodos en la dirección de \vec{a}_2 , y N_3 en la dirección de \vec{a}_3 . El número total de nodos contenidos en este volumen es

$$N = N_1 N_2 N_3$$

La amplitud de la onda difractada por la red, suponiendo que cada nodo es un centro difusor (o átomo) de factor de difusión f , se obtiene superponiendo las ondas difundidas por cada uno de los nodos, con su correspondiente factor de fase. Entonces, de acuerdo a (II.24), resulta

$$A = \frac{f}{r} \sum_j e^{2\pi i \vec{s} \cdot \vec{r}_j} \quad (\text{II.25})$$

donde la suma se extiende a todos los N nodos contenidos en el paralelepípedo considerado. En la expresión (II.25) y de ahora en adelante, se omite el primer factor exponencial, ec. (II.24) puesto que su módulo es la unidad y no afecta por lo tanto el cálculo posterior de las intensidades.

La suma (II.25) es triple, dado que los vectores \vec{r}_j son de la forma

$$\vec{r}_j = \vec{r}_{uvw} = u \vec{a}_1 + v \vec{a}_2 + w \vec{a}_3$$

donde \vec{a}_1 , \vec{a}_2 y \vec{a}_3 son los vectores base de la red, y (u, v, w) es un conjunto de números enteros que varían

u : entre 0 y $N_1 - 1$

v : entre 0 y $N_2 - 1$

w : entre 0 y $N_3 - 1$

La expresión (II.25) puede escribirse entonces

$$A = \frac{f}{r} \sum_{u=0}^{N_1-1} e^{2\pi i u \vec{a}_1 \cdot \vec{s}} \sum_{v=0}^{N_2-1} e^{2\pi i v \vec{a}_2 \cdot \vec{s}} \sum_{w=0}^{N_3-1} e^{2\pi i w \vec{a}_3 \cdot \vec{s}} \quad (\text{II.26})$$

Cada uno de los factores de (II.26) puede considerarse a su vez como la suma de los N primeros términos de una serie geométrica de la forma

$$\sum_{n=0}^{N-1} ar^n = a + ar + ar^2 + \dots + ar^{N-1} = \frac{ar^N - a}{r-1}$$

cuya razón r es, en cada uno de los casos

$$e^{2\pi i \bar{a}_1 \cdot \bar{s}}, \quad e^{2\pi i \bar{a}_2 \cdot \bar{s}}, \quad e^{2\pi i \bar{a}_3 \cdot \bar{s}}$$

y las sumas respectivas son de la forma

$$\sum_{u=0}^{N_1-1} e^{2\pi i u \bar{a}_1 \cdot \bar{s}} = \frac{e^{2\pi i N_1 \bar{a}_1 \cdot \bar{s}} - 1}{e^{2\pi i \bar{a}_1 \cdot \bar{s}} - 1} \quad (\text{II.27})$$

y expresiones similares para las sumas sobre el índice v y w .

La intensidad de una onda es proporcional al cuadrado de su amplitud

$$I \approx |A|^2 = AA^*$$

donde A^* es el complejo conjugado de A . Llamando

$$\Psi_1 = \frac{1}{2} (2\pi \bar{a}_1 \cdot \bar{s}) \quad \Psi_2 = \frac{1}{2} (2\pi \bar{a}_2 \cdot \bar{s}) \quad \Psi_3 = \frac{1}{2} (2\pi \bar{a}_3 \cdot \bar{s}) \quad (\text{II.28})$$

y teniendo en cuenta que

$$\frac{e^{i2N\Psi} - 1}{e^{i2\Psi} - 1} \times \frac{e^{-i2N\Psi} - 1}{e^{-i2\Psi} - 1} = \frac{1 - \cos 2N\Psi}{1 - \cos 2\Psi}$$

y la relación trigonométrica

$$1 - \cos x = 2 \sin^2 \frac{1}{2} x$$

la intensidad de la onda resultante, dada por el cuadrado del módulo (II.26), resulta finalmente

$$I(\vec{s}) = |A(\vec{s})|^2 = \frac{f^2}{r^2} \frac{\text{sen}^2 N_1 \psi_1}{\text{sen}^2 \psi_1} \frac{\text{sen}^2 N_2 \psi_2}{\text{sen}^2 \psi_2} \frac{\text{sen}^2 N_3 \psi_3}{\text{sen}^2 \psi_3} \quad (\text{II.29})$$

o en forma más abreviada

$$I(\vec{s}) = \frac{f^2}{r^2} G^2$$

La intensidad $I(\vec{s})$ depende del vector recíproco \vec{s} , y por lo tanto de la dirección \vec{S} , a través de los argumentos ψ_1 , ψ_2 y ψ_3 , ec. (II.28). El análisis más detallado de esta dependencia permite determinar cuales son las direcciones, o los ángulos 2θ , para las cuales la intensidad es máxima.

Cada una de las funciones del tipo

$$\frac{\text{sen}^2 N_1 \psi_1}{\text{sen}^2 \psi_1} \quad (\text{II.30})$$

tiene una forma muy particular, Fig. II.12. En efecto, presenta máximos muy acentuados iguales a N_1^2 para valores del argumento $\psi_1 = h\pi$ y ceros para $\psi_1 = (h + 1/N_1)\pi$, siendo h un entero cualquiera. Los máximos son más pronunciados y angostos cuanto mayor es N_1 . Entre dos máximos sucesivos, por ejemplo entre $\psi_1 = 0$ y $\psi_1 = \pi$ existen $(N_1 - 2)$ máximos secundarios cuyas alturas son una fracción muy pequeña de los máximos principales, y tienden a desaparecer cuando N_1 es grande. De esta manera la función (II.30) tiene valores apreciables solo en los puntos de abscisa $\psi_1 = h\pi$ que corresponden a los máximos principales.

La función $I(\vec{s})$ dada por (II.29) es por lo tanto prácticamente nula, salvo cuando los tres argumentos (II.28) son múltiplos enteros de π . En este caso

$$I(\vec{s}) = \frac{f^2}{r^2} N_1^2 N_2^2 N_3^2 = \frac{f^2}{r^2} N^2 \quad (\text{II.31})$$

y se verifican las llamadas condiciones de Laue

$$\begin{aligned}\psi_1 &= \frac{1}{2} (2 \pi \bar{a}_1 \cdot \bar{s}) = h \\ \psi_2 &= \frac{1}{2} (2 \pi \bar{a}_2 \cdot \bar{s}) = k \\ \psi_3 &= \frac{1}{2} (2 \pi \bar{a}_3 \cdot \bar{s}) = l\end{aligned}\quad (\text{II.32})$$

siendo h, k, l , enteros cualesquiera, positivos, negativos o nulos.

Llamando α, β, γ , a los ángulos que forma el vector recíproco \bar{s} con los ejes $\bar{a}_1, \bar{a}_2, \bar{a}_3$, respectivamente, los productos escalares de (II.32) pueden desarrollarse, teniendo en cuenta (II.23)

$$\begin{aligned}a_1 \frac{2 \operatorname{sen} \theta}{\lambda} \cos \alpha &= h \\ a_2 \frac{2 \operatorname{sen} \theta}{\lambda} \cos \beta &= k \\ a_3 \frac{2 \operatorname{sen} \theta}{\lambda} \cos \gamma &= l\end{aligned}\quad (\text{II.33})$$

Las expresiones (II.32) o (II.33) expresan las condiciones generales de difracción, en una dirección dada. Su significado en términos cristalográficos puede verse más en detalle observando que $\cos \alpha, \cos \beta, \cos \gamma$ son los cosenos directores del vector \bar{s} en la terna $\bar{a}_1, \bar{a}_2, \bar{a}_3$. Las condiciones de Laue (II.33) expresan que dichos cosenos son proporcionales a

$$\frac{h}{a_1}, \frac{k}{a_2}, \frac{l}{a_3}\quad (\text{II.34})$$

respectivamente. Por otro lado consideremos un plano de una familia de índices de Miller (hkl) y espaciado d_{hkl} , cuyas intersecciones con los tres ejes de referencia son

$$\frac{a_1}{h}, \frac{a_2}{k}, \frac{a_3}{l}$$

En la Fig. II.13 puede verse que los cosenos directores de la normal \bar{n} están dados por

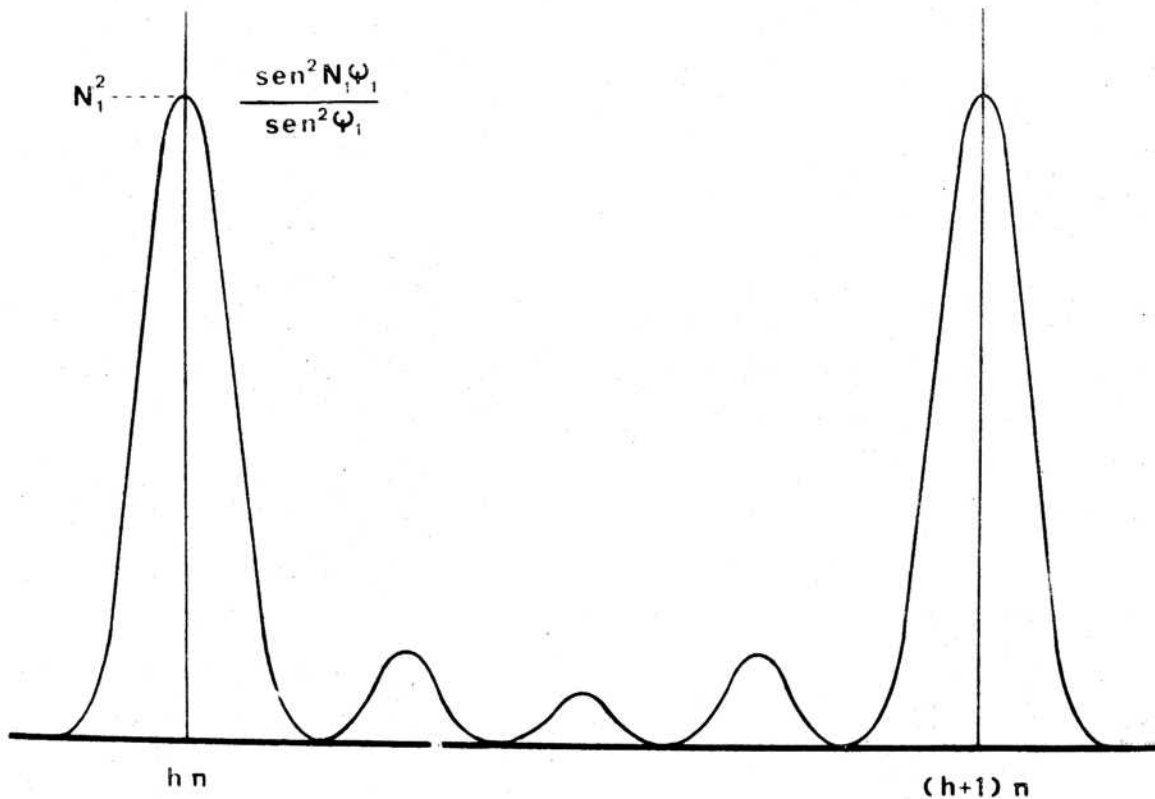


Fig. II.12. Intensidad difractada por una red geométrica. Presenta máximos muy marcados cuando el argumento ψ_1 es un múltiplo entero de n . La forma particular de esta función indica que solamente en ciertas y bien determinadas direcciones existirá intensidad difractada.

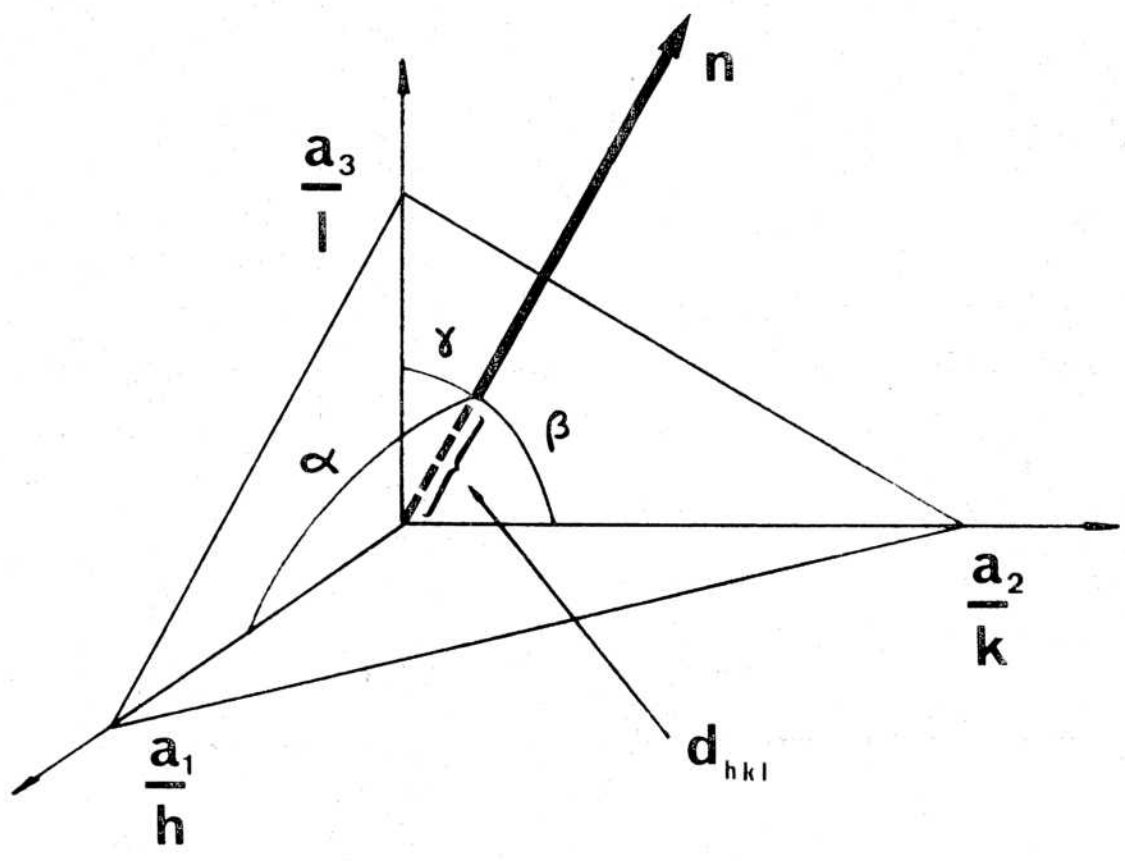


Fig. II.13. Cosenos directores de la normal a una familia (hkl) de planos reticulares.

$$\cos = \frac{d_{hkl}}{a_1/h} \quad \cos = \frac{d_{hkl}}{a_2/k} \quad \cos = \frac{d_{hkl}}{a_3/l} \quad (\text{II.35})$$

que, dividiendo por el factor común d_{hkl} , se reducen a (II.34). Por lo tanto la condición necesaria para que en una cierta dirección exista intensidad difractada, es que el vector \vec{s} , dado por (II.21), sea normal a una familia de planos reticulares (hkl) . En otras palabras, las direcciones de los posibles haces difractados (\vec{S}), y del haz incidente (\vec{S}_0) están relacionadas entre sí como en una reflexión óptica. Por ello se suele hablar indistintamente de haces difractados, o haces reflejados, o una reflexión (hkl) .

Las ecuaciones (II.33) y (II.35) se reducen a una única expresión

$$2 d_{hkl} \text{ sen } \theta = \lambda \quad (\text{II.36})$$

que se conoce con el nombre de ley de Bragg. Es interesante notar que esta expresión es válida para el caso general de la difracción de una radiación de longitud de onda λ (sea ésta un haz de rayos X, electrones, neutrones, etc.) por una red geométrica de puntos.

La ecuación (II.36) fue deducida inicialmente por Bragg en 1913 para el caso particular de los rayos X, suponiendo que una familia de planos reticulares reflejaba la radiación incidente de acuerdo a las leyes de la reflexión óptica. De esta manera si un haz de radiación de longitud de onda λ incide sobre una familia de planos (hkl) formando un ángulo θ , Fig. II.14, la diferencia de caminos recorridos por los haces (1) y (2) es

$$\Delta = AO' + O'B = 2 \times d_{hkl} \text{ sen } \theta$$

Si Δ es un múltiplo entero de la longitud de onda λ , los haces (1) y (2) estarán en fase e interferirán dando lugar a un máximo de difracción. La condición de interferencia constructiva se expresa entonces

$$2 d_{hkl} \text{ sen } \theta = n \lambda \quad (\text{II.37})$$

siendo $n = 1, 2, 3, \dots$ un número entero, que indica el orden del haz difractado. Esta ley, ec. (II.37), predice correctamente la dirección de los haces difractados por un cristal dado, pero actualmente se prefiere el formulismo de Laue. Esta teoría es mucho más general, puesto que además de determinar la orientación de los haces difractados, permite calcular el valor de las intensidades respectivas. También prevé el efecto del tamaño del cristal irradiado, a través de las cantidades N_1 , N_2 y N_3 , sobre el ancho angular de los máximos de difracción. Actualmente tampoco se habla de órdenes de difracción, sino que escribiendo (II.37) de la forma

$$2 \frac{d_{hkl}}{n} \operatorname{sen}\theta = \lambda \quad (\text{II.38})$$

los haces correspondientes a $n = 1, 2, 3, \dots$ se consideran como originados por familias de planos del tipo (nh, nk, nl) de espaciado sucesivamente decreciente

$$d_{hkl}/1, d_{hkl}/2, d_{hkl}/3, \dots$$

II.3.3 Esfera de Ewald

Las condiciones de difracción por una red tridimensional, ec. II.32 (condiciones de Laue), o su equivalente la ec. II.36 (ley de Bragg), pueden ser fácilmente visualizables mediante la construcción de Ewald, Fig. II.15. Si se cumplen las condiciones de difracción el vector \vec{s} , por un lado, es normal a la familia de planos (hkl) , y por otro, su módulo es

$$s = \frac{2 \operatorname{sen}\theta}{\lambda} = \frac{1}{d_{hkl}}$$

Por lo tanto, s es coincidente en dirección, sentido y módulo, con el vector de la red recíproca

$$\vec{s} = \vec{r}_{hkl}^* = \vec{g}_{hkl} \quad (\text{II.39})$$

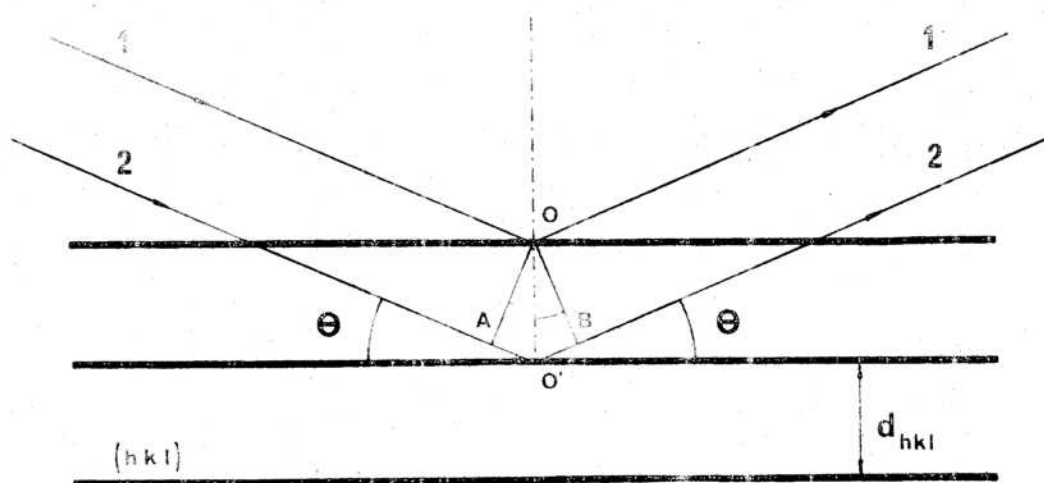


Fig. II.14. Esquema para la deducción de la ley de Bragg, suponiendo que una familia (hkl) de planos reticulares refleja la radiación incidente según las leyes de la reflexión óptica.

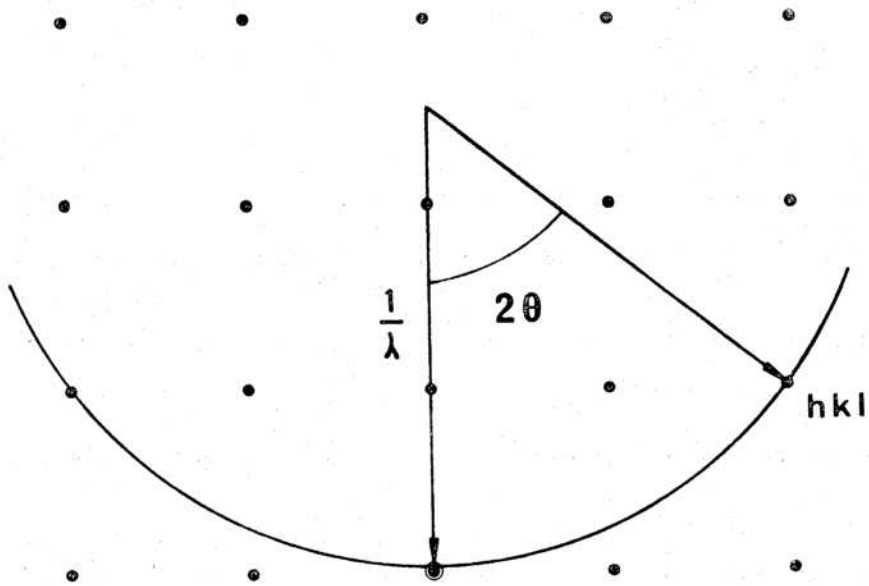


Fig. II.15. Construcción de la esfera de Ewald. Siempre que un nodo (hkl) de la red recíproca está ubicado sobre la superficie de la esfera de Ewald, existirá un haz difractado en la dirección que une el centro de la esfera con dicho nodo.

De ahora en adelante, de acuerdo a la nomenclatura corriente en microscopía electrónica, utilizaremos el símbolo \vec{g} para denominar todo vector de la red recíproca que une el origen con un nodo (hkl).

Esta forma vectorial de la ley de Bragg permite visualizar las direcciones en las cuales puede existir un haz difractado. Consideremos la red recíproca de una red puntual. Supongamos que un haz de radiación de longitud de onda λ , Fig. II.15, incide según una dirección \vec{S}_0 . Con centro en un punto P, origen de un vector

$$\vec{PO} = \frac{\vec{S}_0}{\lambda}$$

se traza una esfera de radio $1/\lambda$, que contiene el origen O de la red recíproca. Para todo nodo Q de la red recíproca ubicado sobre la esfera, se verifica

$$\vec{g}_{hkl} = \frac{\vec{S} - \vec{S}_0}{\lambda} = \vec{s}$$

que es la ley de Bragg. Las condiciones de difracción pueden expresarse de la siguiente manera

Siempre que un nodo (hkl) de la red recíproca está ubicado sobre la superficie de la esfera de Ewald, existirá un haz difractado en la dirección que une el centro de la esfera con dicho nodo.

En otras palabras, si la esfera de Ewald contiene un nodo (hkl), el cristal está orientado de tal manera que se verifica la ley de Bragg (II.36) para la familia de planos (hkl). Como por definición el nodo origen (000) de la red recíproca está contenido en la esfera de Ewald, en la dirección del haz incidente ($\vec{s} = 0$) existe siempre un máximo de difracción.

El caso de la Fig. II.15 corresponde a una experiencia de difracción de rayos X. La longitud de onda ($\approx 1.5 \text{ \AA}$) es del mismo orden de los espaciados atómicos ($\approx 2 \text{ \AA}$), y por lo tanto el radio de la esfera de Ewald es también del mismo orden que la distancia entre nodos vecinos de la red recíproca. En una orientación arbi-

traría de un cristal, la probabilidad de que un nodo recíproco esté contenido en la esfera es baja. Por ello en difracción de rayos X se utilizan muestras policristalinas, o se hace oscilar un monocristal de alguna manera conveniente.

La situación es distinta en una experiencia de difracción de electrones en un microscopio electrónico. La longitud de onda de un haz acelerado por ejemplo por un potencial de 100 kV, es igual a 0.037 Å. El radio de la esfera de Ewald es por lo tanto

$$k = \frac{1}{\lambda} = 27 \text{ Å}^{-1}$$

Para un monocristal de cobre, de parámetro de red $a = 3.62 \text{ Å}$, la distancia entre nodos vecinos de la red recíproca es

$$g = \frac{1}{a} = 0.28 \text{ Å}^{-1}$$

El radio de la esfera de Ewald resulta así unas 100 veces mayor que la distancia entre nodos recíprocos. Por lo tanto en las vecindades del origen, la esfera puede considerarse prácticamente plana, Fig. II.16, y entonces

Los diagramas de difracción obtenidos en un microscopio electrónico corresponden a planos enteros de la red recíproca.

La interpretación de un diagrama de difracción de electrones resulta así relativamente fácil. En particular si el haz incide sobre la lámina delgada según una dirección cristalográfica bien determinada, el diagrama se interpreta rápidamente en base a sus simetrías. Para orientaciones intermedias, existen criterios para el indexado correcto, y la determinación de la dirección del haz incidente, tal como se verá más adelante.

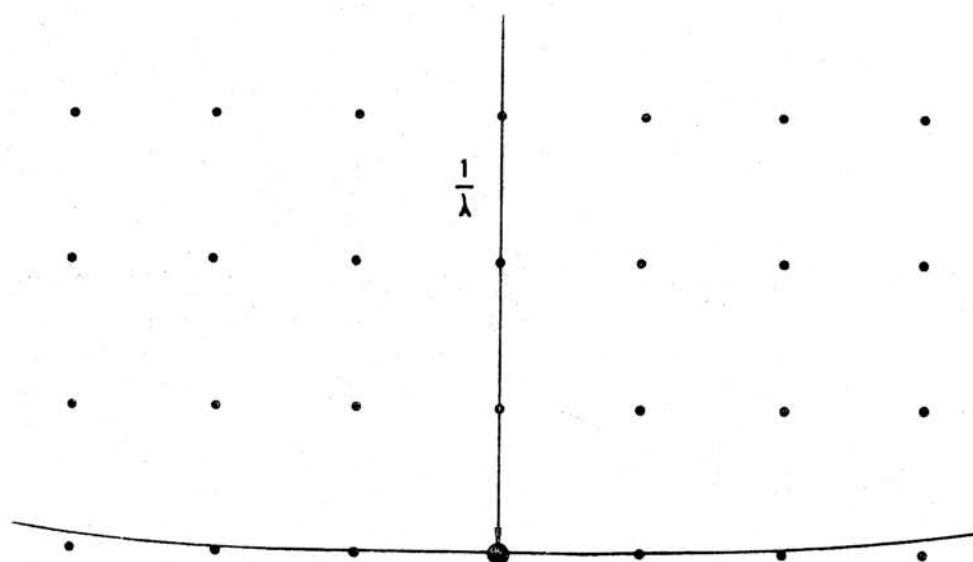


Fig. II.16. Construcción de la esfera de Ewald para el caso de un haz de electrones. El radio de la esfera es mucho mayor que la distancia entre nodos recíprocos. La esfera puede considerarse plana y por lo tanto los diagramas de difracción obtenidos en un microscopio electrónico corresponden a planos enteros de la red recíproca.

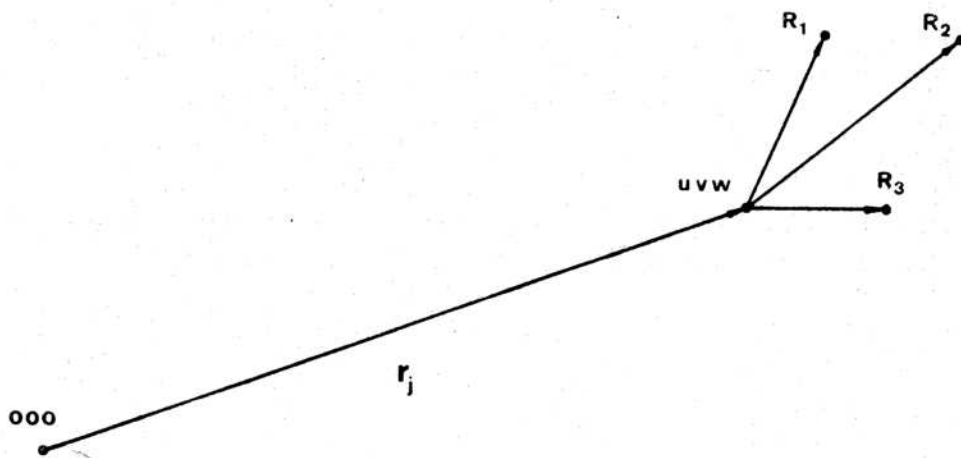


Fig. II.17. Esquema de construcción de una estructura cristalina. Esta se obtiene asociando a cada nodo (uvw) de una red geométrica, un motivo o configuración compuesto por n átomos.

II.3.4 Difracción por una Estructura Cristalina. Factor de Estructura

En la sección anterior se ha tratado el fenómeno de difracción de un haz por una red geométrica tridimensional, a partir de la única hipótesis de que cada nodo de la misma se convertía en un centro difusor, de acuerdo al principio de Huygens. La interferencia entre las ondas emitidas por cada nodo daba lugar a fuertes refuerzos de la intensidad en ciertas y bien determinadas direcciones dadas por la ley de Bragg. Pero en un cristal, cada nodo tiene asociado un cierto motivo compuesto por uno o más átomos. Veremos a continuación como se extienden los resultados de la teoría de Laue al caso de una estructura real.

Consideremos un cristal descrito por una red geométrica más una configuración compuesta por n átomos asociada a cada uno de sus nodos (u,v,w) . La posición de los átomos que componen el motivo, Fig. II.17, referida al nodo origen de la red, está determinada por los vectores

$$\vec{r}_j + \vec{R}_1, \quad \vec{r}_j + \vec{R}_2, \quad \dots, \quad \vec{r}_j + \vec{R}_n$$

La amplitud de la onda difundida por este motivo es igual a la suma de las amplitudes difundidas por cada uno de los átomos que lo componen, de factor de estructura $f_1, f_2 \dots f_n$, con su factor de fase correspondiente. Según (II.25) resulta

$$\begin{aligned} A_j &= \frac{1}{r} \left[f_1 e^{2\pi i \vec{s} \cdot (\vec{r}_j + \vec{R}_1)} + f_2 e^{2\pi i \vec{s} \cdot (\vec{r}_j + \vec{R}_2)} + \dots + \right. \\ &\quad \left. + f_n e^{2\pi i \vec{s} \cdot (\vec{r}_j + \vec{R}_n)} \right] \\ &= \frac{1}{r} e^{2\pi i \vec{s} \cdot \vec{r}_j} \cdot \sum_j f_j e^{2\pi i \vec{s} \cdot \vec{R}_j} \end{aligned} \quad (\text{II.40})$$

Como la misma configuración atómica se repite alrededor de los N nodos de la red, entonces la amplitud de la onda difundida por todo el cristal será

$$A = \sum A_j = \frac{1}{r} \sum_j e^{2\pi i \vec{s} \cdot \vec{r}_j} \sum_{\nu} f_{\nu} e^{2\pi i \vec{s} \cdot \vec{R}_{\nu}} \quad (\text{II.41})$$

La suma sobre los nodos de la red, índice j , es la expresión correspondiente a una red geométrica puntual, ec. (II.25). Por lo tanto la intensidad $|A|^2$ obtenida a partir de (II.41) solamente toma valores apreciables cuando se cumplen las condiciones de Laue, es decir en las direcciones dadas por la ley de Bragg, o lo que es equivalente, cuando \vec{s} coincide con un vector de la red recíproca \vec{g}_{hkl} . Entonces, la expresión (II.41) toma la forma

$$\begin{aligned} A &= \frac{1}{r} N \sum_{\nu=1}^n f_{\nu} e^{2\pi i \vec{g}_{hkl} \cdot \vec{R}_{\nu}} \\ &= \frac{N}{r} F_{hkl} \end{aligned} \quad (\text{II.42})$$

donde F_{hkl} es en general un número complejo, que se denomina factor de estructura del máximo de difracción (hkl). Expresando los vectores \vec{R}_{ν} en la terna \vec{a}_1, \vec{a}_2 y \vec{a}_3 que define la red

$$\vec{R}_{\nu} = x_{\nu} \vec{a}_1 + y_{\nu} \vec{a}_2 + z_{\nu} \vec{a}_3 \quad (\text{II.43})$$

y como

$$\vec{g}_{hkl} = h \vec{a}_1^* + k \vec{a}_2^* + l \vec{a}_3^* \quad (\text{II.44})$$

entonces, recordando las expresiones (II.15), el factor de estructura se expresa finalmente de la forma

$$F_{hkl} = \sum_{\nu=1}^n f_{\nu} e^{2\pi i (hx_{\nu} + ky_{\nu} + lz_{\nu})} \quad (\text{II.45})$$

donde la suma sobre el índice ν se extiende a los n átomos que componen el motivo de repetición.

Por lo tanto la posición angular de los máximos de la intensidad difractada por una red no se ve alterada si alrededor de los nodos de la misma se distribuye una cierta configuración de átomos. Por otro

lado, si el factor de estructura F_{hkl} es nulo, la intensidad difractada será nula, aún en las direcciones previstas por las ec. (II.32) o (II.36). Entonces el hecho de asociar una configuración atómica a los nodos de una red puede provocar la desaparición de algunos haces difractados ($F_{hkl} = 0$) pero nunca la aparición de nuevas reflexiones no previstas por las condiciones de Laue.

En las secciones siguientes se verá como se ve afectada, por el efecto de factor de estructura, la geometría de los diagramas de difracción de algunas estructuras comunes.

II.3.4.1 Estructura Cúbica de Caras Centradas

La estructura cúbica de caras centradas (Al, Cu, Ag, Au, ...) puede describirse por medio de una celda primitiva romboédrica, Fig. II.5, o también por una celda cúbica que contiene un motivo compuesto por cuatro átomos idénticos. En este último caso las coordenadas fraccionarias (x, y, z) de los átomos en la celda cúbica de arista a son

$$(000) \quad \left(\frac{1}{2} \frac{1}{2} 0\right) \quad \left(\frac{1}{2} 0 \frac{1}{2}\right) \quad \left(0 \frac{1}{2} \frac{1}{2}\right)$$

Entonces, de acuerdo a (II.45) el factor de estructura resulta

$$F_{hkl} = f (1 + e^{i\pi(h+k)} + e^{i\pi(h+1)} + e^{i\pi(k+1)}) \quad (\text{II.46})$$

donde f es el factor atómico de difusión.

Si los índices (hkl) son de distinta paridad, según (II.46)

$$F_{hkl} = 0 \quad (\text{II.47})$$

En cambio si (hkl) son de igual paridad (todos pares o todos impares)

$$F_{hkl} = 4f$$

De esta manera las reflexiones posibles son del tipo

(111)	(222)	(333) ...
(200)	(400)	(600) ...
(220)	(420)	(620) ...
(311)	(331)	(351) ...
.....		

Veremos entonces como afectan a la red recíproca las reflexiones prohibidas en esta estructura.

La red recíproca de una red cúbica P de arista a , Tabla II.2, es también una red cúbica P de arista $a^* = 1/a$, recordar ec. (II.18). Si en esta red se eliminan los nodos (hkl) correspondientes a las reflexiones prohibidas por (II.47) se puede ver fácilmente que la nueva red resultante es una red cúbica I, cuerpo centrado, cuya arista es, Fig. II.18

$$2 \times a^* = 2 \times \frac{1}{a}$$

Entonces la geometría de los diagramas de difracción corresponde a planos de una red cúbica bcc de arista $2a^*$. El plano particular que se pone en evidencia en cada caso es aquél perpendicular al haz incidente, ver Fig. II.16.

Si una lámina delgada está orientada en el microscopio electrónico de tal manera que el haz electrónico incide según la dirección cristalográfica $[100]$, el diagrama de difracción será un plano (100) de su red recíproca, tal como se muestra en la Fig. II.19. En la Fig. II.20 se puede ver cual es el diagrama de difracción correspondiente a la orientación (110), esto es, haz incidente según la dirección $[110]$ del cristal, plano (110) de la red recíproca. Si el haz incide sobre la lámina según una dirección $[111]$, el diagrama de difracción es un plano recíproco (111), Fig. II.21. Estos diagramas son fácilmente identificables por su simetría, y en general, en una estructura cúbica el indexado de las distintas reflexiones suele ser rápido.

En un caso como el de la Fig. II.22, plano (213) de la red recíproca, el diagrama no presenta simetrías tan evidentes como las anteriores, pero existen criterios para el indexado de un diagrama no identificado, ver por ejemplo, capítulo 6 del libro de Hirsch y col.(1).

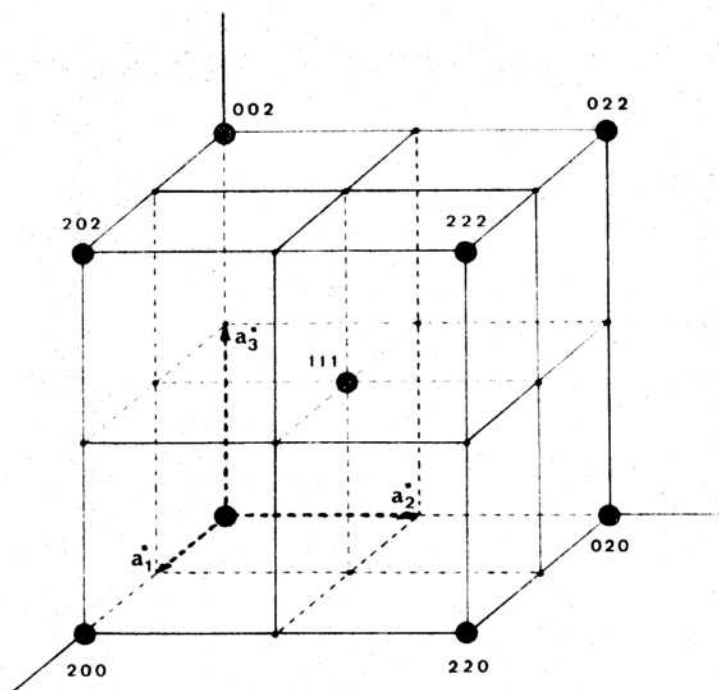


Fig. II.18. Red recíproca de una red cúbica de caras centradas.

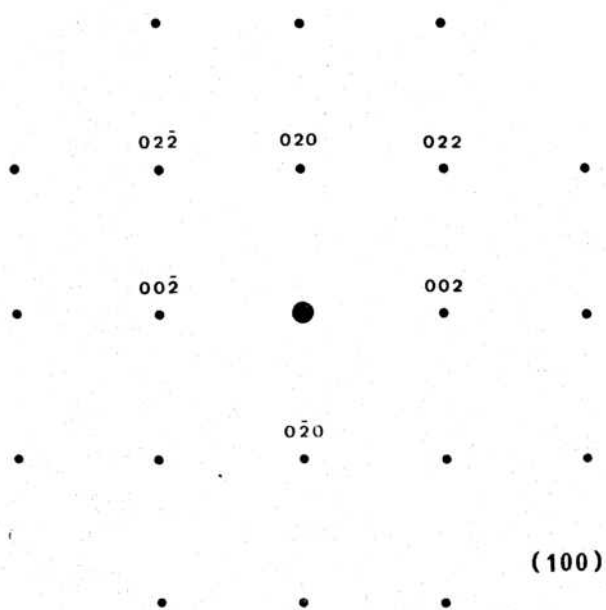


Fig. II.19. Plano (100) de la red recíproca de una estructura cúbica de caras centradas.

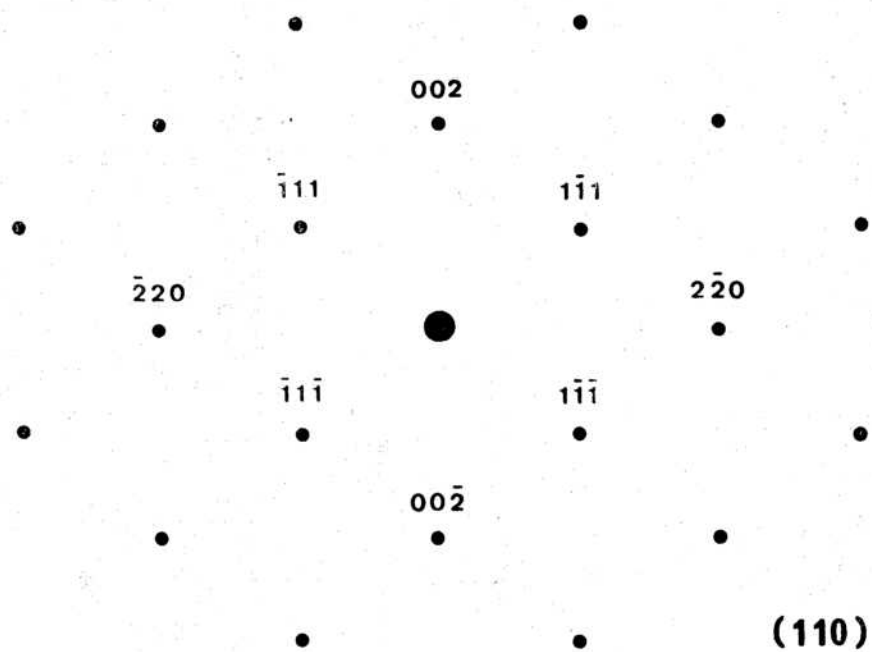


Fig. II.20. Plano (110) de la red recíproca de una estructura cúbica de caras centradas.

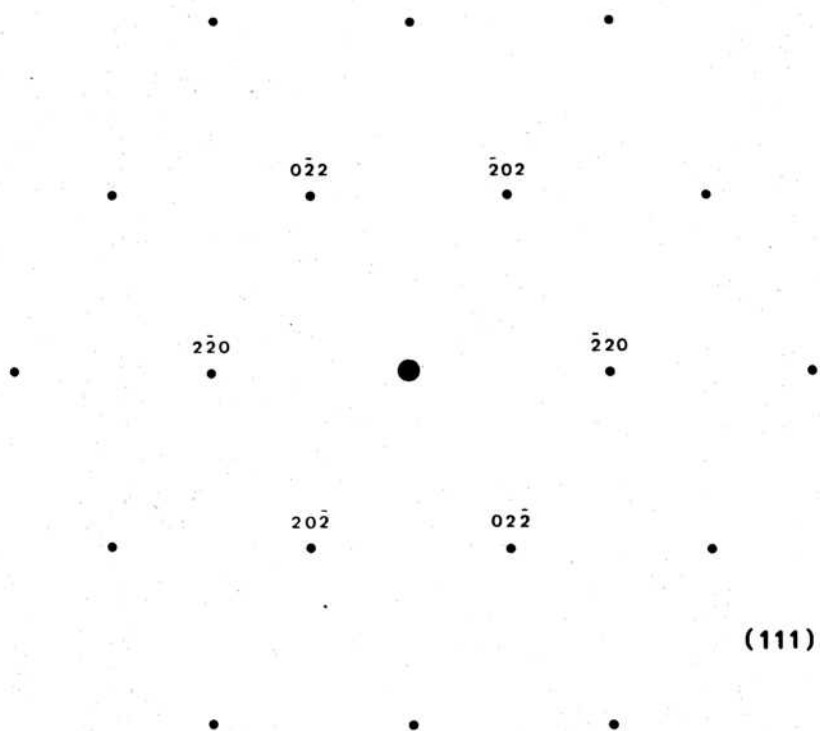


Fig. II.21. Plano (111) de la red recíproca de una estructura cúbica de caras centradas.

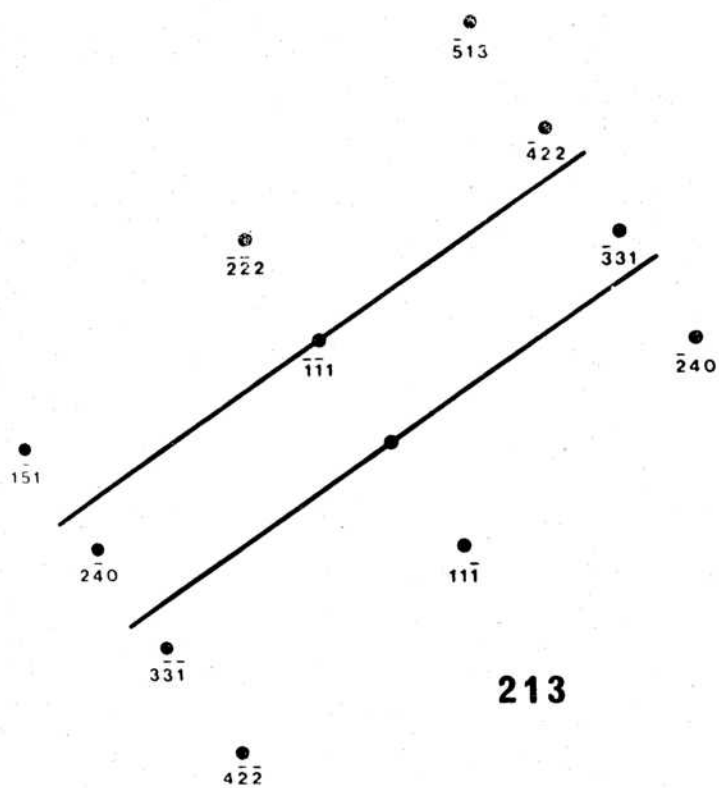


Fig. II.22. Plano (213) de la red recíproca de una estructura cúbica de caras centradas.

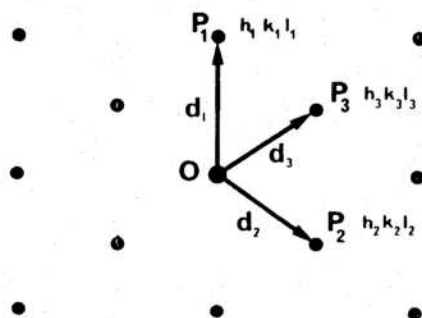


Fig. II.23. Indexado de un diagrama de difracción.

**a****b**

Fig. II.24. Diagramas de difracción de una lámina delgada de cobre, en distintas orientaciones: (a): (110) - (b): (100).

Por ejemplo, Fig. II.23, para dos puntos P_1 y P_2 próximos al origen O , cuyos índices $(h_1 k_1 l_1)$ y $(h_2 k_2 l_2)$ se desean conocer, se miden las distancias OP_1 y OP_2 , y se efectúa el cociente de sus cuadrados

$$\frac{(OP_1)^2}{(OP_2)^2} = \frac{h_1^2 + k_1^2 + l_1^2}{h_2^2 + k_2^2 + l_2^2}$$

Los índices (hkl) son siempre números enteros, deben verificar esta última relación, y además para un punto como P_3 en la Fig. II.23, debe cumplirse

$$(h_3 k_3 l_3) = (h_1 k_1 l_1) + (h_2 k_2 l_2)$$

Por sucesivas pruebas es posible encontrar los valores de las tres ternas (hkl) que satisfacen las dos relaciones anteriores. También se puede medir el ángulo entre OP_1 y OP_2 y por búsqueda en una tabla de ángulos interplanares del sistema cúbico, obtener las ternas (hkl) asociadas a P_1 y P_2 . El resto del diagrama se indexa en este caso por simple adición vectorial. En una publicación del laboratorio (7) se pueden encontrar varios ejemplos ilustrativos de indexado de diagramas. En la Fig. II.24 se muestran algunos diagramas de difracción correspondientes a una lámina delgada de cobre.

II.3.4.2 Estructura Cúbica de Cuerpo Centrado

Si a cada nodo de una red cúbica simple de arista a se le asocia un motivo compuesto por dos átomos individuales, de factor atómico de difusión f , en las posiciones definidas por las coordenadas fraccionarias

$$(000) \quad \left(\frac{1}{2} \frac{1}{2} \frac{1}{2}\right)$$

se obtiene la estructura A_2 , también denominada cúbica de cuerpo centrado, o bcc. El factor de estructura resulta, según (II.45),

$$F_{hkl} = f \left[1 + e^{i(h+k+l)} \right] \quad (\text{II.48})$$

Entonces para

$$\begin{aligned} h+k+l = 2n \quad (\text{número par}) \text{ es } F_{hkl} &= 2f \\ h+k+l = 2n+1 \quad (\text{número impar}) \text{ es } F_{hkl} &= 0 \end{aligned} \quad (\text{II.49})$$

Las reflexiones permitidas son por lo tanto del tipo

$$(110) \quad (200) \quad (211) \quad (220) \quad (310) \quad \dots$$

Análogamente al caso anterior, sección II.3.4.1, se puede ver fácilmente que eliminando las reflexiones prohibidas por (II.49) de los nodos de una red recíproca cúbica de arista $a^* = 1/a$, los nodos restantes, correspondientes a las reflexiones permitidas, se disponen según una red cúbica de caras centradas de arista $2a^*$. Los diagramas de difracción son planos de esta red recíproca, y su geometría se puede obtener fácilmente como en el caso anterior.

II.3.4.3 Estructura Hexagonal Compacta

La estructura hexagonal compacta se obtiene asociando a los nodos de una red hexagonal P, Tabla II.2, un motivo compuesto por dos átomos idénticos situados en las posiciones

$$(000) \quad \left(\frac{1}{3} \quad \frac{2}{3} \quad \frac{1}{2} \right)$$

en la celda definida por los tres vectores, Fig. II.25 (a),

$$\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{c} \quad \text{con } |\vec{a}_1| = |\vec{a}_2| = a$$

Es fácil demostrar (7) que la red recíproca de una red hexagonal es otra red hexagonal, rotada 30° alrededor del eje c , tal que

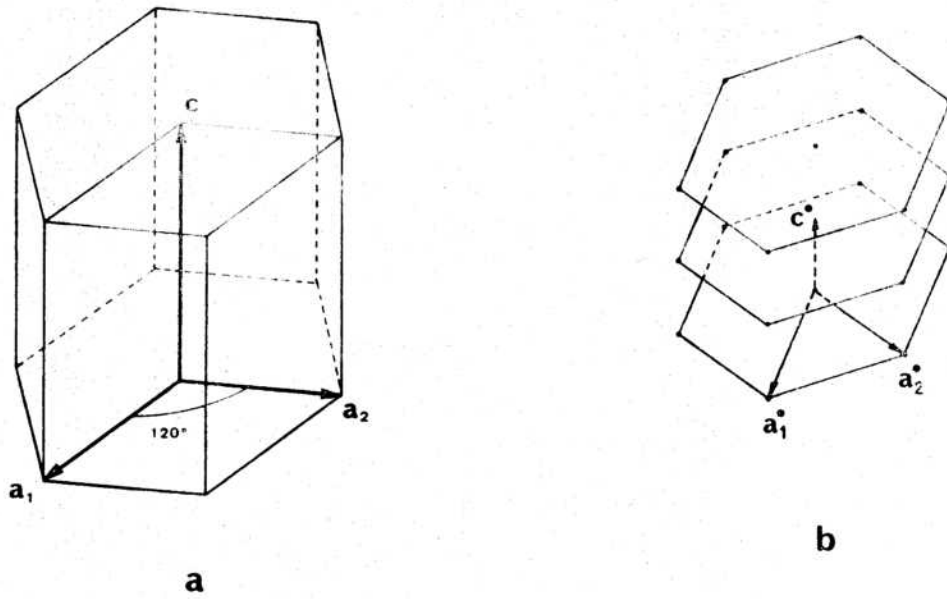


Fig. II.25. (a) Estructura hexagonal. (b) Esquema de la red recíproca.

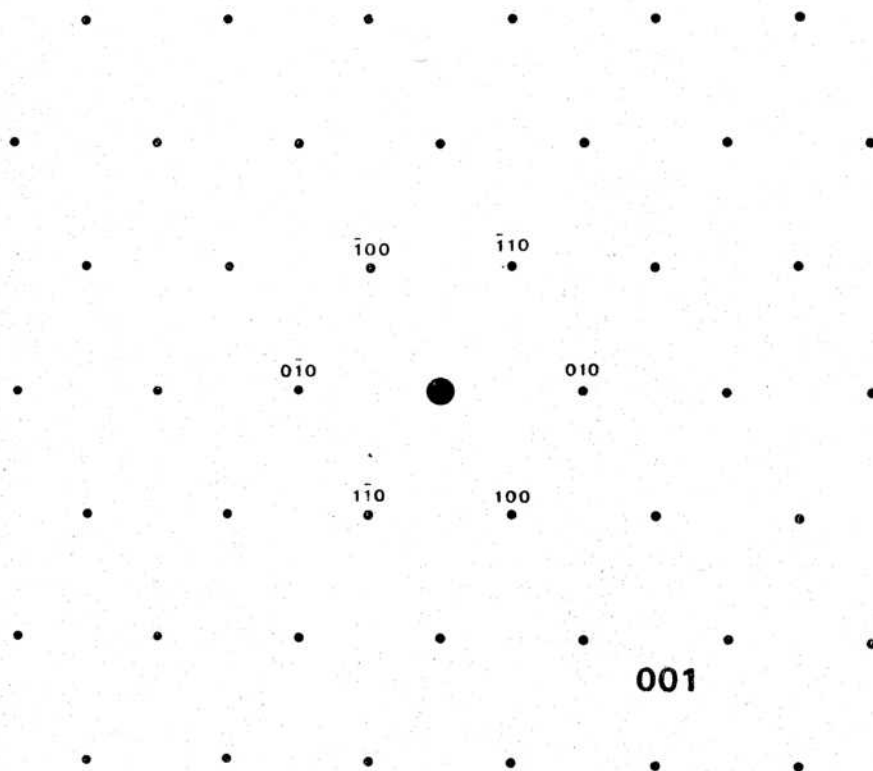


Fig. II.26. Plano (001) de la red recíproca de una estructura hexagonal compacta.

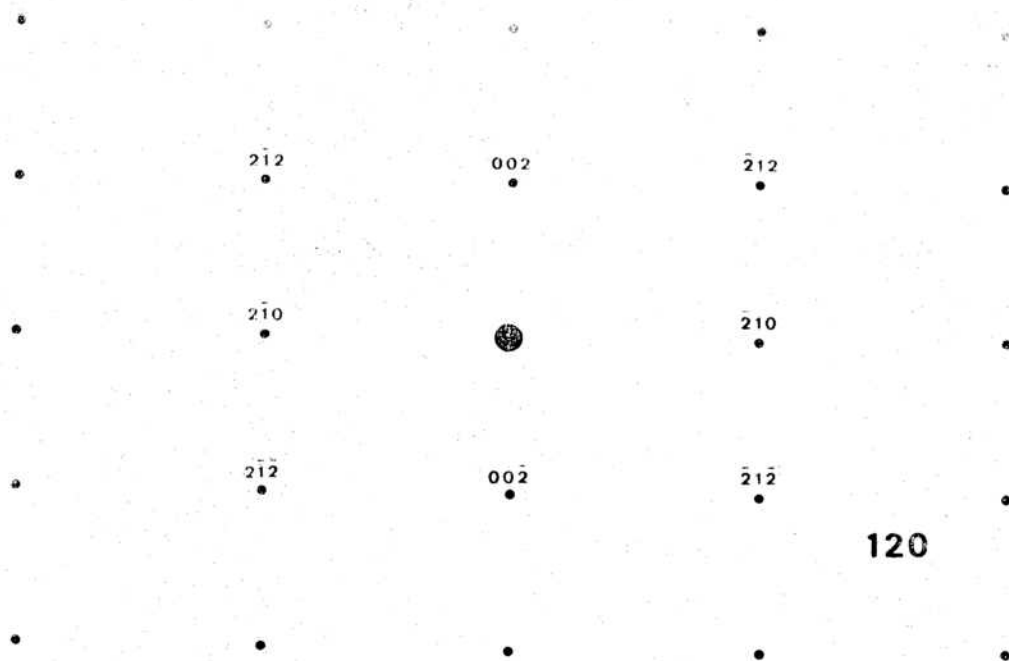


Fig. II.27. Plano (120) de la red recíproca de una estructura hexagonal compacta.

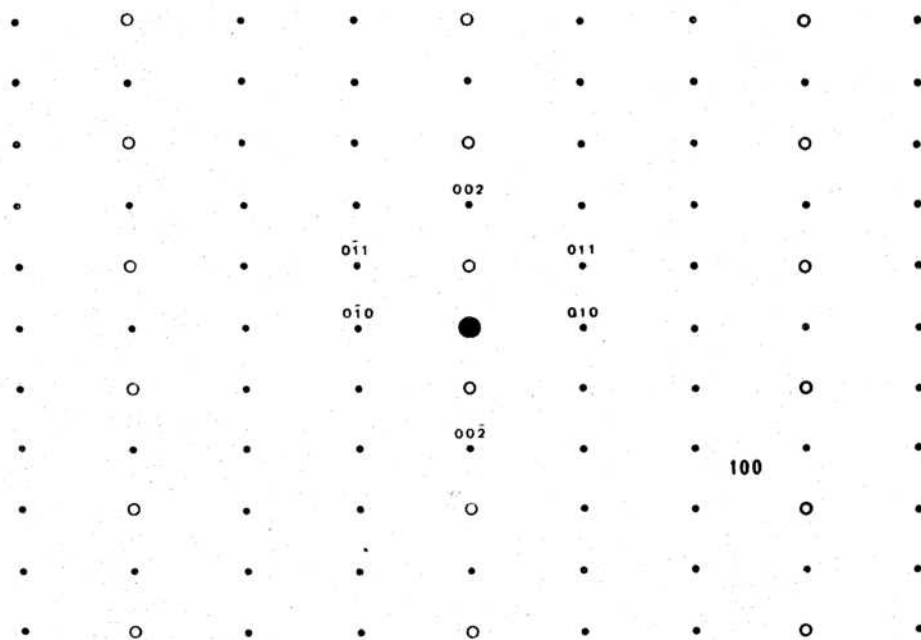


Fig. II.28. Plano (100) de la red recíproca de una estructura hexagonal compacta. Las reflexiones indicadas con círculos no están permitidas, pero pueden aparecer en un diagrama por efecto de doble difracción.

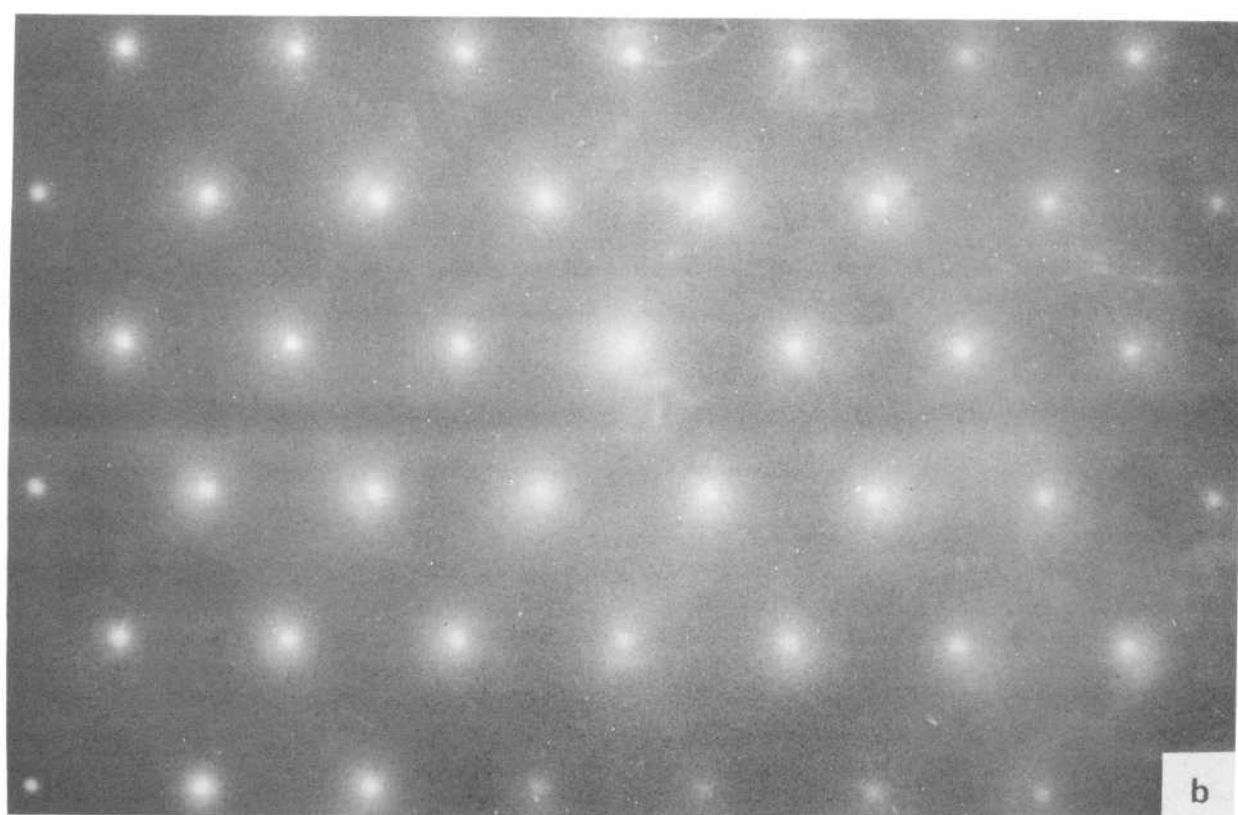
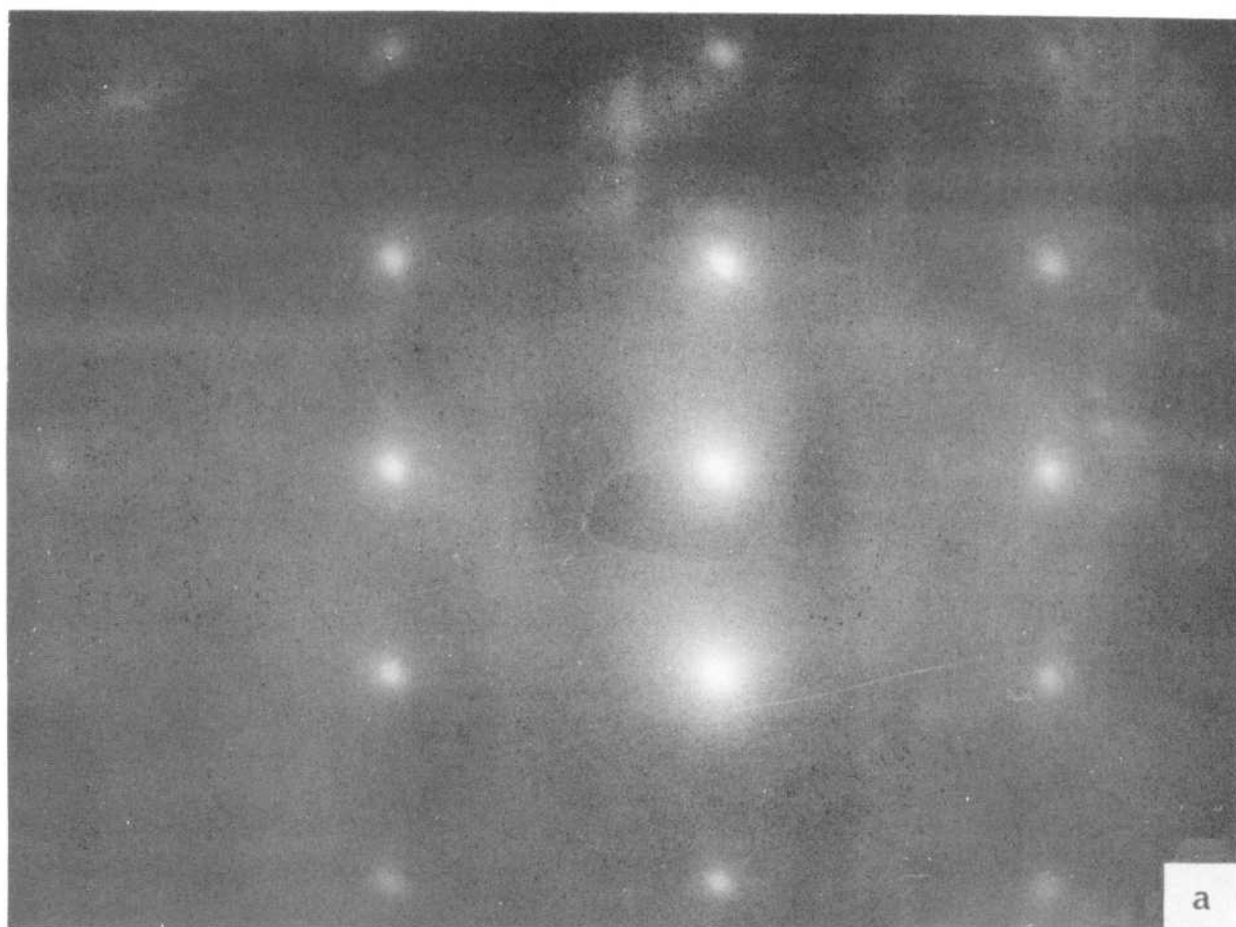




Fig. II.29. Diagramas de difracción de una lámina delgada de zirconio, en distintas orientaciones respecto del haz electrónico. (a): (120), (b): (001), (c): (100).

$$|\vec{a}_1^*| = |\vec{a}_2^*| = a^* = \frac{2}{\sqrt{3}} \frac{1}{a} \quad \vec{c}^* \parallel \vec{c} \quad |\vec{c}^*| = \frac{1}{c}$$

La relación

$$\frac{c^*}{a^*} = \frac{\sqrt{3}}{2} \frac{a}{c}$$

para la estructura hexagonal compacta ($c/a = 1.633$) vale ≈ 0.53 y por lo tanto c^* es aproximadamente igual a la mitad de a^* , Fig. II.25 (b).

El factor de estructura resulta de acuerdo a (II.45)

$$F_{hkl} = f \left[1 + e^{2\pi i \left(\frac{h}{3} + \frac{2k}{3} + \frac{1}{2} \right)} \right]$$

y el cuadrado de su módulo

$$|F_{hkl}|^2 = 4 f^2 \cos^2 \pi \left(\frac{h+2k}{3} + \frac{1}{2} \right) \quad (\text{II.50})$$

Las combinaciones de los índices (hkl) conducen a las siguientes reglas de selección

h+2k	1	$ F_{hkl} ^2$	
3n	impar	0	
3n	par	4f ²	
3n+1	impar	3f ²	(II.51)
3n+1	par	f ²	

y por lo tanto las reflexiones permitidas son del tipo

$$(100) \quad (002) \quad (101) \quad (102) \quad (110) \quad (103) \quad (200) \quad (112) \quad \dots$$

En cambio los índices

$$(111) \quad (113) \quad (221) \quad (223) \quad \dots$$

no aparecen. Estas reflexiones no permitidas por las reglas (II.51) deben tenerse en cuenta al efectuar cortes del espacio recíproco de la Fig. II.25 (b).

En la Fig. II.26 se muestra la geometría del diagrama de difracción de una lámina delgada hexagonal, cuando el haz electrónico incide según una dirección $\{001\}$ del cristal. El plano de la red recíproca que se hace visible es de tipo (001).

Si el haz incide según una dirección $\{120\}$, es decir perpendicular a los planos prismáticos de tipo 1 del cristal, el diagrama de difracción corresponde a los planos (120) de la red recíproca, Fig. II.27. En cambio si el haz incide según una dirección $\{100\}$, perpendicular a los planos prismáticos de tipo 2 del cristal, se hace visible en el diagrama de difracción el plano (100) del espacio recíproco, Fig. II.28. En la Fig. II.29 se muestran algunos diagramas obtenidos a partir de una lámina delgada de zirconio.

II.3.4.4 Estructura tipo diamante

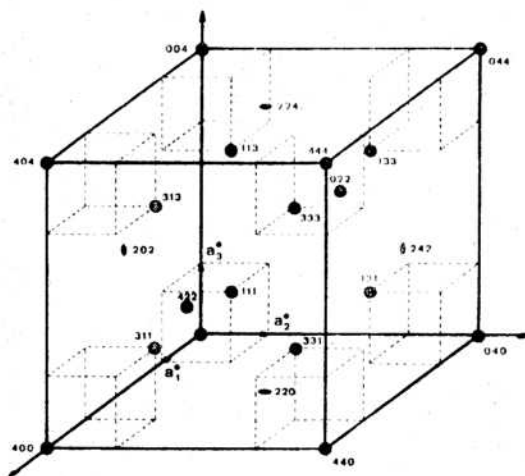
La estructura diamante, característica también del Si y Ge, es un caso particular de la estructura denominada Zinc-blenda ZnS. Esta se describe por una celda cúbica de arista a que contiene 8 átomos, ubicados en las posiciones

$$\begin{aligned} \text{S :} & \quad (000) \quad \left(\frac{1}{2} \frac{1}{2} 0\right) \quad \left(\frac{1}{2} 0 \frac{1}{2}\right) \quad \left(0 \frac{1}{2} \frac{1}{2}\right) \\ & \hspace{20em} \text{(II.52)} \\ \text{Zn:} & \quad \left(\frac{1}{4} \frac{1}{4} \frac{1}{4}\right) \quad \left(\frac{3}{4} \frac{3}{4} \frac{1}{4}\right) \quad \left(\frac{3}{4} \frac{1}{4} \frac{3}{4}\right) \quad \left(\frac{1}{4} \frac{3}{4} \frac{3}{4}\right) \end{aligned}$$

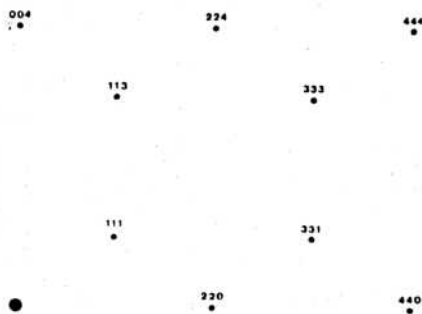
El cuadrado del módulo del factor de estructura, resulta de la forma

$$\left| F_{hkl} \right|^2 = K^2 16 \left[f_S^2 + f_{Zn}^2 + 2 f_S f_{Zn} \cos \frac{\pi}{2} (h+k+1) \right] \quad \text{(II.53)}$$

donde K es el factor de estructura dado por (II.46), que se anula para las reflexiones con índices (hkl) de distinta paridad. Para índices de igual paridad, el factor de estructura (II.53) toma los siguientes valores:



a



b

Fig. II.30. (a) Espacio recíproco de una estructura cúbica tipo diamante.

(b) Diagrama de difracción $(\bar{1}10)$.
Atención: Cristina O. de González.

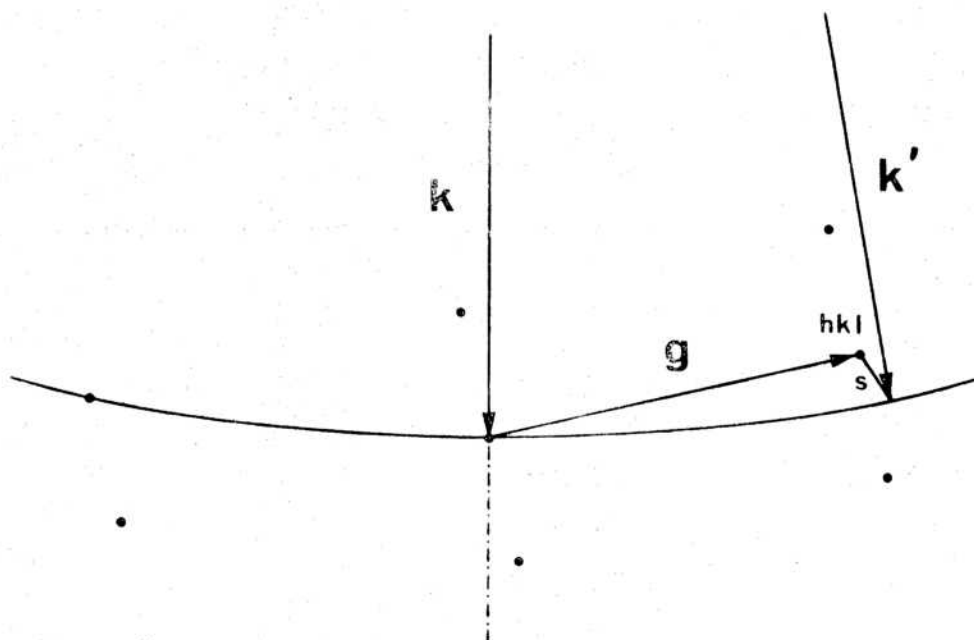


Fig. II.31. Definición del parámetro de desviación s , que indica el apartamiento del cristal respecto de la orientación de Bragg.

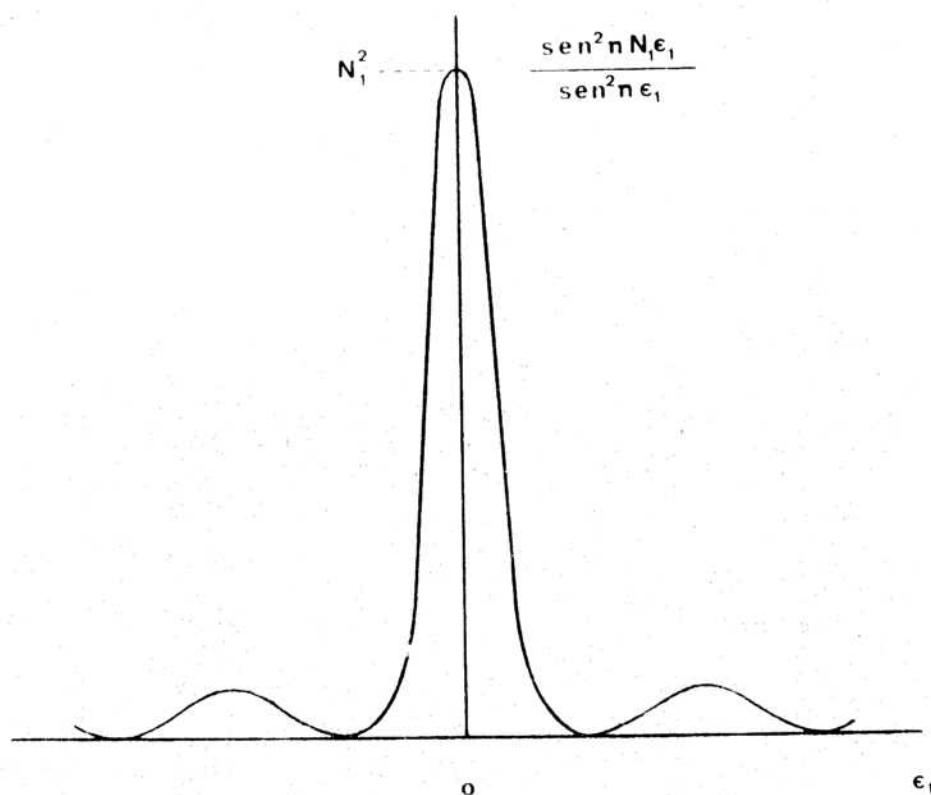


Fig. II.32. Variación de la intensidad difractada fuera de la posición de Bragg en función del parámetro de desviación ϵ_1 .

$$\begin{aligned}
 16 (f_S^2 + f_{Zn}^2) & \text{ para } (h + k + l) = \text{impar} & \text{a)} \\
 16 (f_S - f_{Zn})^2 & \text{ para } (h + k + l) = (2n+1) \times 2 & \text{b)} \quad (\text{II.54}) \\
 16 (f_S + f_{Zn})^2 & \text{ para } (h + k + l) = 2n \times 2 & \text{c)}
 \end{aligned}$$

La estructura diamante se describe por una celda cúbica que contiene 8 átomos idénticos (C, Si o Ge) ubicados en las posiciones dadas por (II.52). En este caso, además de las reflexiones no permitidas por la estructura fcc, cc. (II.47), también desaparecen aquéllas cuyos índices (hkl) verifican la condición II.54(b). Si se eliminan todas estas reflexiones prohibidas de una red cúbica de arista $a^* = 1/a$, el espacio recíproco de la estructura diamante se puede describir mediante la repetición de una celda cúbica de arista $4a^*$, tal como se indica en la Fig. II.30 (a). De esta manera, si el haz electrónico incide según una dirección $[\bar{1}10]$ de una lámina delgada de Si o Ge, el diagrama de difracción tiene la geometría indicada en la Fig. II.30 (b). Más detalles sobre esta estructura pueden consultarse en el libro de Andrews y col. (8).

II.3.5 Intensidad Difractada fuera de la Orientación de Bragg.

Calcularemos ahora, siempre dentro del formulismo de Laue, cual es la intensidad difractada por un cristal cuando las condiciones de difracción no se satisfacen exactamente, es decir cuando $\vec{k}' - \vec{k}$ no coincide con un vector de la red recíproca, sino que

$$\vec{k}' - \vec{k} = \vec{g} + \vec{s}$$

donde \vec{s} es el parámetro de desviación, o error de interferencia, Fig. II.31. En otras palabras, interesa conocer hasta que punto son estrictas las condiciones de Laue (o la ley de Bragg) y cual es el efecto de un pequeño apartamiento de la orientación exacta de difracción.

Expresando \vec{s} en la red recíproca por sus componentes $(e_1 e_2 e_3)$

$$\vec{s} = e_1 \vec{a}_1^* + e_2 \vec{a}_2^* + e_3 \vec{a}_3^*$$

y como

$$\vec{g}_{hkl} = h \vec{a}_1^* + k \vec{a}_2^* + l \vec{a}_3^*$$

entonces la cantidad Ψ_1 , dada por II.28 toma la forma

$$\Psi_1 = \pi \vec{a}_1 \cdot (\vec{k}' - \vec{k}) = \pi \vec{a}_1 \cdot (\vec{g} + \vec{s}) = \pi (h + e_1) \quad (\text{II.56})$$

Para obtener la función G^2 , ec. II.29, calculamos previamente

$$\begin{aligned} \text{sen}^2 N_1 \Psi_1 &= \text{sen}^2 \pi N_1 (h + e_1) = \text{sen}^2 \pi N_1 e_1 \\ \text{sen}^2 \Psi_1 &= \text{sen}^2 \pi (h + e_1) = \text{sen}^2 \pi e_1 \end{aligned}$$

Expresiones similares son válidas para Ψ_2 y Ψ_3 , ec. II.28. Entonces la función G^2 que expresa la intensidad difractada por un cristal que contiene $N_1 N_2 N_3$ centros difusores, resulta

$$G^2 = \frac{\text{sen}^2 \pi N_1 e_1}{\text{sen}^2 \pi e_1} \frac{\text{sen}^2 \pi N_2 e_2}{\text{sen}^2 \pi e_2} \frac{\text{sen}^2 \pi N_3 e_3}{\text{sen}^2 \pi e_3} \quad (\text{II.57})$$

En esta expresión no aparecen los valores explícitos de los índices (hkl) y por lo tanto cualquiera sea la variación de la intensidad difractada fuera de la posición de Bragg, ésta se repite alrededor de todos los nodos de la red recíproca. En la Fig. II.32 se representa uno de los tres factores de (II.57) en función de su correspondiente parámetro de desviación e. Para s próximo a cero, $e_1 = e_2 = e_3 \approx 0$, es decir, cerca de la orientación de Bragg

$$\frac{\text{sen}^2 \pi N_1 e_1}{\text{sen}^2 \pi e_1} \approx N_1^2 \frac{\text{sen}^2 \pi N_1 e_1}{(\pi N_1 e_1)^2} \quad (\text{II.58})$$

y para $s=0$ resulta

$$G^2 = N_1^2 N_2^2 N_3^2 = N^2$$

donde N es el número total de celdas que componen el cristal, recordar ec. II.31.

Para

$$e_1 = \frac{1}{N_1}, \frac{2}{N_1}, \dots$$

y expresiones análogas para e_2 y e_3 la función G^2 se anula. Entonces, tal como se ve en la Fig. II.32, la función G^2 presenta un pico central igual a N^2 , rodeado de máximos secundarios muy pequeños, iguales a

$$0.045 N^2, 0.016 N^2, \dots \text{ para } e_i = \frac{1.5}{N_i}, \frac{2.5}{N_i}, \dots \quad i = 1, 2, 3$$

Por lo tanto la intensidad difractada toma valores apreciables solamente cuando las tres funciones de (II.57) son apreciables, es decir que deben ser simultáneamente

$$|e_1| < \frac{1}{N_1} \quad |e_2| < \frac{1}{N_2} \quad |e_3| < \frac{1}{N_3} \quad (\text{II.59})$$

En el espacio recíproco la intensidad es entonces diferente de cero en zonas muy reducidas distantes

$$e_1 a_1^* \quad e_2 a_2^* \quad e_3 a_3^* \quad (\text{II.60})$$

unidades recíprocas alrededor de cada nodo (hkl). De acuerdo a (II.59), las distancias recíprocas (II.60) también se pueden expresar como

$$\frac{1}{N_1 a_1} \quad \frac{1}{N_2 a_2} \quad \frac{1}{N_3 a_3} \quad (\text{II.61})$$

Estas últimas corresponden a las inversas de las dimensiones L_1 , L_2 y L_3 del cristal considerado en las direcciones de los ejes \vec{a}_1 , \vec{a}_2 y \vec{a}_3 respectivamente. Por lo tanto para un cristal macroscópico y un haz incidente monocromático, las condiciones de difracción son sumamente selectivas, puesto que un pequeño apartamiento de la orientación exacta de Bragg coloca la esfera de Ewald fuera del pequeño dominio, ec. II.61, que rodea a cada nodo de la red recíproca.

En la sección siguiente se verá en que casos puede extenderse apreciablemente estos dominios de difracción.

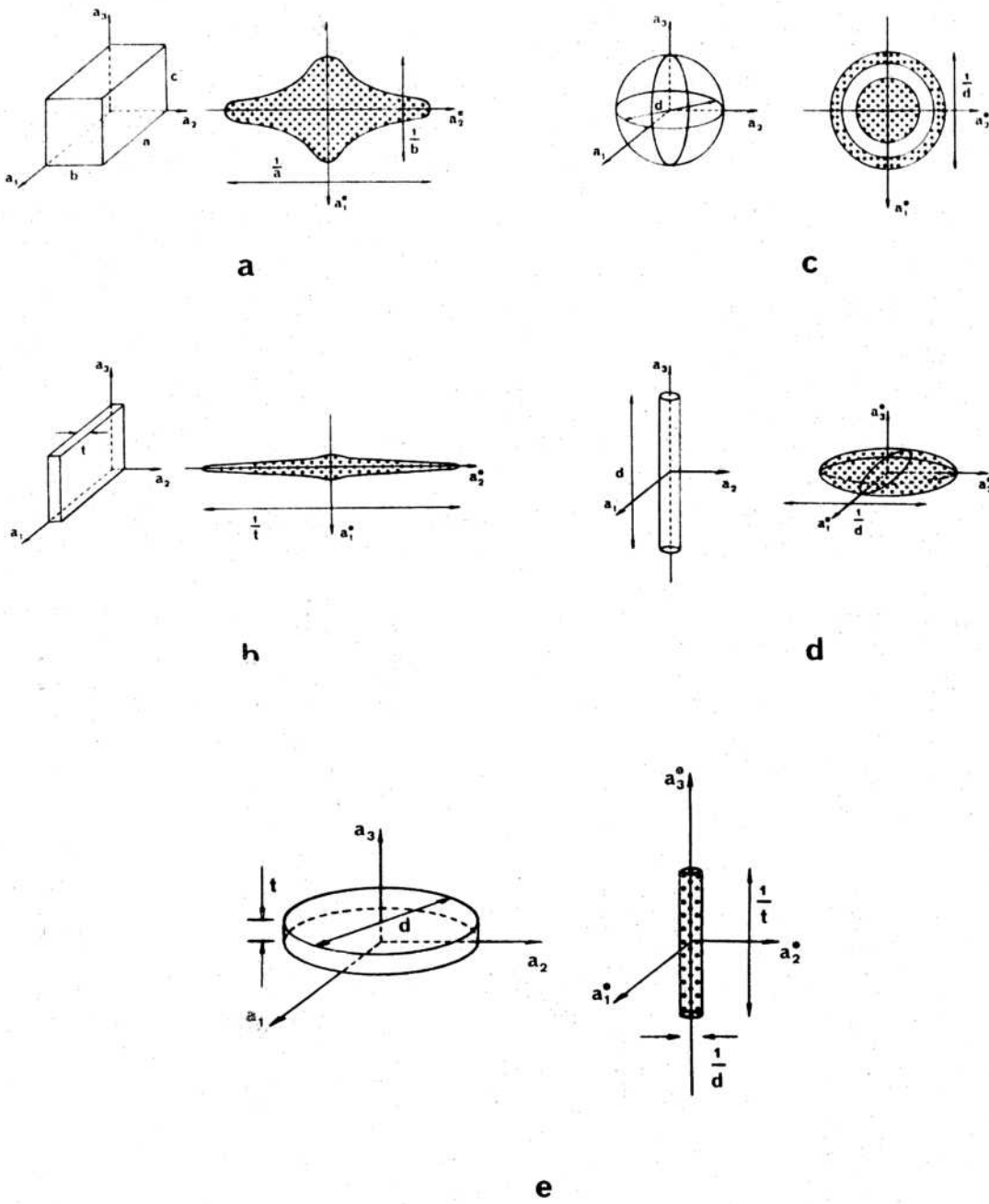


Fig. II.33. Ensamblamiento de los nodos en el espacio recíproco, según la geometría de la muestra. (a) paralelepípedo, (b) placa, (c) esfera, (d) aguja, (e) lámina delgada.

II.3.5.1 Ensanchamiento de los Nodos en el Espacio Recíproco.

Dominios de Difracción.

Según las expresiones (II.61) cada nodo de la red recíproca de un cristal está rodeado por un pequeño dominio de reflexión cuyas dimensiones según los tres ejes recíprocos \vec{a}_1^* , \vec{a}_2^* y \vec{a}_3^* son del orden de $1/L_1$, $1/L_2$, $1/L_3$, respectivamente. Por lo tanto, los dominios se extienden en las direcciones recíprocas paralelas a las dimensiones más cortas del cristal. Por ejemplo, si el cristal es delgado en la dirección del eje \vec{a}_3 , cada nodo se extiende según la dirección recíproca \vec{a}_3^* .

En la Fig. II.33 se muestra esquemáticamente la extensión de los dominios de difracción alrededor de cada nodo (hkl), para distintas formas macroscópicas de los cristales observados. Para una muestra con forma de paralelepípedo, de aristas a, b y c, paralelas a los ejes \vec{a}_1 , \vec{a}_2 y \vec{a}_3 respectivamente, cada nodo del espacio recíproco se ensancha de la manera indicada en la Fig. II.33 (a). Para una placa muy delgada de espesor t según la dirección \vec{a}_2 , caso de un precipitado laminar, el dominio de difracción se extiende preferentemente en la dirección recíproca \vec{a}_2^* , normal a la cara de la lámina, Fig. II.33 (b), ver también Fig. II.34. Un conjunto de precipitados esféricos de diámetro d, da origen a un ensanchamiento como el indicado en la Fig. II.33 (c). Para cristales en forma de cilindros delgados o agujas, extendidos según el eje \vec{a}_3 , los dominios toman la forma de discos perpendiculares al eje recíproco \vec{a}_3^* , Fig. II.33 (d).

La Fig. II.33 (e) corresponde a precipitados delgados de espesor t y diámetro d, normales al haz incidente, o también ser el caso general de una lámina delgada metálica sobre la cual incide un haz de electrones de sección d. Cada nodo (hkl) se extiende una longitud recíproca igual a $1/t$ en la dirección del haz incidente, y en consecuencia, existe un rango de orientaciones $\Delta \theta$ alrededor de la posición exacta de Bragg ($\vec{k}' - \vec{k} = \vec{g}_{hkl}$) para las cuales sigue existiendo intensidad difractada. En la Fig. II.35 se puede ver que

$$\Delta \theta \approx \frac{1/t}{g_{hkl}} = \frac{1}{g_{hkl} t} = \frac{d_{hkl}}{t} \quad (\text{II.62})$$

Por ejemplo, para $t = 300 \text{ \AA}$, $d_{hkl} = 1 \text{ \AA}$, es $\Delta\theta = 0.3 \times 10^{-2}$ radianes, que es del mismo orden de magnitud de los ángulos θ de Bragg. Por lo tanto no es un indicio exacto de la orientación de una lámina delgada, la observación de un diagrama de difracción dado, puesto que éste puede aparecer aún cuando se haya rotado la muestra en un ángulo $\Delta\theta$ alrededor de la posición exacta de Bragg. La aparición de las líneas de Kikuchi, ver sección siguiente, permite la orientación precisa de una muestra en un microscopio electrónico.

II.3.6 Líneas de Kikuchi

En el diagrama de difracción de una lámina delgada monocristalina aparecen ciertas distribuciones de líneas claras y oscuras, que pueden llegar a ser bastante complejas, llamadas líneas de Kikuchi. Un tratamiento riguroso acerca del origen y distribución de intensidades de las líneas de Kikuchi necesitaría de las conclusiones de la teoría dinámica de la difracción de electrones. Sin embargo, para la determinación de la orientación de una lámina cristalina, que es el caso que nos interesa aquí, no es necesario conocer la distribución precisa de las intensidades, sino solamente la configuración geométrica de las líneas. Esta se puede predecir a partir de un mecanismo basado solamente en la ley de Bragg, que fue propuesto originalmente por Kikuchi en 1928.

Los electrones monoenergéticos que inciden sobre una lámina delgada, además de dar origen a una serie de haces difractados de la misma energía (difusión elástica), pueden interaccionar con los átomos de la red cristalina dando origen a una radiación difusa cuya energía es ligeramente menor que la del haz incidente (difusión inelástica). La distribución angular de la radiación difusa es tal que

- es máxima en la dirección del haz transmitido
- decrece rápidamente con el ángulo 2θ de difusión

Estos procesos de difusión inelástica son los responsables del fondo difuso que aparece en todo diagrama de difracción de electrones y las líneas de Kikuchi son variaciones locales en la intensidad de

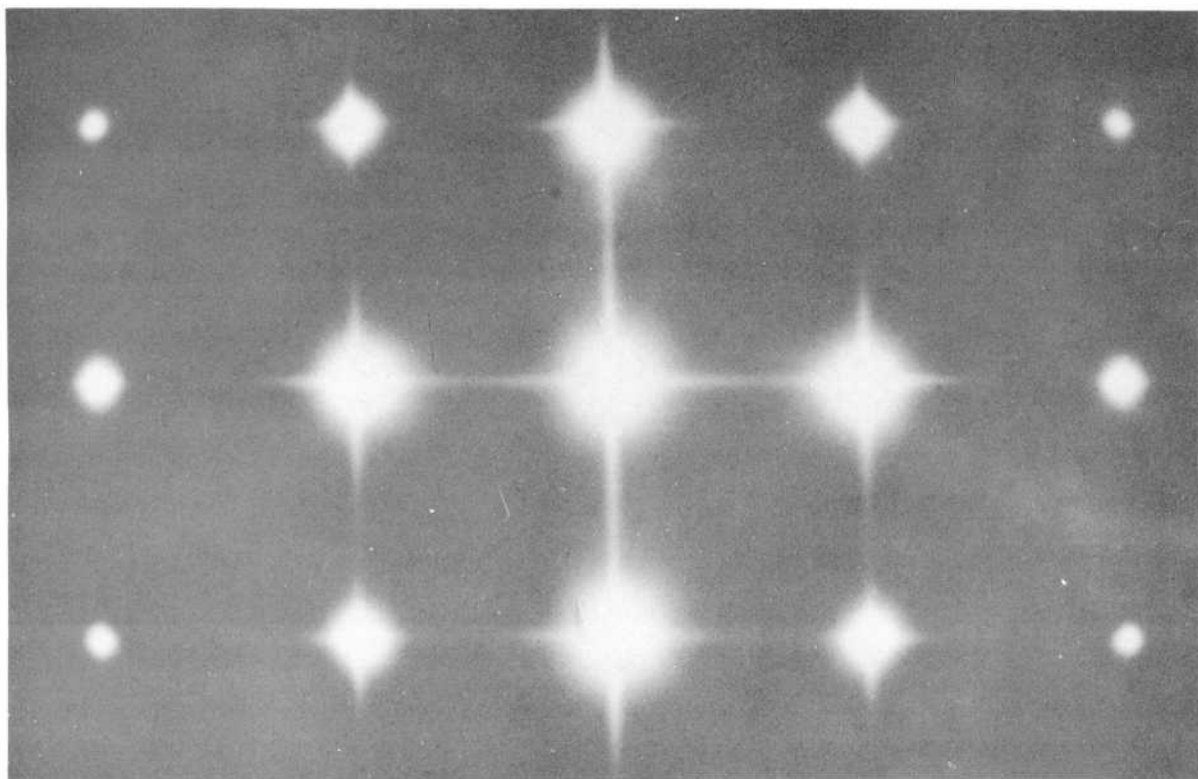


Fig. II.34. Ensanchamiento de los nodos en el espacio recíproco, debido a la presencia de precipitados laminares en una solución sobresaturada de Al-Cu.

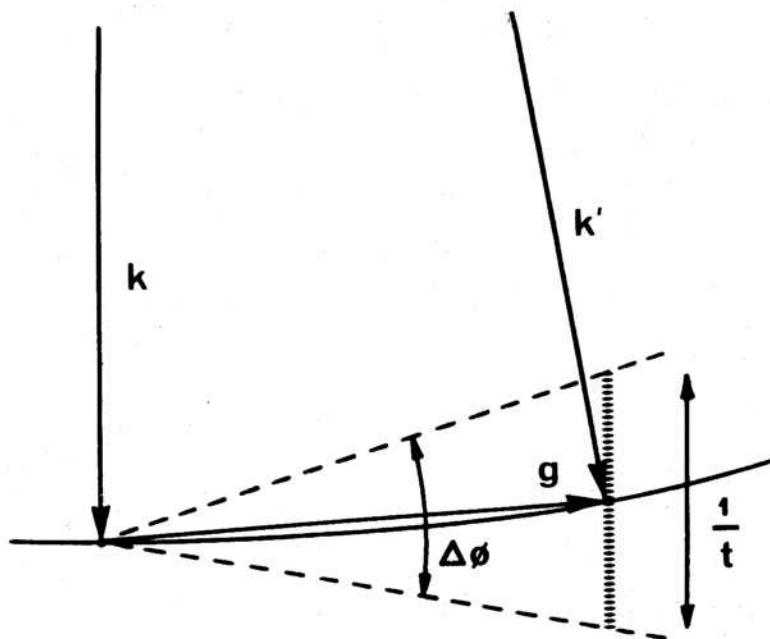


Fig. II.35. Efecto del ensanchamiento de los nodos en el espacio recíproco por una lámina delgada de espesor t . Cada nodo (hkl) se extiende una longitud recíproca igual a $1/t$ en la dirección del haz incidente. En consecuencia existe un rango de orientaciones $\Delta\phi$ alrededor de la posición exacta de Bragg, para las cuales sigue existiendo intensidad difractada.

este fondo.

Se puede ver en una construcción geométrica sencilla como se originan, Fig. II.36. Consideremos un haz de electrones que incide sobre una lámina delgada. Un punto como el P en la misma dará origen a un cono de radiación difusa. Algunos electrones difundidos dentro del cono podrán incidir sobre una familia dada de planos cristalinos (hkl) bajo el ángulo θ dado por la ley de Bragg, y serán entonces difractados en una dirección PQ. Por otro lado la radiación difundida según una dirección como la PQ también incidirá sobre la misma familia de planos (hkl) bajo el mismo ángulo θ de Bragg, y dará origen a un haz difractado según una dirección PR. Ahora bien, la cantidad de electrones difundidos inelásticamente por el punto P es mayor en la dirección PQ que en la dirección PR. Por lo tanto las reflexiones de Bragg mencionadas hacen que más electrones se pierdan de la dirección PQ hacia la PR, que los que vuelven a la dirección PQ a expensas de los perdidos en la dirección PR. El fondo continuo del diagrama se ve alterado de tal manera que existe un aumento de la intensidad según la dirección PR, y una disminución en la dirección PQ. El lugar geométrico de todas las direcciones posibles en las cuales puede producirse la difracción de la radiación difusa por una familia dada de planos cristalinos (hkl) son dos conos de semi-apertura igual a $90^\circ - \theta$. La intersección de estos conos con una pantalla suficientemente alejada de la muestra, perpendicular al haz incidente, es por lo tanto un par de hipérbolas. Dado que para electrones de 80 o 100 kV, los ángulos θ de Bragg son generalmente muy pequeños, del orden de 0.5° a 1° ; las hipérbolas se pueden considerar como un par de líneas paralelas entre sí. Estas constituyen precisamente un par de líneas (hkl) de Kikuchi. La línea de intensidad mayor que el fondo difuso se denomina "por exceso" mientras que la otra es la línea "por defecto". Pares de líneas similares pueden ser originados por las otras familias de planos del cristal. Así, por el mecanismo mencionado, se pueden producir simultáneamente varios conjuntos de pares de líneas, que pueden llegar a formar diagramas bastante complejos. En todos los casos la línea "por exceso" es la que está más alejada del haz directo. Se puede ver también que la separación angular entre cada par de líneas es 2θ , y que éstas están situadas simétricamente respecto de la intersección imaginaria de la familia de planos cristalinos con la pantalla de observación, Fig. II.36.

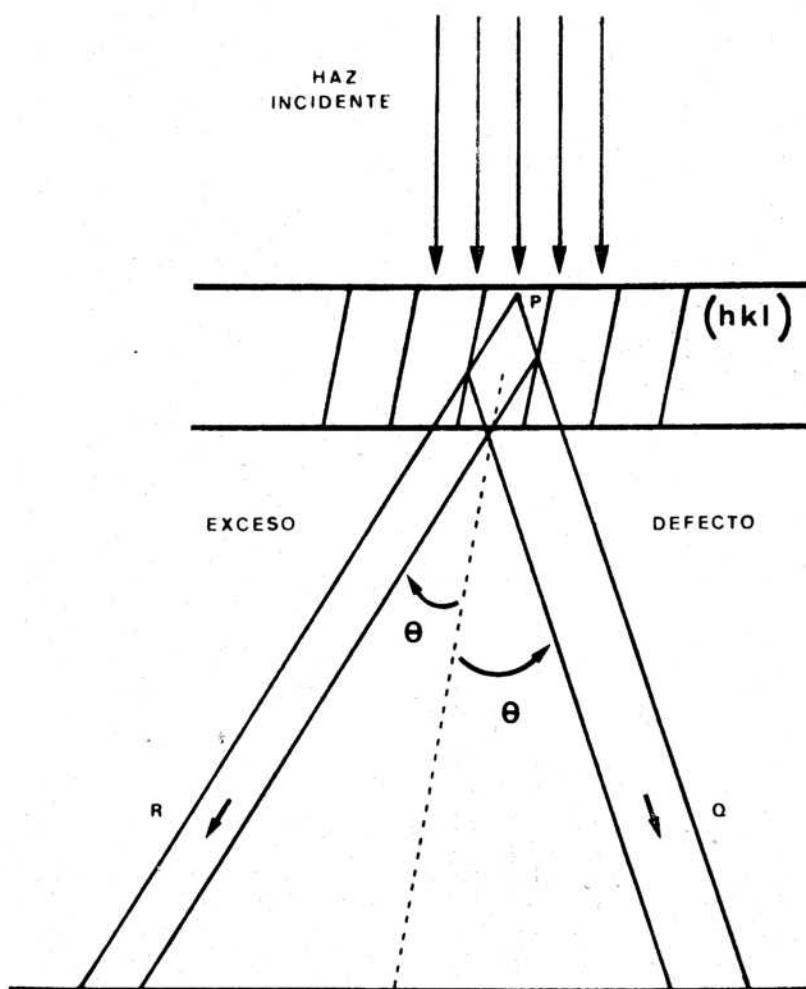


Fig. II.36. Formación de un par de líneas de Kikuchi. Un punto P de la muestra cristalina da origen a un cono de radiación difusa. Algunos electrones del cono inciden sobre la familia de planos (hkl) bajo el ángulo θ de Bragg y son difractados en las direcciones PQ y PR. Como la cantidad de electrones difundidos por el punto P es mayor en la dirección PQ que en la dirección PR, más electrones se pierden de la dirección PQ hacia la PR, que los que vuelven a la dirección PQ a expensas de los perdidos en la dirección PR. El fondo continuo del diagrama de difracción se ve alterado así de manera que existe un aumento de la intensidad según la dirección PR (línea por exceso) y una disminución en la dirección PQ (línea por defecto).

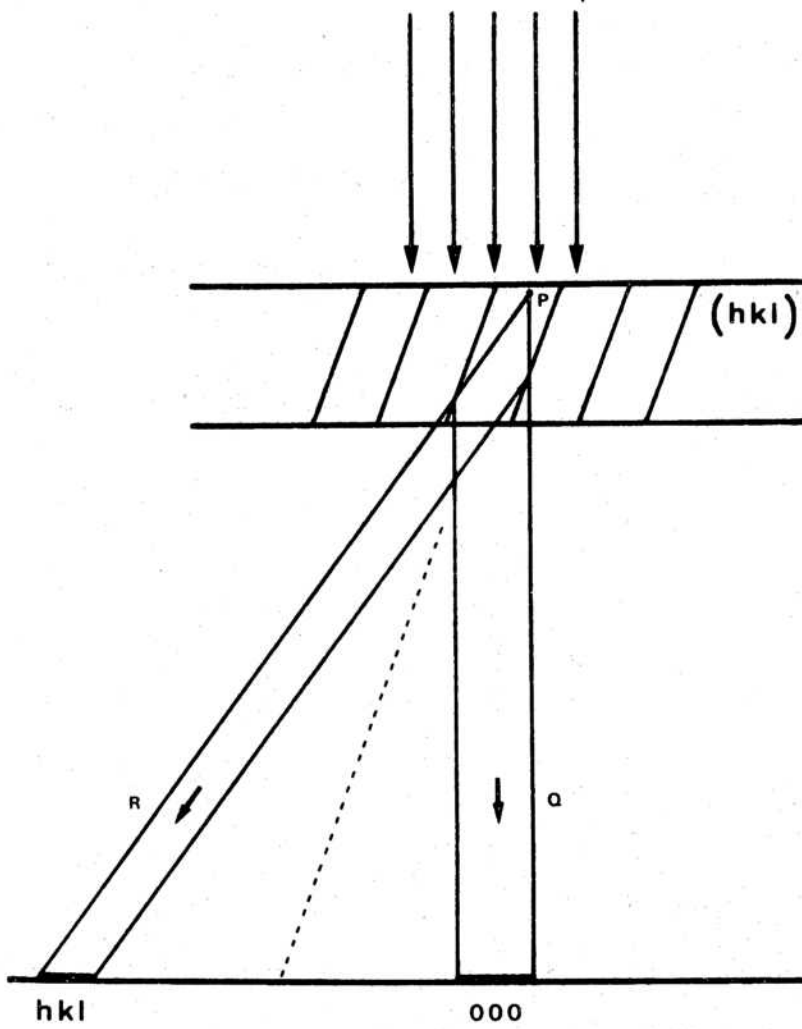


Fig. II.37. Orientación relativa entre un par de líneas de Kikuchi (hkl) y las manchas de difracción correspondientes, cuando el cristal está orientado en la posición exacta de Bragg. La línea por exceso pasa exactamente por el haz (hkl) mientras que la línea por defecto es coincidente con el haz transmitido (000).

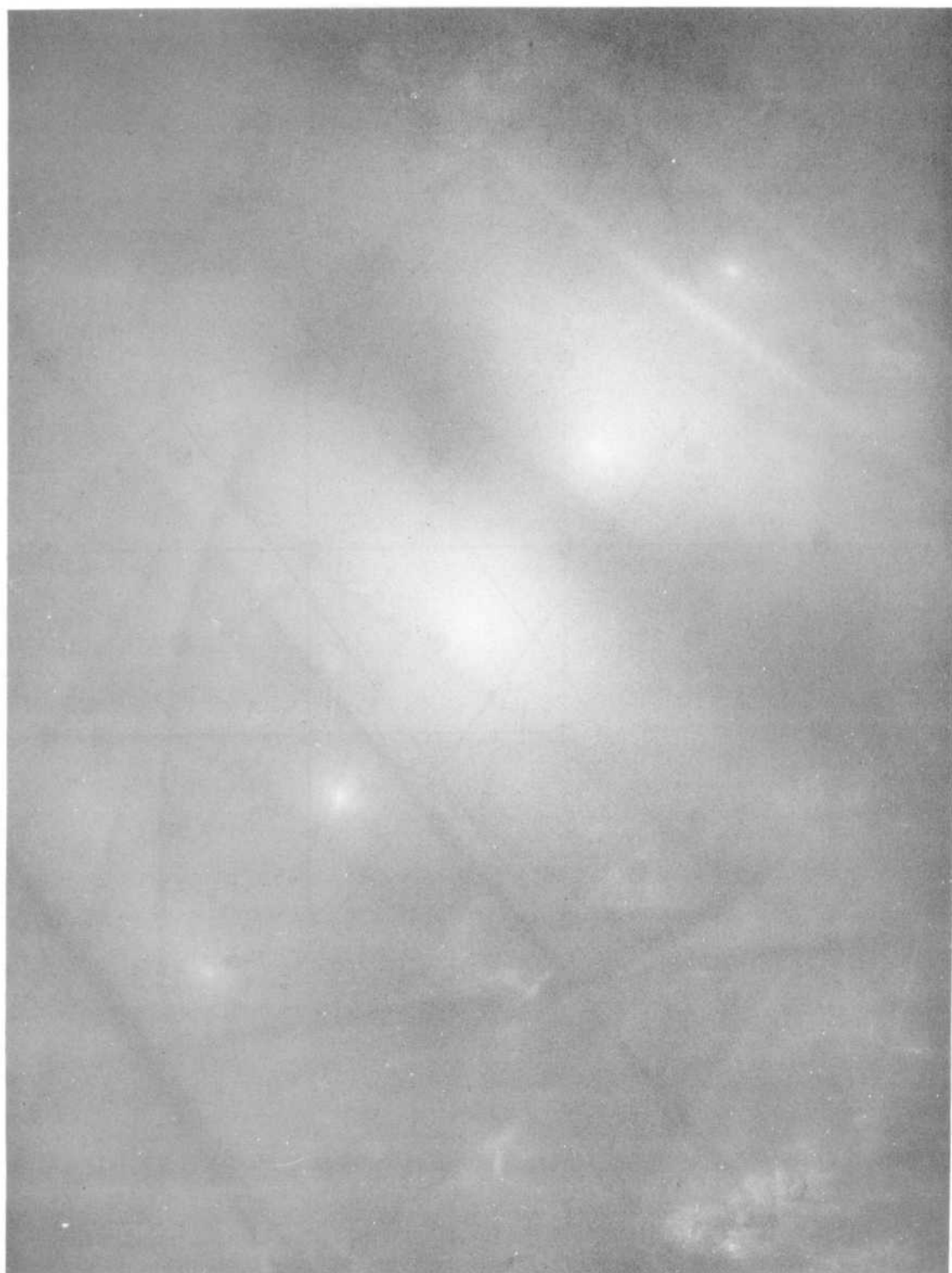


Fig. II.38. Líneas de Kikuchi correspondiente a una lámina delgada de cobre.

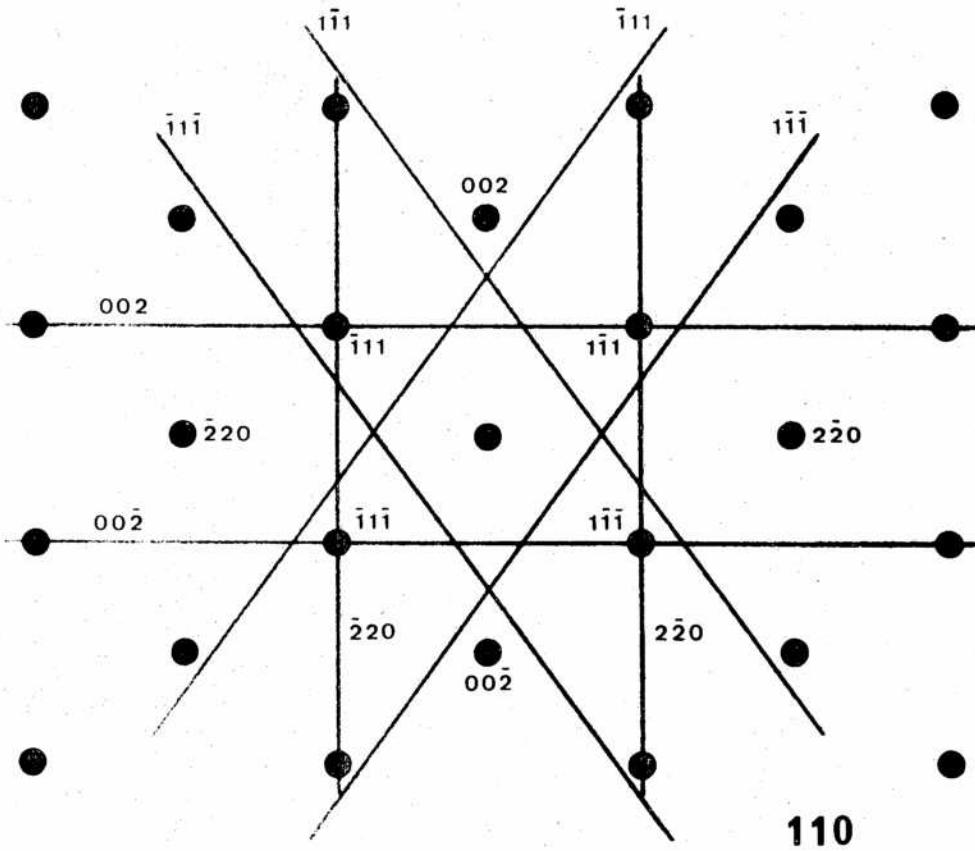


Fig. II.39. Construcción de las líneas de Kikuchi asociadas a una orientación dada. Se une el nodo origen (000) con cada uno de los nodos (hkl) del diagrama de difracción correspondiente, y por el punto medio de estos segmentos se traza una línea perpendicular. Cada una de estas líneas se indexa con los índices (hkl) del nodo a partir del cual fue obtenida. El conjunto de pares de líneas (hkl) y ($\bar{h} \bar{k} \bar{l}$) corresponde a las líneas de Kikuchi que aparecen en la orientación mencionada.

Al variar la inclinación de la muestra respecto del haz incidente el comportamiento de las líneas de Kikuchi es diferente al del diagrama de difracción. Como se ha visto en la sección anterior, este último puede aparecer aún cuando se rota la lámina delgada en un ángulo $\Delta\theta$ fuera de la posición exacta de Bragg, y por lo tanto para rotaciones pequeñas, las manchas de difracción permanecen fijas en la pantalla de observación. En cambio las líneas de Kikuchi se mueven como estuvieran rígidamente adheridas al cristal, y su posición respecto del diagrama de difracción es por lo tanto un índice muy preciso, ($\pm 0.1^\circ$) de la orientación de la lámina delgada respecto del haz incidente.

A título de ejemplo veremos cuál es la relación entre un par de líneas de Kikuchi originado por una familia de planos (hkl) y el haz de difracción (hkl) cuando el cristal está orientado en la posición exacta de Bragg correspondiente a esa familia. En este caso existe un fuerte haz difractado en una dirección que forma un ángulo 2θ con el haz transmitido, Fig. II.37. En la misma figura se puede ver que en esta orientación particular del cristal, la línea por exceso pasa exactamente por la mancha de difracción (hkl) mientras que la línea por defecto es coincidente con el haz transmitido (000). Esta es la manera en la cual se orienta una lámina delgada en la posición exacta de Bragg en una experiencia de microscopía electrónica.

Un pequeño giro de la muestra fuera de esta posición traerá como consecuencia un pequeño apartamiento de las líneas de Kikuchi respecto de las dos manchas de difracción. En particular si el giro se realiza de tal manera que el ángulo de incidencia del haz respecto de los planos (hkl) sea mayor que el ángulo θ de Bragg, el par de líneas se desplazará ligeramente hacia la izquierda de la posición indicada en la Fig. II.37. En la Fig. II.38 se muestra un diagrama de difracción de una lámina delgada de cobre, en el que aparecen varios pares de líneas de Kikuchi.

II.3.6.1 Construcción de las líneas de Kikuchi asociadas a un diagrama de difracción

Las líneas de Kikuchi guardan una relación directa con la estructura cristalina de la muestra, puesto que cada par se origina en una

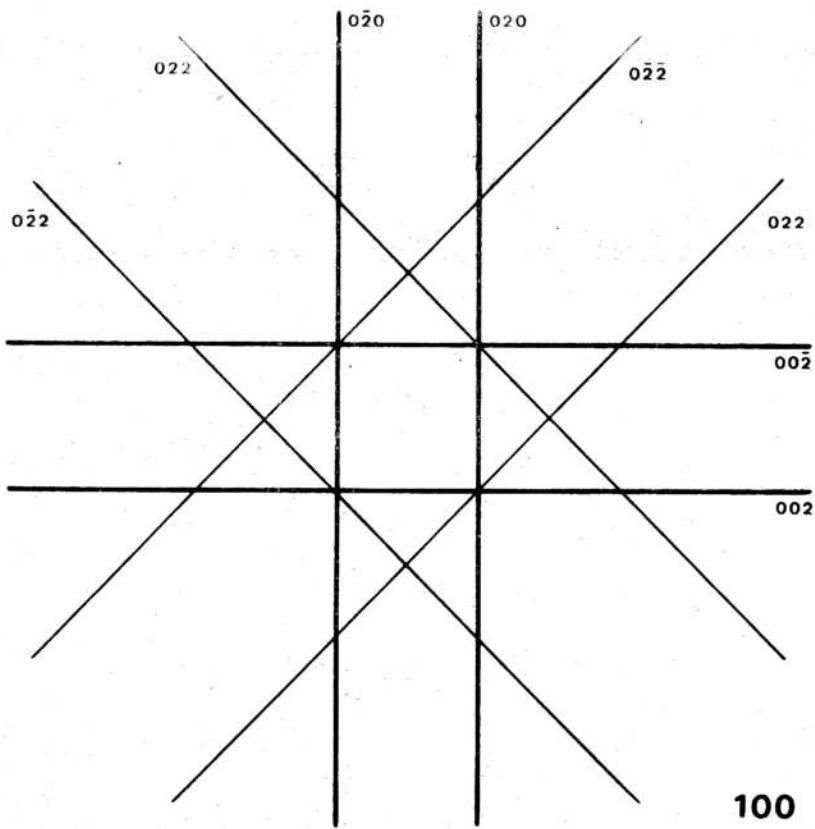


Fig. II.40. Líneas de Kikuchi asociadas a la orientación (100) de una lámina delgada de una muestra de estructura cúbica de caras centradas.

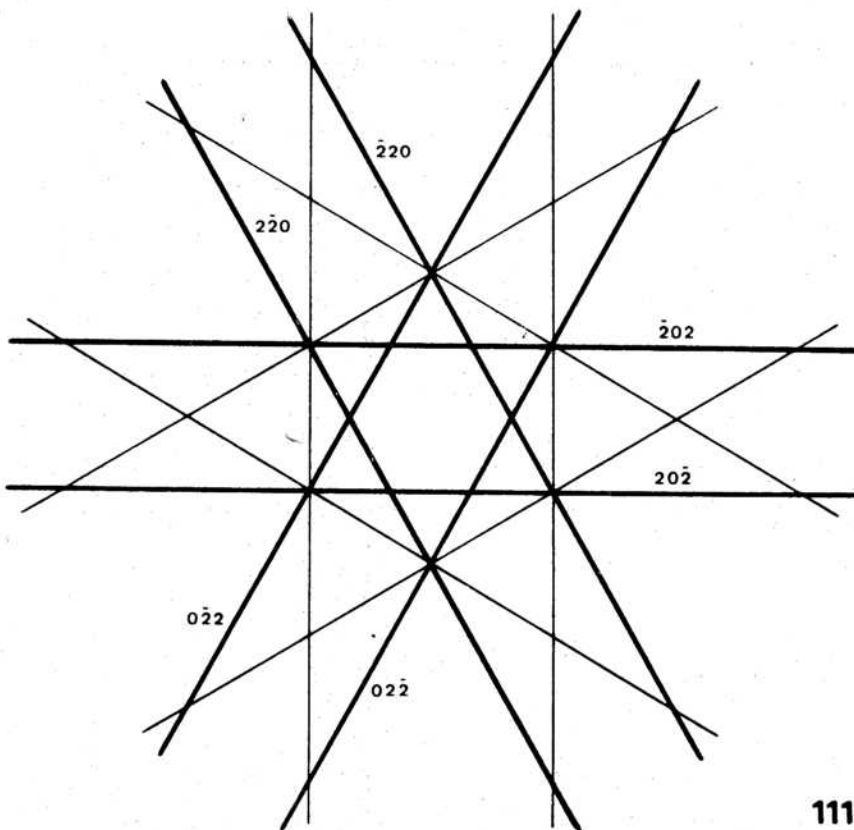


Fig. II.41. Líneas de Kikuchi asociadas a la orientación (111) de una lámina delgada de una muestra de estructura cúbica de caras centradas.

familia bien determinada de planos cristalinos. Las principales líneas que aparecen en una orientación dada pueden obtenerse a partir del diagrama de difracción correspondiente.

Supongamos, por ejemplo, una lámina delgada de estructura A_1 (fcc), y que el haz electrónico incide según una dirección $[110]$. El diagrama de difracción es un plano (110) de la red recíproca, Fig. II.39. La construcción de las líneas se realiza de la siguiente manera. Se une el nodo origen (000) con los nodos (hkl) del diagrama, y por el punto medio de estos segmentos se traza una línea perpendicular. Cada una de estas líneas se indexa con los índices (hkl) del nodo a partir del cual fue obtenida. El conjunto de pares de líneas (hkl) y $(\bar{h}\bar{k}\bar{l})$ corresponde a las líneas de Kikuchi que aparecen en la orientación mencionada.

Al rotar ligeramente la muestra fuera de la orientación inicial, todo el conjunto rota solidariamente. La posición relativa de las líneas se mantiene, la distancia angular entre cada par es siempre igual al ángulo de Bragg $2\theta_{hkl}$, y solamente varía la relación del conjunto respecto del diagrama de difracción. En las Figs. II.40 y II.41 se muestra esquemáticamente la geometría de las líneas de Kikuchi asociadas a las orientaciones $[100]$ y $[111]$ respectivamente, de una muestra cúbica de caras centradas.

II.3.6.2. Medición del parámetro de desviación s

La posición relativa de las líneas de Kikuchi respecto del diagrama de difracción permite determinar la orientación de una lámina delgada cristalina. En particular, ya se ha mencionado que si una familia de planos (hkl) está orientada en la posición de difracción, la línea por exceso pasa por el nodo (hkl), y la línea por defecto $(\bar{h}\bar{k}\bar{l})$ pasa por el nodo origen.

Si la lámina se aparta en un cierto ángulo $d(2\theta)$ respecto de la posición de Bragg, Fig. II.31, entonces

$$\vec{k}' - \vec{k} = \vec{g}_{hkl} + \vec{s} \quad (\text{II.63})$$

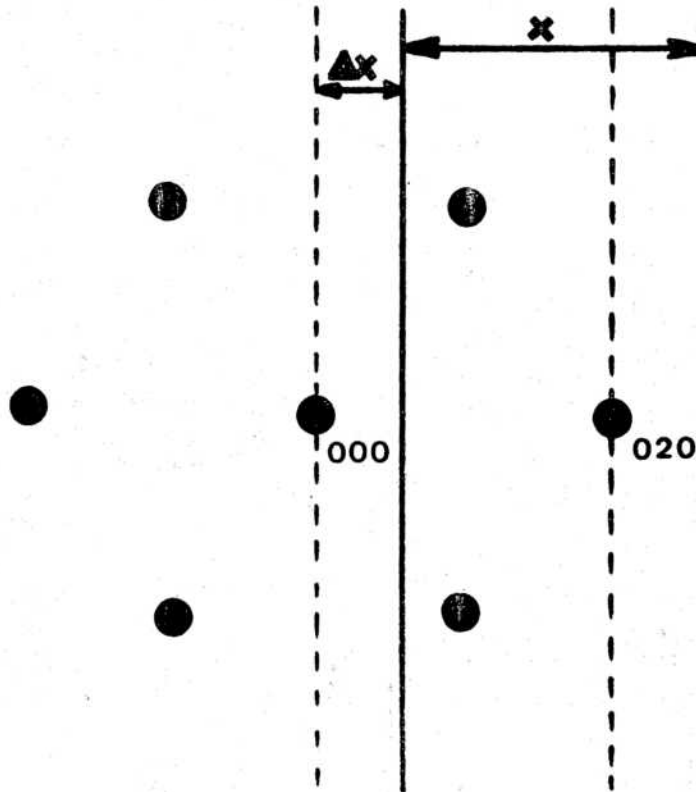


Fig. II.42. Medición del parámetro de desviación s , a partir de la posición relativa de las líneas de Kikuchi respecto del diagrama de difracción.

y el par de líneas de Kikuchi se desplaza sobre la pantalla de observación una cierta distancia dx , Fig. II.42, que depende de la magnitud de s . Por convención, el signo de s se considera positivo si el vector \vec{s} está contenido dentro de la esfera de Ewald. En el caso de la Fig. II.42, el par de líneas se aleja del nodo origen (000), y dx se considera también positivo. Si es L la longitud de la lámina de difracción (distancia entre la muestra y la pantalla de observación)

$$x = L \cdot 2\theta \quad dx = L \cdot d(2\theta)$$

Según la Fig. II.42(a)

$$s = g_{hkl} \cdot d(2\theta)$$

Reemplazando

$$s = g_{hkl} \frac{dx}{L} = \frac{1}{d_{hkl}} \frac{dx}{L}$$

Según la ley de Bragg

$$2\theta = \frac{\lambda}{d_{hkl}} \quad \frac{x}{L} = \frac{\lambda}{d_{hkl}}$$

y finalmente

$$s = \frac{\lambda}{d_{hkl}^2} \frac{dx}{x} \quad (II.64)$$

Por ejemplo, suponiendo que el diagrama de la Fig. II.42 fue obtenido a 100 kV, a partir de una lámina delgada de cobre,

$$\lambda = 0.037 \text{ \AA} \quad d_{020}(\text{Cu}) = 1.80 \text{ \AA}$$

$$x = 35 \text{ mm} \quad dx = 10 \text{ mm}$$

entonces

$$s = 0.32 \times 10^{-2} \text{ \AA}^{-1}$$

Además, como para la reflexión (020) del Cu, es $2\theta = 1.03^\circ$, se puede calcular también el ángulo de desviación $d(2\theta)$ respecto de la orientación exacta de Bragg

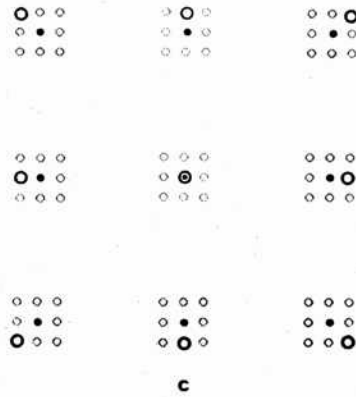
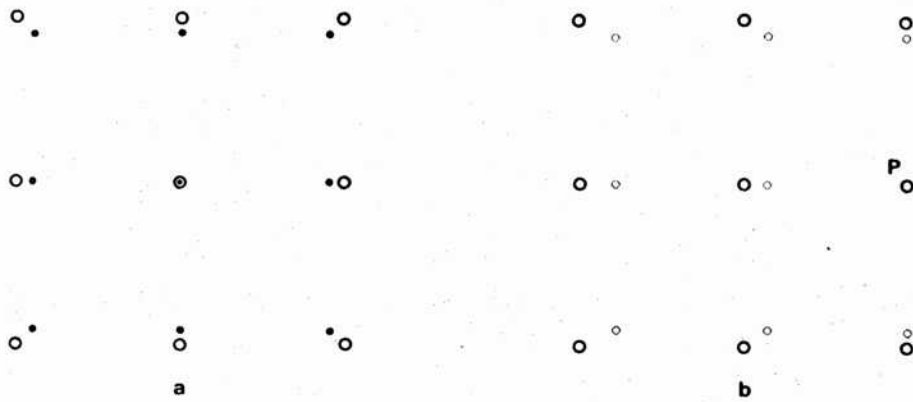


Fig. II.43. Doble difracción de Bragg a través de una lámina delgada de la aleación Al-Mg-Si.

- (a) Diagrama de la matriz \circ . Diagrama de los precipitados de Mg_2Si . \bullet
 (b) Haces doblemente difractados, originados por la reflexión P. \circ
 (c) Diagrama completo, considerando todas las posibilidades de doble difracción.

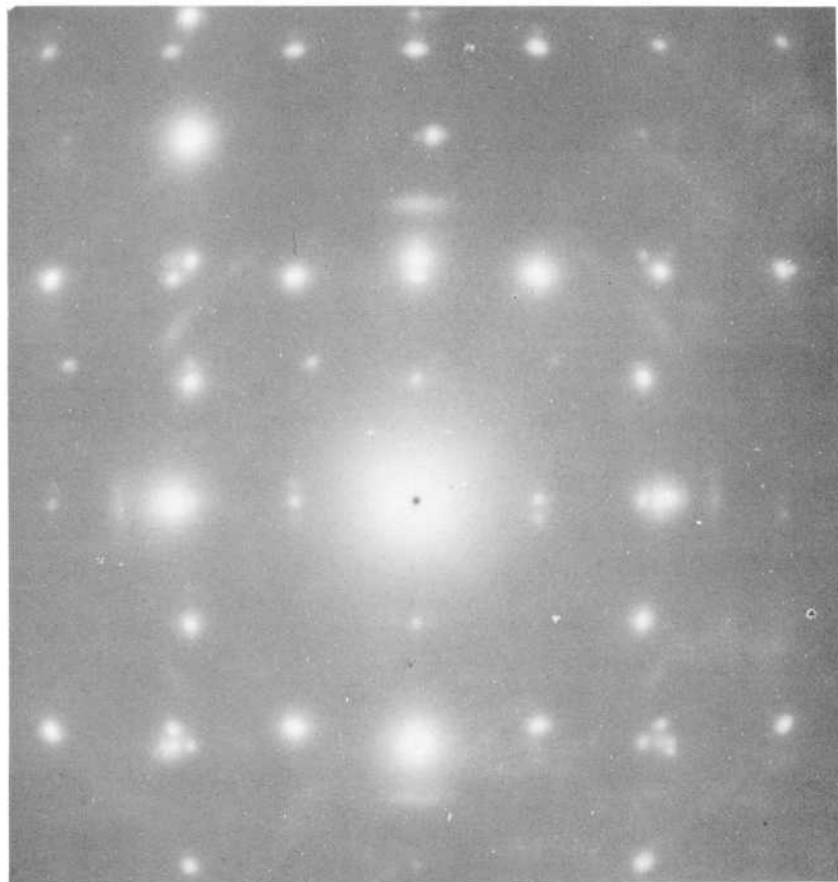


Fig. II.44. Doble difracción a través de una lámina delgada de una aleación Mg-Li-Al, fase β bcc, con precipitados laminares de fase θ MgLi_2Al , en orientación (100). Atención: Ana Alamo.

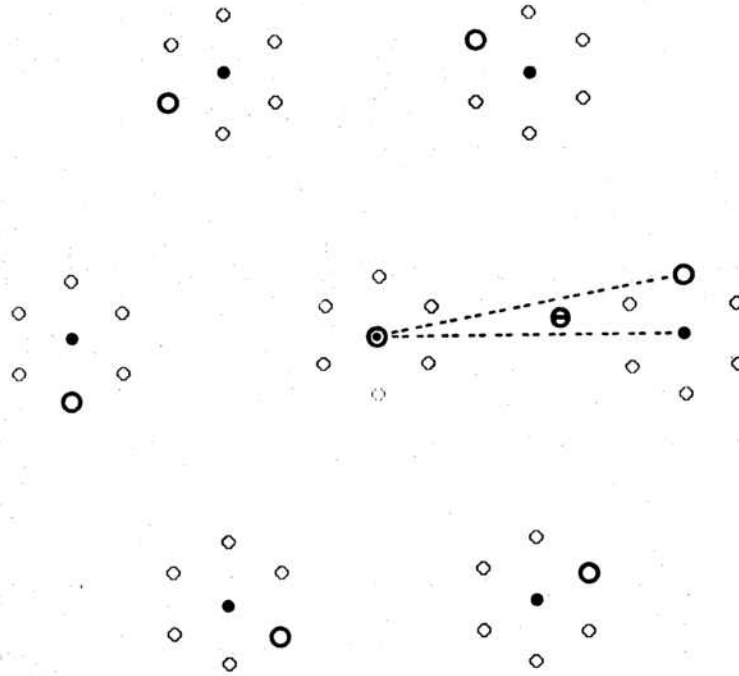


Fig. II.45. Doble difracción de Bragg a través de dos láminas de cristales idénticos, rotadas entre sí en un ángulo θ .
 (•) Cristal superior - (O) Cristal inferior
 (◊) Haces originados por doble difracción

$$d(2\theta) = \frac{dx}{x} \quad 2\theta = 0.3^\circ$$

II.3.7. Doble difracción de Bragg

En ciertas condiciones un haz difractado por una zona de una muestra puede dar origen a su vez a uno o más haces difractados. Por ejemplo, en una lámina delgada compuesta por dos fases distintas, un haz difractado por una de ellas puede ser difractado por los cristales de la otra.

Veamos, para fijar ideas, el caso particular de una lámina de aleación Al-Mg-Si orientada de manera que el haz incide según la dirección $[001]$ de la matriz de Al. Los precipitados de la segunda fase Mg_2Si son en esta orientación placas delgadas paralelas a las superficies de la lámina. En la Fig. II.43(a) se muestra esquemáticamente el diagrama de difracción de la matriz, y el correspondiente a las placas de Mg_2Si . Un haz difractado por la matriz, P en la Fig. II.43(b), puede incidir sobre la segunda fase y dar origen a su vez a varios haces. Otro tanto puede suceder con cada uno de los haces difractados originalmente por la matriz de Al. Considerando todas las posibilidades de doble difracción se obtiene un diagrama como el indicado en la fig. II.43(c). Este tipo de desdoblamiento múltiple de los diagramas de difracción también se observan en láminas delgadas metálicas recubiertas por algún tipo de óxido, o después de la evaporación de otro metal sobre su superficie. En la Fig. II.44 se muestra el efecto de doble difracción en una lámina delgada de la fase β bcc de una aleación Mg-Li-Al, en orientación (001), que contiene precipitados laminares de la fase θ $MgLi_2Al$.

El fenómeno de doble difracción también puede ocurrir en una muestra compuesta por dos cristales idénticos superpuestos, rotados en un pequeño ángulo. En la Fig. II.45 se muestra el diagrama de difracción de dos láminas delgadas que pueden ser, por ejemplo, dos láminas de Au en la orientación (111), rotadas ligeramente entre sí. Un haz difractado por la lámina superior puede volver a ser difractado por la lámina inferior. Como esta posibilidad se presenta para todos los haces difractados por la primer lámina, se observa finalmente un diagrama compuesto como el de la Fig. II.45.

REFERENCIAS

- 1 A. Howie, P.B. Hirsch, R.B. Nicholson, D.W. Pashly, M.J. Whelan, "Electron Microscopy of Thin Crystals", Butterworths, 1965.
- 2 C.J. Davisson y L.H. Germer, Nature, 119, 558 (1927).
- 3 G.P. Thomson y A. Reid, Nature, 119, 890 (1927).
- 4 A. Guinier, "Theorie et Technique de la Radiocristallographie", Dunod, 1956.
- 5 A.F. Bonfiglioli, "Cristalografía y Difracción de Rayos X", PMM/A-1, Departamento de Metalurgia, CNEA, Buenos Aires, 1970.
- 6 A.F. Bonfiglioli, M. Ipohorski, R.J. Acuña, "Elementos de Cristalografía y Difracción de Rayos X", a publicarse.
- 7 A.A. Pochettino y M. Ipohorski, "Problemas Típicos de Microscopía Electrónica", PMM/A-157, Departamento de Metalurgia, CNEA, Buenos Aires, 1974.
- 8 K.W. Andrews, D.J. Dyson y S.R. Keown, "Interpretation of Electron Diffraction Patterns", Adam Hilger Ltd, London, 1971.

CAPITULO III

CONTRASTE DE DEFECTOS CRISTALINOS EN LA APROXIMACION CINEMATICA

III.1 Aproximación de la columna. Aproximación de dos haces.

En el capítulo anterior se ha visto que si un cristal estaba orientado cerca de la posición de Bragg, ec. II.36, existía un fuerte haz difractado (hkl) , formando un cierto ángulo $2\theta_{hkl} \approx 10^{-2}$ radianes, con el haz incidente. Como las muestras observadas en microscopía electrónica son láminas muy delgadas ($t \approx 1000 \text{ \AA}$) la separación entre el haz incidente y el haz difractado en la superficie inferior de la lámina, Fig. III.1, es de unos pocos \AA , valor comparable con las distancias interatómicas. Además, como la aproximación cinemática, sección II.1, supone que el haz difractado no interacciona ni con el cristal ni con el haz transmitido, para calcular la imagen electrónica formada por un haz difractado (campo oscuro) es justificable considerar la lámina delgada como un agregado de columnas monoatómicas paralelas entre sí. Según esta aproximación, los efectos de difracción de una columna son independientes de sus vecinas, y la imagen final se puede obtener agregando la contribución de las columnas individuales que componen una muestra dada. En una lámina monocristalina de espesor uniforme todas las columnas son equivalentes, pero no sucede lo mismo en una lámina que contiene algún defecto cristalino, como se verá más adelante.

La llamada aproximación de dos haces supone además que cada columna de la lámina es atravesada por dos haces, el transmitido de intensidad I_T , y un único haz difractado de intensidad I_g , verificándose siempre que

$$I_T + I_g = 1 \quad (\text{III.1})$$

La intensidad transmitida (imagen de campo claro) resulta complementaria de la imagen de campo oscuro, y el valor de I_T correspondiente a una columna dada se calcula inmediatamente a partir de (III.1). Aunque normalmente la probabilidad de excitar simultáneamente varias reflexiones es muy alta, sección II.3.3., siempre es posible inclinar el cristal, por ejemplo fuera de las orientaciones de alta simetría, de tal manera que solo uno de los haces difractados (hkl) tenga intensidad apreciable. Los cálculos de contraste de las secciones siguientes corresponden a esta última posibilidad.

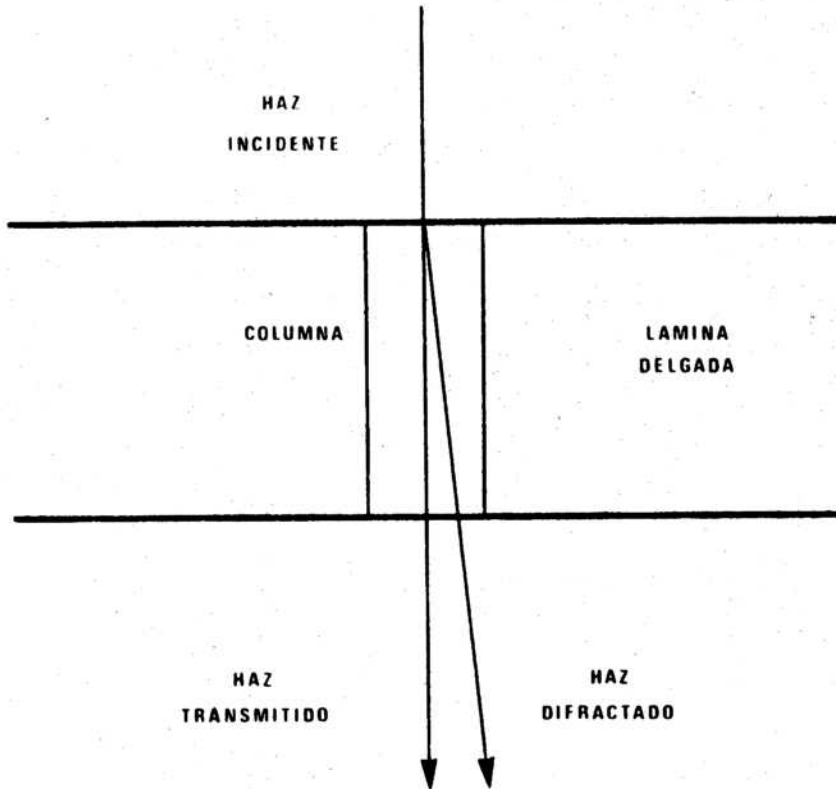


Fig. III.1. Aproximación de la columna. La aproximación cinemática supone que el haz difractado no vuelve a interactuar con el cristal, ni con el haz transmitido. Por lo tanto es justificable considerar la lámina delgada como un agregado de columnas monoatómicas paralelas entre sí. Los efectos de difracción de una columna dada son independientes de sus vecinas, y la imagen final se obtiene superponiendo las contribuciones de las columnas individuales que componen la muestra.

III.2 Contraste de una Lámina Cristalina Perfecta

Calcularemos a continuación el valor de la intensidad difractada por una columna de una lámina cristalina sin defectos, en una orientación próxima a las condiciones de difracción por una familia de planos (hkl). Como la intensidad difractada solo es apreciable en las vecindades del nodo recíproco (hkl), el parámetro de desviación s es siempre pequeño, y de acuerdo al esquema de la Fig. II.31, se puede suponer que

$$\vec{s} = \epsilon_3 \vec{a}_3^* \quad \epsilon_1 = \epsilon_2 \approx 0 \quad (\text{III.2})$$

Si el haz electrónico incide según la dirección del eje \vec{a}_3 . De acuerdo a (II.58) y (III.2), la intensidad difractada está dada por

$$I_g = \frac{f^2}{r^2} N_1^2 N_2^2 \frac{\text{sen}^2 \pi N_3 \epsilon_3}{\text{sen}^2 \pi \epsilon_3} \quad (\text{III.3})$$

Como

$$|\vec{s}| = s = \epsilon_3 \frac{1}{a_3} \quad \epsilon_3 = s a_3$$

y además

$$\text{sen}^2 \pi \epsilon_3 \approx (\pi \epsilon_3)^2$$

$$N = N_1 N_2 N_3$$

$$t = N_3 a_3 = \text{espesor de la lámina}$$

resulta finalmente

$$I_g = \frac{f^2}{r^2} N^2 \frac{\text{sen}^2 \pi s t}{(\pi s t)^2} \quad (\text{III.4})$$

III.2.1 Franjas de Igual Espesor e Igual Inclinación.

De acuerdo a la expresión (III.4) la intensidad difractada por una columna en una orientación dada es una función periódica del espesor t de la lámina, con un período igual a $\Delta t = 1/s$. Por otro lado, en una muestra de espesor constante, I_g es una función periódica del parámetro de

desviación s .

De esta manera, la imagen de campo oscuro de una lámina de espesor variable consiste en una serie de franjas claras y oscuras, Fig. III.2. El espesor de la lámina es constante a lo largo de cada una de estas franjas, denominadas de igual espesor. El espaciado entre franjas depende de la desviación de la posición exacta de Bragg, y la diferencia de espesores entre dos franjas contiguas del mismo signo, es igual a

$$\xi_g = \frac{1}{s} \quad (\text{III.5})$$

que se denomina distancia de extinción, correspondiente a la reflexión (hkl) . Aquí es necesario aclarar que la aproximación cinemática deja de tener validez en la orientación exacta de Bragg, cuando la intensidad del haz difractado es comparable a la del haz incidente. De acuerdo a (III.5) si $s \rightarrow 0$ o la distancia de extinción tiende a valores cada vez más grandes, hecho que no es confirmado por las experiencias. En realidad, una lámina delgada orientada en la posición de Bragg ($s = 0$) presenta franjas de igual espesor que corresponden a una distancia de extinción dada por

$$\xi(hkl) = \frac{n V_c \cos \theta_{hkl}}{\lambda F_{hkl}}$$

donde V_c es el volumen de la celda primitiva, θ_{hkl} el ángulo de Bragg, λ la longitud de onda del haz electrónico, y F_{hkl} el factor de estructura de la reflexión (hkl) . Como F_{hkl} decrece con el orden de la reflexión,

$\xi(hkl)$ es mayor para los índices (hkl) mayores (1).

En una lámina de espesor t constante, deformada de tal manera que el parámetro s varía de una columna a la siguiente, se observa en cambio otro sistema de franjas, denominadas de igual inclinación, o contornos de extinción, Fig. III.3. En campo oscuro, las líneas más intensas corresponden a zonas donde se verifica la ley de Bragg, pues la expresión (III.4) alcanza su valor máximo $f^2 N^2 / r^2$ para $s = 0$. Hacia un lado de estas líneas es $s > 0$, y en las zonas adyacentes se observan líneas más débiles, correspondientes a los máximos siguientes de la función (III.4). Otro tanto es válido para el lado opuesto ($s < 0$) de cada línea principal ($s = 0$).

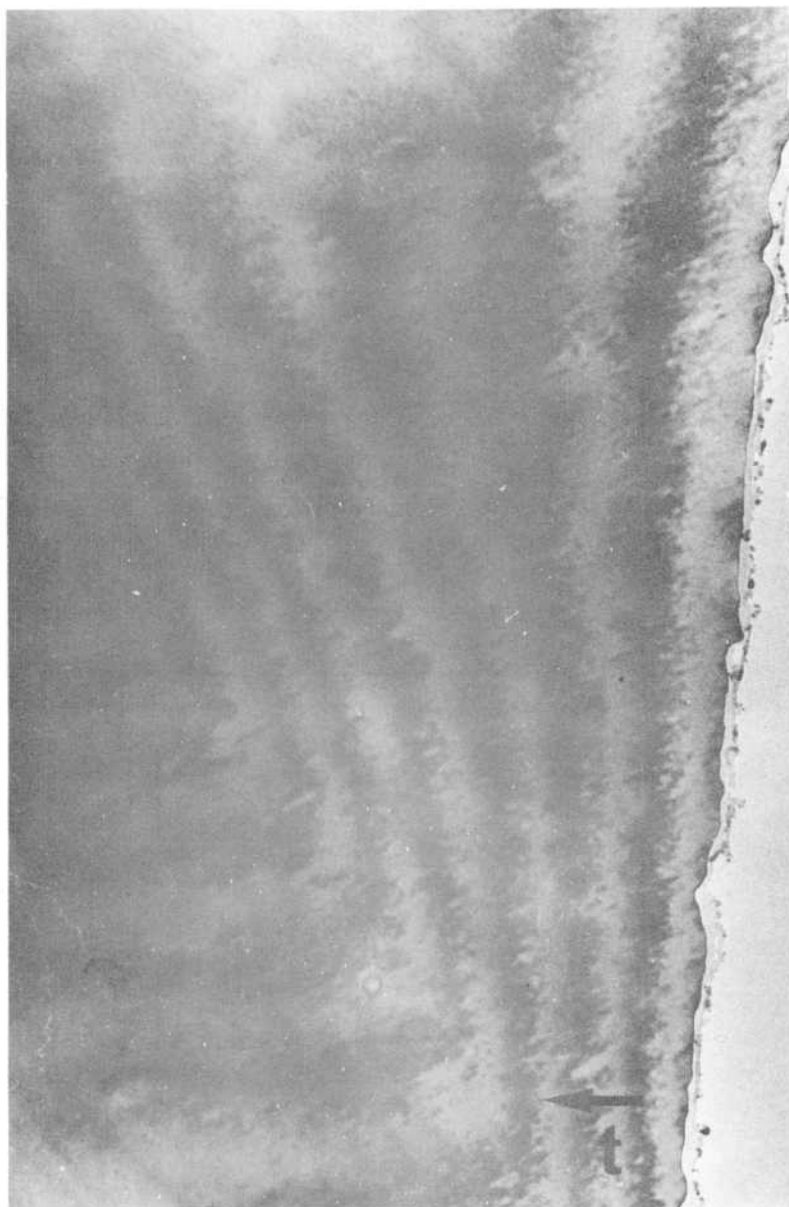


Fig. III.2. Franjas de igual espesor en una lámina delgada de un monocristal de cobre. El espesor de la lámina es constante a lo largo de cada una de las franjas. La diferencia de espesores entre dos franjas contiguas del mismo signo es igual a la distancia de extinción ξ_g . Atención: A.A. Pochettino .



Fig. III.3. Franjas de igual inclinación, o contornos de extinción, en una lámina delgada de cobre. Atención: A.A. Pochettino.

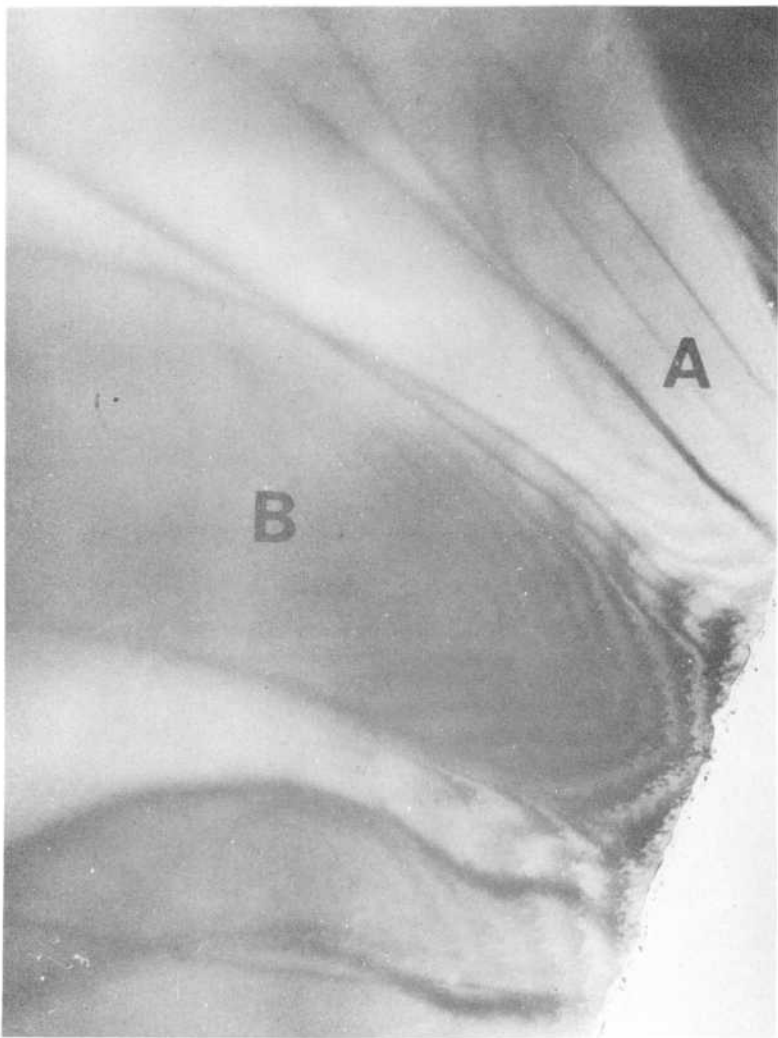


Fig. III.4. Imagen electrónica de una lámina delgada de cobre, en la que se observan contornos de extinción (A) y franjas de igual espesor (B). Atención: A.A. Pochettino.

En general, los contornos de extinción dificultan la observación e interpretación de las imágenes electrónicas de defectos cristalinos, y siempre es necesario manipular con sumo cuidado las láminas delgadas para evitar deformaciones que puedan dar origen a este contraste indeseable. En una muestra en forma de cuña, caso muy común en microscopía electrónica, ambos tipos de franjas pueden presentarse simultáneamente, tal como se muestra en la Fig. III.4.

Las imágenes de campo claro (haz transmitido) presentan las mismas características que las de campo oscuro, si la lámina está orientada de manera que se verifica la aproximación de dos haces. De acuerdo a (III.1) tanto las franjas de igual espesor como las de igual inclinación son complementarias de las correspondientes a campo oscuro: a máximos de intensidad corresponden mínimos, y viceversa. En las Fig. III.5(a) y (b) se muestran las imágenes de campo claro y campo oscuro de una lámina delgada de cobre, en la que se observa un conjunto de contornos de extinción. Las imágenes son a primera vista complementarias, de acuerdo con la teoría cinemática, aunque un análisis más detallado muestra ciertos contrastes que pueden ser explicados solamente por la teoría dinámica de la difracción.

III.2.2. Diagrama Fase Amplitud. Construcción de Fresnel

La aproximación de la columna permite calcular la intensidad difractada por una lámina delgada de un cristal perfecto y predecir, a través de un cálculo sencillo, el aspecto general de las imágenes, tanto en campo oscuro como en campo claro. Pero la aproximación resulta realmente útil para un cristal que contiene algún tipo de defectos cristalinos. El diagrama fase amplitud proporciona una manera gráfica de calcular la intensidad difractada por una de estas columnas.

La expresión de la amplitud difractada por una red cristalina, ec. II.25, es

$$A = \frac{f}{r} \sum_i e^{2\pi i (\vec{k}' - \vec{k}) \cdot \vec{r}_i} \quad (\text{III.6})$$

donde la suma sobre el índice i se extiende a los N nodos de la red. La amplitud difractada por una columna está dada por una expresión similar, pero la suma se realiza sobre las celdas de la columna considerada. Recor-

dando que

$$\vec{k}' - \vec{k} = \vec{g} + \vec{s} \quad (\vec{k}' - \vec{k}) \cdot \vec{r}_i = (\vec{g} + \vec{s}) \cdot \vec{r}_i = \text{entero} + \vec{s} \cdot \vec{r}_i$$

resulta finalmente

$$A = \frac{f}{r} \sum_i e^{2ni\vec{s} \cdot \vec{r}_i} = \frac{f}{r} \sum_i e^{2nisz_i} \quad (\text{III.7})$$

donde z_i es la coordenada que describe la profundidad de las celdas a lo largo de la columna, Fig. III.6(a). También puede considerarse cada columna como una sucesión continua de celdas difractantes, y (III.7) resulta entonces

$$A = \frac{F}{r} \frac{1}{t} \int_{-\frac{t}{2}}^{\frac{t}{2}} e^{2nisz} dz \quad (\text{III.8})$$

donde se ha considerado, en forma más general, el factor de estructura F de la celda, ec. II.45, en vez del factor atómico de difusión f . La amplitud difractada por una columna se obtiene entonces integrando (III.8), conociendo previamente la variación del parámetro s con la profundidad z .

Si el cristal es perfecto, s es independiente de z

$$A = \frac{F}{r} \frac{1}{t} \int_{-\frac{t}{2}}^{\frac{t}{2}} e^{2nisz} dz = \frac{F}{r} \frac{\text{sen } \eta st}{\eta s t} e^{i\eta st}$$

y la intensidad difractada es por lo tanto

$$I_g = |A|^2 = \frac{F^2}{r^2} \frac{\text{sen}^2 \eta st}{(\eta st)^2} \quad (\text{III.9})$$

que es similar a la expresión (III.4) obtenida anteriormente. Este caso tiene solución analítica simple, pero si s es función de z , resulta en general más rápido resolver la integral (III.7) en forma gráfica, mediante la construcción de Fresnel. En efecto, (III.7) puede considerarse como una suma de vectores en el campo complejo del tipo

$$r e^{i\theta}$$

donde el módulo es dz , y el factor de fase o argumento, es $\theta = 2\eta sz$. En el

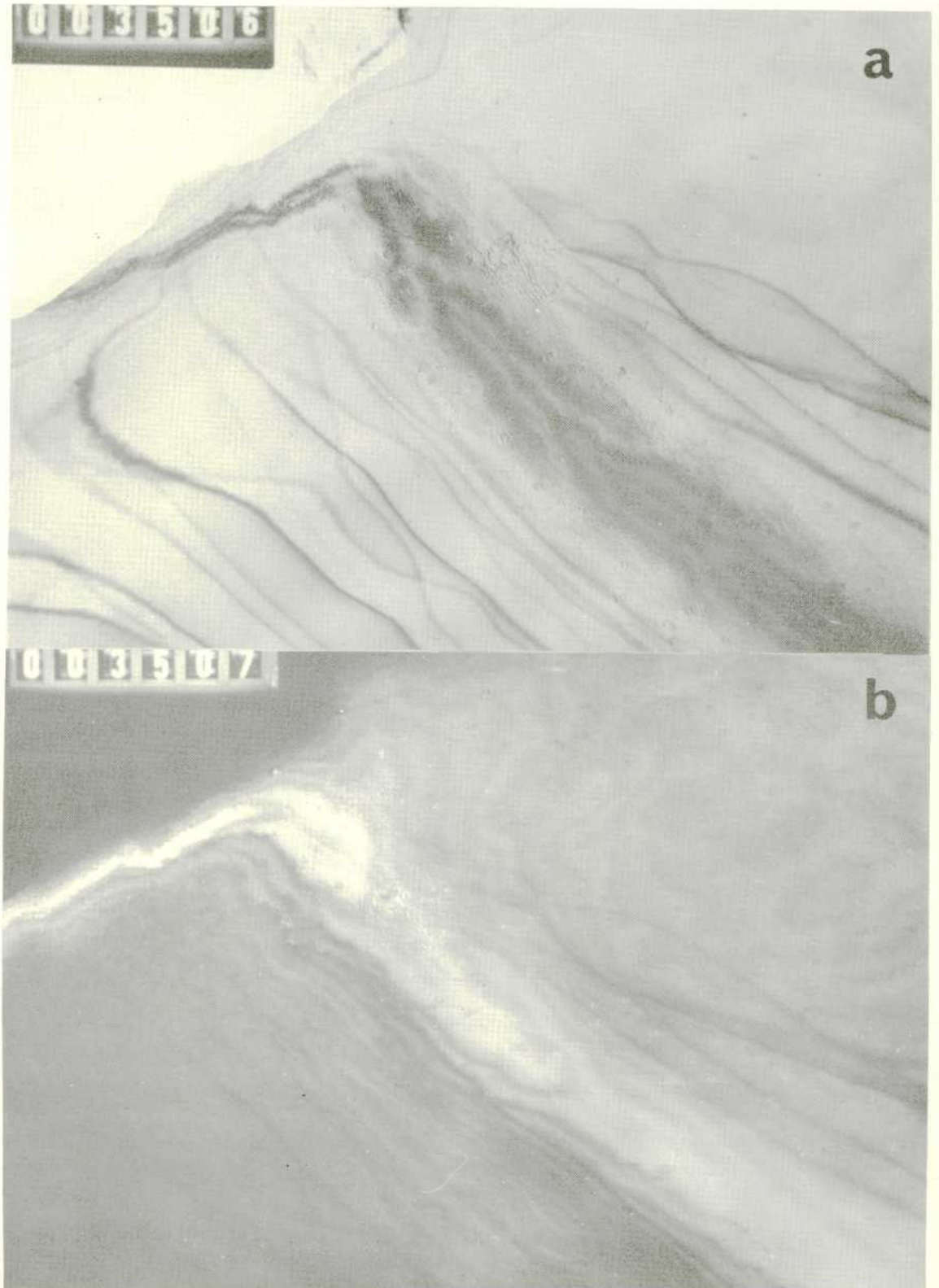
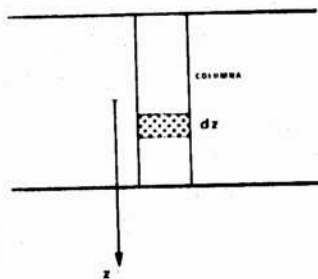
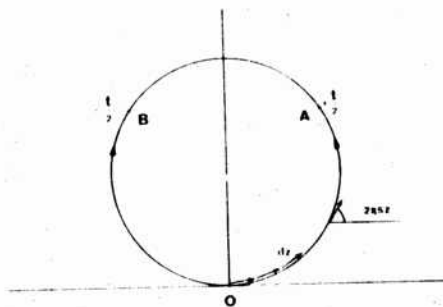


Fig. III.5. Imagen de una muestra de cobre, en la que se observa un conjunto de contornos de extinción. (a) Campo claro; (b) Campo oscuro.



a



b

Fig. III.6. (a) Esquema para el cálculo del contraste debido a una columna dada. La amplitud difractada por la columna se obtiene sumando las amplitudes difundidas por cada una de las celdas, con su factor de fase correspondiente. (b) Esquema de la construcción de Fresnel para calcular la intensidad difractada por una columna de un cristal perfecto.

caso del cristal perfecto, la construcción de Fresnel se realiza a partir del origen 0 del plano complejo, trazando los sucesivos vectores de módulo dz , y argumento creciente $2\pi sz$ hacia la derecha, y decreciente $-2\pi sz$ hacia la izquierda, Fig. III.6(b). Se obtiene así un polígono regular, que para $dz \rightarrow 0$ tiende a una circunferencia de longitud igual a $1/s$, puesto que este es el valor de z para el cual el argumento alcanza el valor 2π . El radio de la circunferencia es por lo tanto

$$\frac{1}{2\pi s}$$

La integración se realiza hasta los valores $z = t/2$ y $z = -t/2$ a derecha e izquierda, respectivamente, y la intensidad difractada por la columna es proporcional al cuadrado del vector AB que une los puntos de abscisa curvilínea $t/2$ y $-t/2$. Esta construcción geométrica, llamada también diagrama fase amplitud, predice la variación de la intensidad difractada con el espesor y la orientación de la lámina. Por un lado, la longitud del vector AB no cambia si el valor de z se incrementa en una longitud de circunferencia, es decir en $1/s$ (franjas de igual espesor). De la misma manera se puede demostrar la variación de la intensidad difractada con el parámetro de desviación s .

En la sección siguiente se verá cual es la influencia de los defectos cristalinos sobre la intensidad difractada por una columna.

III.3. Contraste de Defectos Cristalinos.

Los defectos cristalinos son visibles en una micrografía electrónica al distorsionar en sus vecindades una cierta familia de planos (hkl) orientados cerca de la posición de Bragg, tal como se ha visto en la sección I.1.2. Para una mejor visualización del origen del contraste, volveremos a considerar el ejemplo simple de la dislocación de borde, Fig. I.4, en dos orientaciones distintas, Fig. III.7(a) y (b). En ambos casos se supone que los planos aproximadamente paralelos al haz incidente están en condiciones de difracción. En la orientación de la Fig. III.7(a) la dislocación distorsiona los planos difractantes (hkl) , y estos sufren pequeñas rotaciones de sentido opuesto a ambos lados de la línea, alterando las condiciones de difracción locales. La imagen de la dislocación por lo tanto puede estar a uno u otro lado de la misma, según la

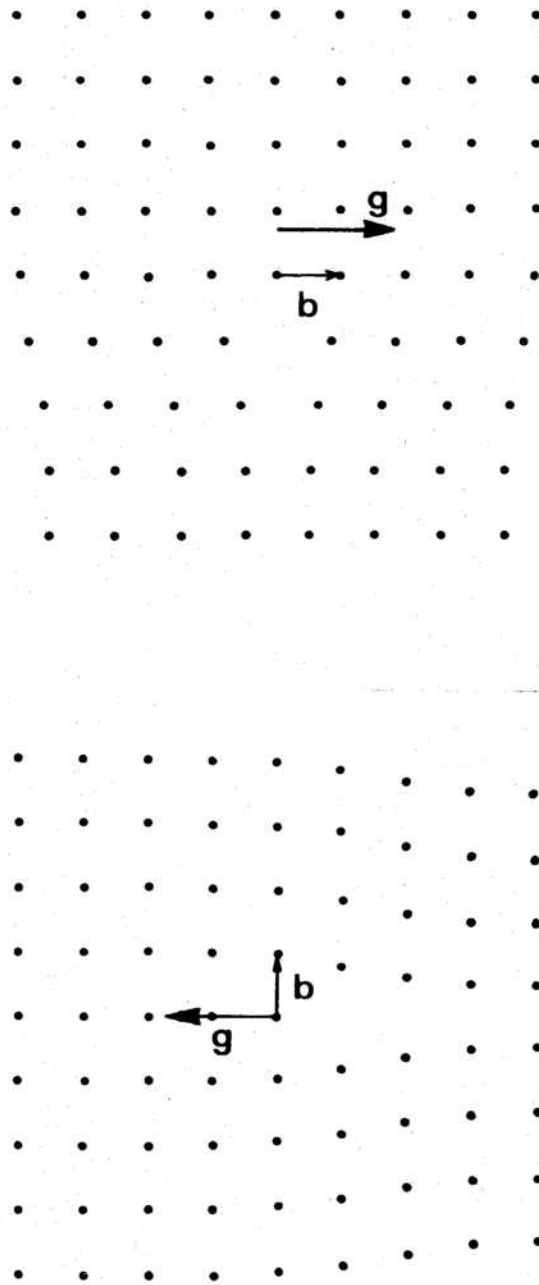


Fig. III.7. Contraste de una dislocación de borde en dos orientaciones distintas. (a) La dislocación distorsiona los planos difractantes (hkl) alterando las condiciones de difracción locales. La dislocación es por lo tanto visible. (b) Los planos difractantes en esta orientación no son mayormente distorsionados por la dislocación, y ésta es entonces invisible ($\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$).

orientación de la lámina, es decir según que sea $s > 0$, o $s < 0$. En cambio en una orientación como la de la Fig. III.7(b) los planos difractantes no son mayormente distorsionados por la presencia de la dislocación, y ésta es entonces invisible (no hay contraste).

Si b es el vector de Burger de la dislocación, ver más adelante sección III.3.2, la condición de invisibilidad, o extinción, se puede expresar

$$\vec{g}_{hkl} \cdot \vec{b} = 0 \quad (\text{III.10})$$

donde \vec{g}_{hkl} es el vector de la red recíproca que representa los planos (hkl) que están orientados cerca de la posición de Bragg. Por ejemplo, en la estructura fcc una dislocación de vector de Burger $1/2 [110]$ no es visible en la reflexión $(\bar{2}\bar{2}4)$. De manera más general, el contraste de una dislocación depende de tres parámetros: \vec{g}_{hkl} , \vec{b} y \vec{s} y de su respectivo signo. El estudio sistemático de esta dependencia es el que permite determinar \vec{b} y decidir, por ejemplo, si el plano adicional de una dislocación de borde está situado por encima o por debajo del plano de deslizamiento.

Las mismas consideraciones son válidas para una dislocación de hélice, Fig. III.8. El vector de Burger en este caso es paralelo a la línea de dislocación, y los planos más distorsionados son los del tipo ABCD en la misma figura. Si el cristal se orienta cerca de la posición de Bragg correspondiente a estos planos, la dislocación será visible. En cambio, si los planos difractantes son los del tipo ADEF no habrá contraste, puesto que los desplazamientos atómicos originados por la dislocación no afectan a esta última familia de planos cristalinos. En este caso se verifica también la condición de invisibilidad (III.10).

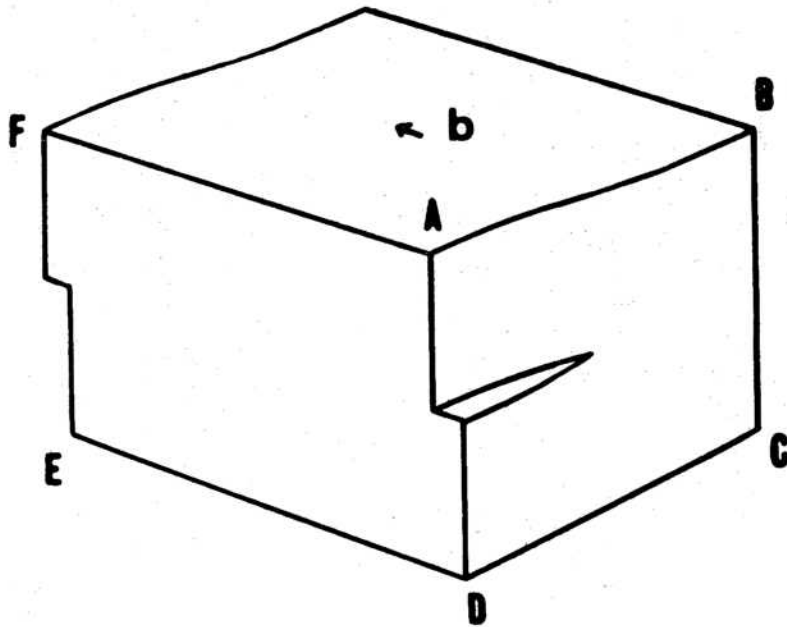
Si un defecto cristalino produce un desplazamiento $\vec{R}(\vec{r}_i)$ de la celda descrita por un vector \vec{r}_i en una columna dada, la amplitud difractada será, de acuerdo a (III.5)

$$A = \frac{F}{r} \sum_i e^{2ni(\vec{g} + \vec{s}) \cdot (\vec{r}_i + \vec{R})}$$

que se reduce, teniendo en cuenta que $\vec{s} \cdot \vec{R}$ es pequeño

$$A = \frac{F}{r} \sum_i e^{2ni(\vec{g} \cdot \vec{R} + \vec{s} \cdot \vec{r}_i)} = \frac{F}{r} \sum_i e^{2ni \alpha(\vec{r}_i)} e^{2ni \vec{s} \cdot \vec{r}_i}$$

o también, reemplazando la suma por una integral



DISLOCACION DE HELICE

Fig. III.8. Contraste de una dislocación de hélice. Si el cristal se orienta cerca de la posición de Bragg correspondiente a los planos ABCD, la dislocación será visible. En cambio si los planos difractantes son los del tipo ADEF, no habrá contraste, puesto que los desplazamientos atómicos originados por la dislocación no afectan a esta familia de planos cristalinos y se verifica la condición de invisibilidad $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$.

$$A = \frac{F}{r} \int_{-\frac{b}{2}}^{\frac{b}{2}} e^{i\alpha(z)} e^{2\pi i s z} dz \quad (\text{III.11})$$

donde

$$\alpha(z) = 2\pi \bar{g} \cdot \bar{R}(z) \quad (\text{III.12})$$

es el ángulo de desfase que introduce el defecto en la amplitud difractada por la celda de coordenada z . Por lo tanto si se conoce el desplazamiento \bar{R} que origina un defecto cristalino dado, es posible calcular la intensidad difractada por las distintas columnas de una lámina delgada, y construir así la imagen de campo oscuro correspondiente. Existirá contraste siempre que la cantidad $\bar{g} \cdot \bar{R}$ sea diferente de cero, y distinta de un número entero. En las secciones siguientes se discutirá la apariencia general del contraste de algunos defectos comunes en metales.

III.3.1. Contraste de Fallas de Apilamiento

Las estructuras metálicas comunes se representan por un apilamiento compacto de átomos, supuestas esferas rígidas e impenetrables (2). Consideremos una capa de esferas en contacto sobre un plano, Fig. III.9 .

El apilamiento deja dos tipos de depresiones o intersticios de forma "triangular", unos con su "base" hacia arriba y su "vértice" hacia abajo, que llamaremos de tipo B, y los de orientación opuesta, tipo C. Una estructura compacta en tres dimensiones puede obtenerse apilando sucesivas capas compactas de esferas sobre las depresiones de la inmediata anterior. Así, sobre la capa de la Fig. III.9 es posible ubicar una segunda capa sobre los intersticios de tipo B, Fig. III.9 . Una tercer capa puede apilarse a continuación sobre los sitios C, o los sitios A correspondientes a la primera. De las infinitas posibilidades solamente dos formas de apilamiento se encuentran realmente en los metales. Una de ellas corresponde a la secuencia

... ABABAB ...

y conduce a una estructura hexagonal compacta A_3 , sección II.3.4.3, mien-

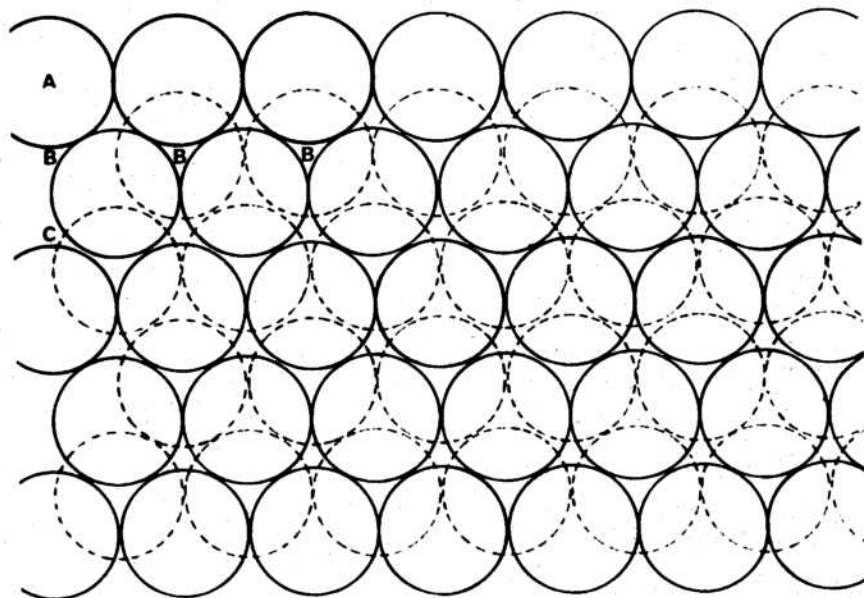


Fig. III.9. Apilamiento compacto de átomos, de acuerdo al modelo de esferas rígidas. El apilamiento deja dos tipos de depresiones o intersticios, de tipo triangular, unos con su "base" hacia arriba, tipo B, y los de orientación opuesta, tipo C. Apilando sucesivas capas compactas sobre estas depresiones se obtiene una estructura tridimensional compacta. La secuencia de apilamiento ABAB... conduce a una estructura hexagonal compacta A_3 , mientras que el apilamiento ABCABC... da origen a una estructura cúbica de caras centradas A_1 .

tras que el apilamiento

... ABCABCABC ...

da origen a una estructura cúbica de caras centradas A_1 , sección II.3.4.1. En ambos apilamientos cada esfera (átomo) está rodeada por el número máximo posible de esferas vecinas, igual a 12.

Aun cuando las dos estructuras son estables, es frecuente encontrar alteraciones en las secuencias de apilamiento, que dan origen a defectos extendidos sobre los planos compactos, denominados fallas de apilamiento. En la estructura A_1 (fcc) puede quedar removida una capa entera de la secuencia

... ABCA.CABC ...

dando origen a una falla que se denomina de tipo intrínseco. Este tipo de defecto puede producirse por deformación o por la condensación de vacancias existentes en el metal. De la misma manera puede introducirse una capa adicional entre dos capas vecinas

... ABCBABC ...

y la falla se denomina de tipo extrínseco. En la estructura A_3 , hexagonal compacta, una capa adicional de tipo C entre dos capas A y B, constituye una falla de apilamiento extrínseca.

En todos los casos el cristal sigue siendo perfecto a ambos lados de la falla. Esta se puede considerar como la superficie límite que separa un cristal perfecto de otro cristal perfecto, pero desplazado en un cierto vector \vec{R} . Demostraremos a continuación que \vec{R} siempre se puede reducir a un vector de tipo $\pm a/3 [111]$.

En la Fig. III.10 se representa el plano compacto (111) de una estructura fcc, y los dos vectores que desplazan un átomo de un intersticio de tipo B a uno de tipo C, y de un intersticio C a uno de tipo B, dados por

$$\vec{b}_1 = \frac{\vec{a}}{6} [\bar{2}11] \quad \vec{b}_2 = \frac{\vec{a}}{6} [\bar{1}2\bar{1}] \quad (\text{III.13})$$

De esta manera, si una porción "2" de la parte superior del cristal

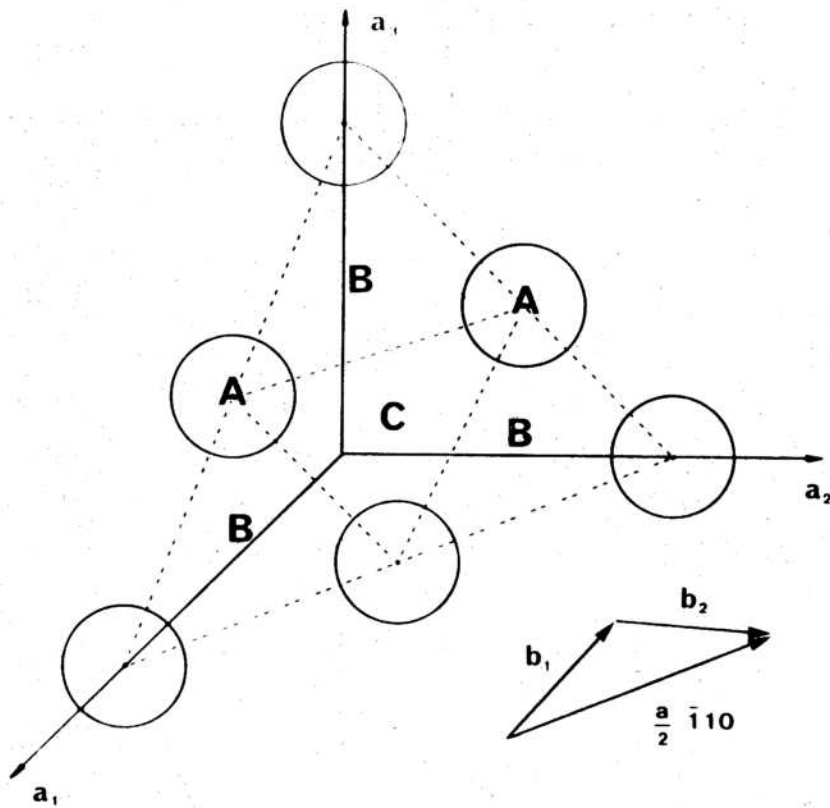


Fig. III.10. Esquema del plano compacto (111) de una estructura cúbica de caras centradas. Los vectores b_1 y b_2 son las que desplazan un átomo de un intersticio B a uno de tipo C, y de un C a un B, respectivamente.

desliza respecto de la parte inferior en un vector \vec{b}_1 , Fig. III.11(a), los átomos B pasan a ocupar posiciones C, y la capa siguiente situada en posiciones C, pasa a ocupar posiciones A. La secuencia de apilamiento resulta entonces

$$\dots \text{ABCACABC} \dots$$

originándose una falla de apilamiento intrínseca. Si a su vez otra porción "3" de la parte que ha deslizado, se desplaza en un vector \vec{b}_2 , Fig. III.11(b) los átomos desplazados anteriormente a las posiciones C, vuelven a ocupar posiciones B, la falla desaparece y la secuencia de apilamiento vuelve a ser la correspondiente a una estructura fcc. Pero entre la zona sin deslizar "1" y la zona "3" se ha creado una dislocación cuyo vector de Burger es

$$\frac{\vec{a}}{6} [\bar{2}11] + \frac{\vec{a}}{6} [\bar{1}2\bar{1}] = \frac{\vec{a}}{2} [\bar{1}10] \quad (\text{III.14})$$

que es un vector de la red y por lo tanto, Fig. III.11(c), es una dislocación de borde perfecta. Entre las zonas "1" y "2", y entre "2" y "3" los deslizamientos han creado además dos dislocaciones, cuyos vectores de Burger son precisamente \vec{b}_1 y \vec{b}_2 . Como estos vectores no son traslaciones de la red fcc, las dislocaciones se denominan parciales o de Shockley. Entonces, dos dislocaciones parciales dan origen a una dislocación de borde perfecto. Recíprocamente, una dislocación perfecta puede disociarse en dos dislocaciones parciales, separadas por una zona en la cual existe una falla de apilamiento, zona "2" de la Fig. III.11(c).

Si la falla de apilamiento fue originada en cambio por la supresión de una capa compacta, por ejemplo de tipo B, como se ha mencionado al principio, entonces según la Fig. III.10, el vector de Burger que bordea la falla es de la forma

$$\vec{b} = \frac{\vec{a}}{3} [111] \quad (\text{III.15})$$

que tampoco es un vector traslación de la red. La dislocación también es parcial y se denomina de tipo Frank.

De manera general, una dislocación parcial siempre constituye el límite de una falla de apilamiento y recíprocamente, una falla de apila-

miento solamente puede estar limitada por una dislocación parcial (salvo superficies libres, o bordes de grano). Si la dislocación es de tipo Shockley, su vector de Burger está contenido en el plano de tipo $\{111\}$ de la falla, y la dislocación, que puede ser de borde, hélice o mixta, es móvil, o deslizable. Por el contrario, una dislocación de Frank no puede deslizar nunca en su propio plano, puesto que el vector de Burger es siempre perpendicular al plano de la falla, y la dislocación es pura de borde. Una falla bordeada por una dislocación de Shockley puede crearse mecánicamente mediante una tensión de corte en el cristal. Pero una falla de apilamiento limitada por una dislocación de Frank solo puede tener su origen en la condensación de vacancias o intersticiales.

De acuerdo a las consideraciones anteriores puede demostrarse que, a los efectos de los cálculos de contraste, una falla de apilamiento siempre puede considerarse como un defecto superficial que separa dos partes de cristal perfecto, desplazadas en un vector del tipo

$$\vec{R} = \pm \frac{\vec{a}}{3} [111] \quad (\text{III.16})$$

En el caso de una dislocación de Frank esto es inmediato. Para una dislocación de Shockley, caracterizada por ejemplo por el vector de Burger \vec{b}_2 , ec. III.13, siempre se puede efectuar la descomposición siguiente

$$\vec{b}_2 = \frac{\vec{a}}{6} [\bar{1}2\bar{1}] = \frac{\vec{a}}{3} [111] + \frac{\vec{a}}{2} [\bar{1}0\bar{1}] \quad (\text{III.17})$$

Siendo $\vec{a}/2 [\bar{1}0\bar{1}]$ un vector traslación de la estructura fcc, su producto escalar con un vector recíproco \vec{g}_{hkl} es siempre igual a un número entero n , y entonces en el cálculo del desfasaje $\alpha(z)$ dado por (III.12) solamente agrega un término igual a $2\pi n$. Entonces (III.17) puede considerarse equivalente a un vector del tipo III.16. Por convención el signo (+) de III.16 caracteriza una falla de apilamiento extrínseca y el signo (-) a una falla intrínseca.

III.3.2 Contraste de una Falla Paralela a las Superficies de la Lámina

Consideraremos primero el caso sencillo de una falla de apilamiento situada a una cierta profundidad t_1 en una lámina delgada de espesor

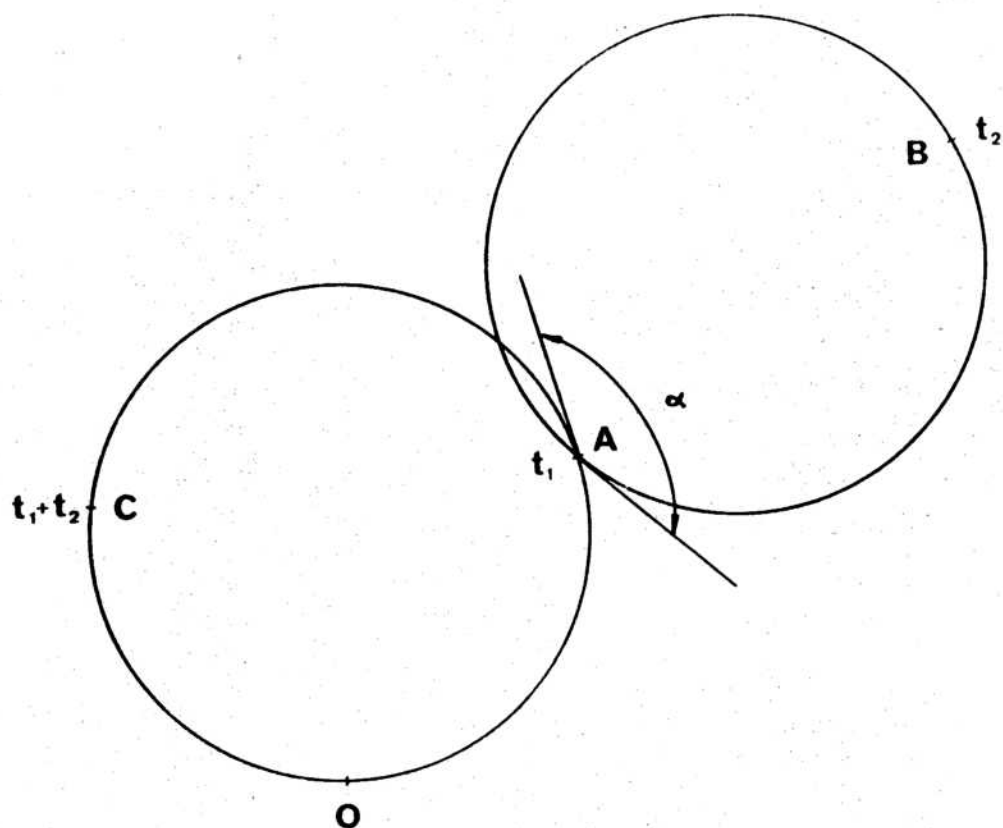


Fig. III.12. Diagrama fase amplitud, correspondiente a una falla de apilamiento paralela a las superficies libres de la lámina delgada. La falla presenta un contraste uniformemente oscuro o claro, según el valor de la profundidad t_1 . Tanto en campo claro como en campo oscuro, la imagen no varía si t_1 o t_2 se incrementan en $1/s$.

$t = t_1 + t_2$. Ambas partes de la lámina son cristales perfectos desplazados en una cantidad \bar{R} dada por III.16.

De acuerdo a (III.12) el desfase entre las ondas difractadas por las dos partes de la muestra está dado por

$$\alpha = \pm \frac{2\pi}{3} \bar{g}_{hkl} \cdot (\bar{a}_1 + \bar{a}_2 + \bar{a}_3)$$

Por ejemplo en las reflexiones

$$g = 220 \quad = \frac{2\pi}{3} \cdot 4 = \frac{2\pi}{3}$$

$$g = \bar{2}\bar{2}0 \quad = -\frac{2\pi}{3}$$

y la falla es entonces visible. En cambio para

$$g = \bar{2}20 \quad \alpha = 0$$

y la falla es siempre invisible, cualesquiera sean t_1 y t_2 . Se puede demostrar en forma general que el desfase α sólo puede tomar valores iguales a $\pm 2\pi/3$ para toda reflexión \bar{g}_{hkl} en la estructura fcc.

El diagrama fase amplitud, por ejemplo para $\alpha = -2\pi/3$, puede construirse fácilmente. Para la porción superior de cristal perfecto la integración se realiza sobre un círculo de radio $1/2\pi s$ hasta el valor t_1 , punto A de la Fig. III.12. Para valores del espesor mayores que t_1 , existe un desfase adicional de $-2\pi/3$, y la construcción de Fresnel continúa hasta un punto B sobre otra circunferencia de igual radio, pero rotada en $2\pi/3$ respecto de la anterior. La amplitud de la onda difractada por una columna de la muestra es proporcional al cuadrado del segmento OB, y puede compararse con OC, que representa la amplitud difractada por un cristal perfecto de espesor $t_1 + t_2$. Entonces, de acuerdo al diagrama de la Fig. III.12, en una orientación dada de la lámina, la falla presenta un contraste uniformemente claro u oscuro, según el valor de la profundidad t_1 . Tanto en campo claro como en campo oscuro, la imagen no varía si t_1 o t_2 se incrementan en $1/s$.

La integral (III.11) puede resolverse también en forma analítica. Llamando

$$u = \frac{1}{2} (t_1 - t_2) \quad t = t_1 + t_2$$

la intensidad difractada resulta

$$I_g = |A|^2 = \frac{1}{n^2 s^2} \left\{ 1 - \cos(\alpha + nst) \cos nst + [\cos(\alpha + nst) - \cos nst] \cos 2nsu \right\} \quad (\text{III.18})$$

El contraste ΔI_g dado por la diferencia entre la intensidad (III.18) y la correspondiente a un cristal perfecto, ec. III.4, puede expresarse

$$\Delta I_g = \frac{4}{n^2 s^2} \sin nst_1 \sin nst_2 \sin \left(\frac{\alpha}{2} + 2nst \right) \frac{\sin \alpha}{2} \quad (\text{III.19})$$

Según esta última expresión, se ve que aún si $\alpha \neq 0$, la falla es invisible si

$$\frac{\alpha}{2} + 2nst = n\pi \quad n : \text{entero}$$

III.3.3 Contraste de una Falla Inclinada

Como la intensidad difractada por una falla de apilamiento es función periódica de la profundidad t_1 a la cual se encuentra, la imagen de una falla inclinada consiste en una sucesión de franjas alternadamente oscuras y claras, paralelas a la intersección de la falla con la superficie de la lámina. La diferencia de profundidades entre dos franjas contiguas del mismo signo es igual a $1/s$. En las Fig. III.13 y 14 se muestran dos ejemplos de fallas de apilamiento en metales fcc.

Por otro lado, en el ejemplo que hemos considerado $\alpha = -2\pi/3$, según (III.19) la primer franja correspondiente a las zonas de la falla próximas a la superficie de la lámina ($t_1 \geq 0$), es clara en campo claro y oscura en campo oscuro, pues $\Delta I_g < 0$. Las franjas cambian de signo para $\alpha = 2\pi/3$. Por lo tanto el signo de la primer franja permite conocer el desfase α , de acuerdo al esquema

$$\text{campo claro} \begin{cases} \text{primer franja clara} & \alpha = \frac{2\pi}{3} \\ \text{primer franja oscura} & \alpha = -\frac{2\pi}{3} \end{cases} \quad (\text{III.20})$$

Conocido el valor de α , es posible determinar la naturaleza intrín-

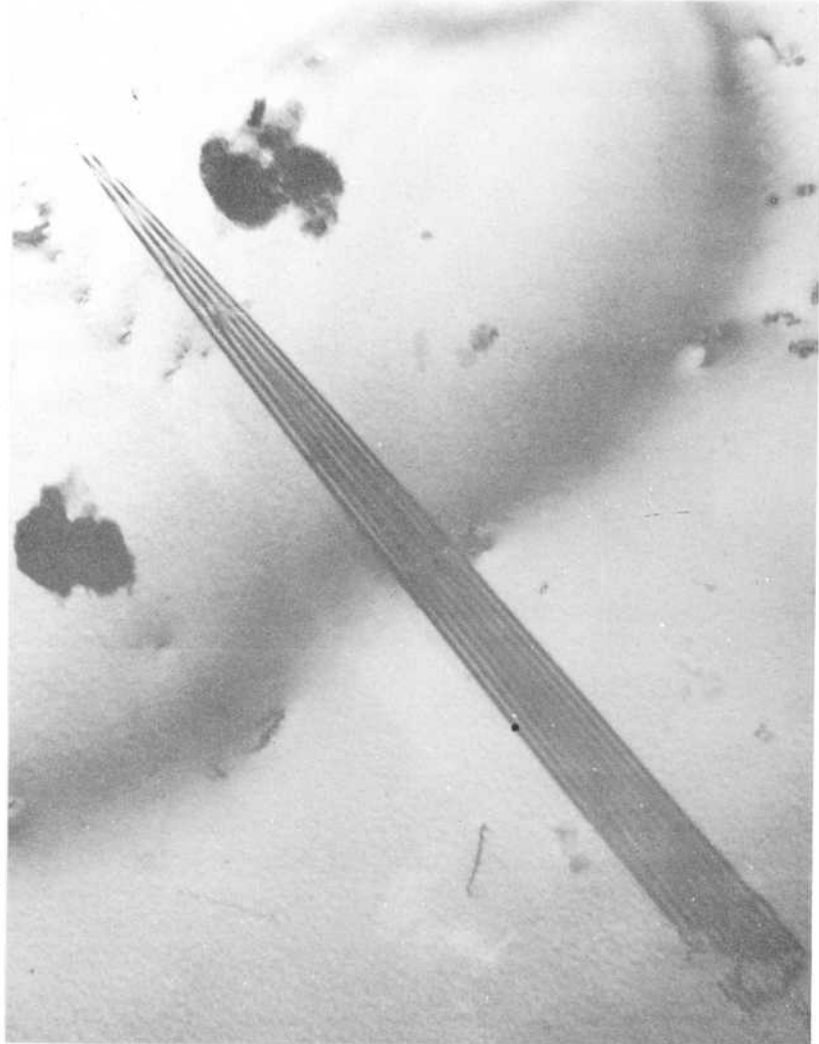


Fig. III.13. Fallas de apilamiento en una lámina delgada de cobre.

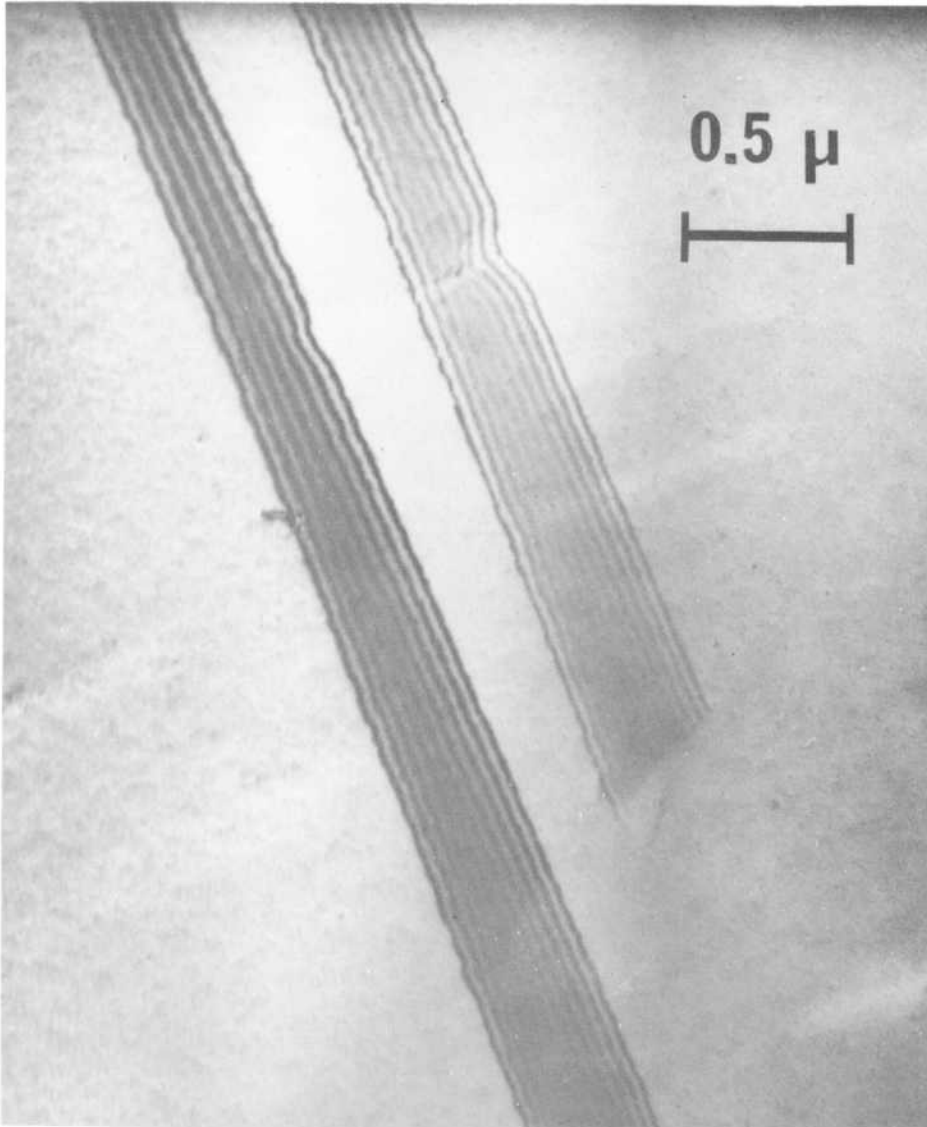


Fig. III.14. Falla de apilamiento en una lámina delgada de níquel. Nótese la variación del número de franjas visibles con el espesor de la lámina. Atención: Cristina O. de González.

seca o extrínseca de la falla, a través del valor de \bar{R} ($\pm \bar{a}/3 [111]$) que satisface III.12. Para ello también es necesario conocer la inclinación de la falla dentro de la lámina, puesto que para un \bar{R} dado, el signo de α depende del ángulo entre \bar{g} y \bar{R} , Fig. III.15. Pueden utilizarse técnicas de estereo microscopía, obteniendo dos micrografías con el mismo vector \bar{g} , en dos inclinaciones distintas de la muestra. La observación del par en un estereoscopio permite reconstruir la imagen tridimensional de la lámina delgada, y determinar la orientación de la falla respecto de la superficie superior. También puede utilizarse un efecto dinámico, no previsto por la aproximación cinemática, según el cual solamente la franja correspondiente a la parte inferior de la lámina cambia de signo al pasar de campo claro a campo oscuro. Por lo tanto la franja correspondiente a la parte superior no cambia, y se puede discriminar sin lugar a dudas entre las dos posibilidades esquematizadas en las Fig. III.15 (a) y (b).

También es posible determinar el vector de Burger de la dislocación parcial que bordea una falla. Estas experiencias son un poco más delicadas, puesto que en ciertas reflexiones \bar{g}_{hkl} no es posible diferenciar entre una dislocación de Shockley o de Frank y es necesario analizar el contraste residual que presentan los últimos tipos de lazos, aún cuando $\bar{g} \cdot \bar{b} = 0$ (1).

III.3.4. Contraste de Dislocaciones

Las dislocaciones son defectos lineales que dan origen a un contraste característico, resultado de la deformación de los planos cristalinos en sus vecindades. En los textos corrientes se pueden consultar los detalles de la teoría general de dislocaciones (3), y nos limitaremos aquí a una descripción cristalográfica para una mejor visualización del contraste a que dan lugar.

Dislocación de Borde. Una dislocación de este tipo puede visualizarse fácilmente, si se la considera como el resultado del agregado de un semiplano adicional entre dos planos consecutivos de una familia (hkl), Fig. III.16. El desplazamiento \bar{b} así originado se denomina vector de Burger, y en este caso, Fig. III.16 (a) es siempre perpendicular a la línea de dislocación. De la misma manera la remoción de un semiplano

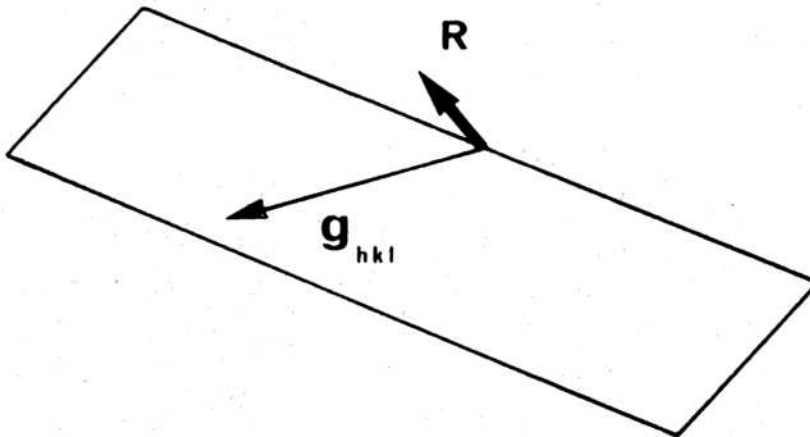
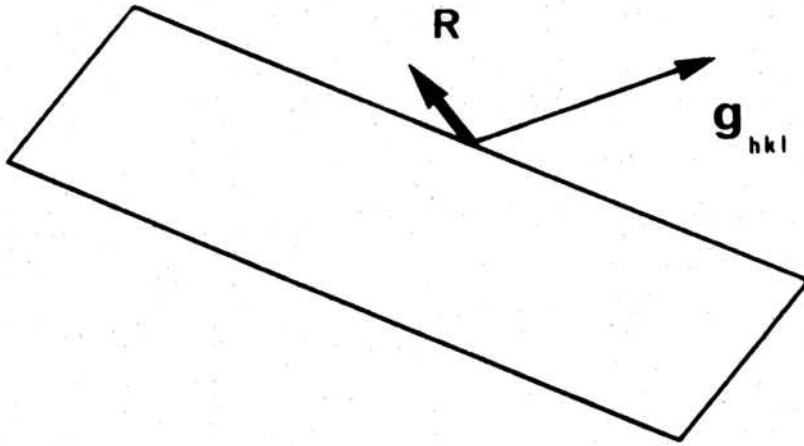


Fig. III.15. En una falla de apilamiento dada, el contraste depende del ángulo entre el vector desplazamiento R y el vector de reflexión g . Para poder determinar la naturaleza intrínseca o extrínseca de una falla es necesario distinguir entre las dos posibilidades esquematizadas en la figura, por ejemplo, mediante observaciones en campo oscuro. La franja correspondiente a la parte superior de la lámina no cambia al pasar de campo claro a campo oscuro.

atómico también da origen a una dislocación de borde.

Consideremos un cristal, por ejemplo cúbico, en el cual se desea desplazar toda la parte superior a un plano P en una cierta distancia \bar{b} respecto de la parte inferior. La manera más simple de hacerlo es desplazando directamente las dos mitades en \bar{b} , pero también se logra el mismo resultado desplazando de un extremo a otro del cristal una dislocación de borde cuyo vector de Burger \bar{b} esté contenido en el plano de deslizamiento P. En una posición intermedia, la configuración de planos cristalinos es tal como la indicada en la Fig. III.16 (b). Entonces, la dislocación define el límite entre la parte del cristal que ha deslizado y la que todavía no fue alcanzada por la deformación. El pasaje de la dislocación sobre el plano P da origen finalmente a un escalón de altura b , o línea de deslizamiento, sobre el lado opuesto del cristal.

Puede demostrarse fácilmente que una dislocación, sea de borde o de hélice, comienza o termina solamente en las superficies libres, en un borde de grano, o en un nodo de dislocaciones. También puede cerrarse sobre sí misma, dando origen a un lazo de dislocaciones. La densidad de dislocaciones se expresa normalmente como el número de líneas que atraviesan 1 cm^2 de superficie dentro del cristal. Un metal recocido contiene del orden de 10^7 disloc./ cm^2 y un metal deformado supera las 10^{10} disloc./ cm^2 .

Circuito de Burger - Definición rigurosa de \bar{b} . Consideremos nuevamente las Fig. III.16 (a) y (b). En zonas suficientemente alejadas de la dislocación, las relaciones entre átomos vecinos son las mismas que en el cristal perfecto, aún cuando pueden existir pequeños desplazamientos de las posiciones anteriores. De esta manera, a un nodo J del cristal perfecto le corresponde un nodo J' del cristal imperfecto. Igualmente están asociados los puntos K y K', L y L', M y M', y al circuito cerrado JKLM le corresponde el circuito cerrado J'K'L'M'. Por el contrario en las vecindades de la dislocación no existe tal correspondencia. Por ejemplo, al circuito cerrado ABCDEFGHA que encierra a la línea de dislocación le corresponde el circuito A'B'C'D'E'F'G'H'A', que no es cerrado. Por definición el vector necesario para completar este circuito se denomina vector de Burger \bar{b} de la dislocación. El sentido positivo de \bar{b} se elige de acuerdo al sentido positivo de circulación a lo largo del circuito de Burger.

El vector de Burger es el mismo a lo largo de una línea de disloca-

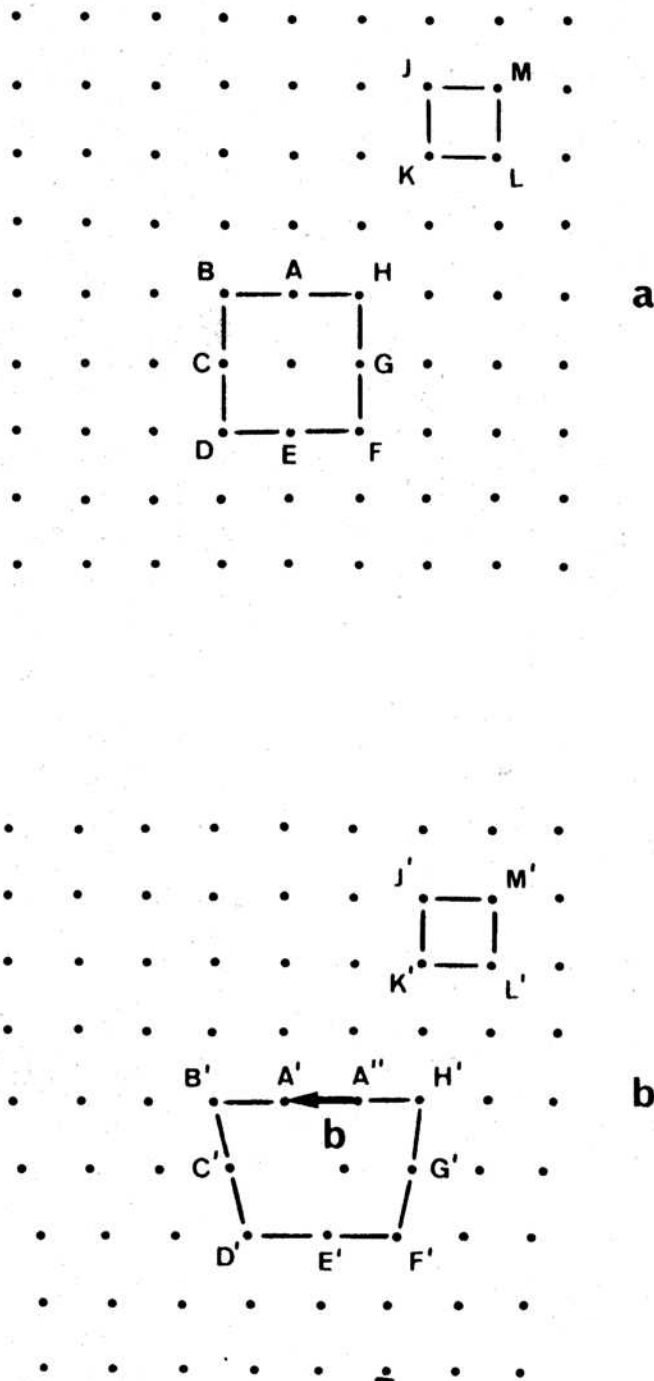
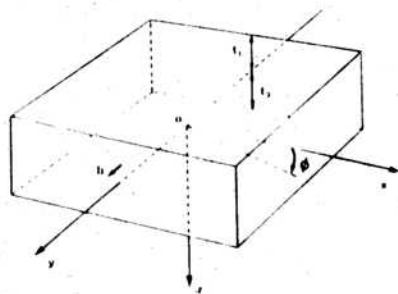


Fig. III.16. Definición de vector de Burger. En zonas alejadas de la dislocación, al circuito cerrado JKLM del cristal perfecto (a) le corresponde el circuito cerrado J'K'L'M' del cristal imperfecto (b). Pero al circuito ABCDEFGHA que encierra a la línea de dislocación le corresponde un circuito que no es cerrado. El vector necesario para completar este circuito se denomina vector de Burger \vec{b} de la dislocación.

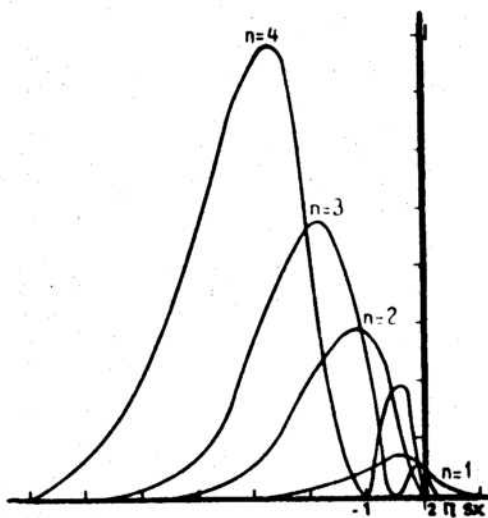
ción dada, y no depende del origen ni de la forma del circuito. Por lo tanto es una característica propia de la dislocación. Si \vec{b} es igual a un vector traslación de la red, la dislocación es perfecta, o total.

Dislocación de Hélice. Consideremos por ejemplo un cristal cúbico y una recta paralela a la dirección $[100]$ del mismo. Si se efectúa un corte parcial según una superficie que contenga a esta recta, y se desplaza una de las caras en una traslación \vec{b} paralela a la dirección $[100]$, se obtiene una dislocación denominada de hélice, ver Fig. III.8. El conjunto de planos de la familia (100) perpendiculares a \vec{b} se transforma en una rampa helicoidal. La dislocación de hélice es siempre paralela a su vector de Burger \vec{b} . Todo plano cristalino que contiene a la línea de dislocación puede ser en principio un plano de deslizamiento.

Dislocación Mixta. Se ha visto ya que una dislocación de borde forma un ángulo de 90° con su vector de Burger, y que en una dislocación de borde el mismo ángulo es igual a cero. En el caso general de una dislocación mixta, este ángulo puede tomar cualquier otro valor y su vector de Burger puede descomponerse por lo tanto en una componente de borde, y una componente de hélice.



a



b

Fig. III.17. (a) Dislocación de hélice paralela a las superficies de la lámina. (b) Perfiles de intensidad, calculados por Hirsch, Howie y Whelan, *Phil. Trans. Roy. Soc. A252*, 499 (1960). La distancia entre los máximos y la línea de dislocación propiamente dicha ($x=0$) es del orden del ancho total de la imagen, unos 100 a 150 Å. El ancho de la imagen crece rápidamente con el orden de reflexión $n = \bar{g} \cdot b$.

III.3.5. Contraste de una dislocación de hélice paralela a las superficies de la lámina.

Consideremos una dislocación de hélice paralela a las superficies libres de la lámina, coincidente con la dirección oy , Fig. III.17 (a).

Sea una columna cualquiera situada sobre el eje x , y un punto de la misma $M(xyz)$. El desplazamiento R de cada átomo de la columna está dado por sus componentes

$$R_x = 0 \quad R_z = 0 \quad R_y = b \frac{\phi}{2\pi}$$

o de manera general

$$\vec{R} = \frac{\vec{b}}{2\pi} \text{arc tg} \phi = \frac{\vec{b}}{2\pi} \text{arc tg} \frac{z}{x} \quad (\text{III.21})$$

donde \vec{b} es el vector de Burger de la dislocación.

El desfase será entonces

$$\alpha = 2\pi \vec{g} \cdot \vec{R} = \vec{g} \cdot \vec{b} \text{arc tg} \frac{z}{x} = n \text{arc tg} \frac{z}{x}$$

donde n es siempre un número entero, dado que $\vec{g} \cdot \vec{b}$ es igual a un período de traslación de la red. La amplitud difractada por una columna de coordenadas (xy) será por lo tanto

$$A = \int_{-t_1}^{t_2} e^{-i\alpha} e^{-2\pi i s z} dz$$

$$A = \int_{-t_1}^{t_2} e^{-in \text{arc tg} \frac{z}{x}} e^{-2\pi i s z} dz \quad (\text{III.22})$$

Se puede ver inmediatamente que para $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$ la intensidad difractada es igual a la de un cristal perfecto, y por lo tanto no hay contraste, expresión III.10. Para valores de x muy grandes respecto del espesor de la

lámina, es decir cuando la columna está muy lejos de la dislocación, z/x es una cantidad muy pequeña y puede considerarse nula. La dislocación no produce contraste a distancias alejadas de la misma.

Para x muy pequeño, por el contrario, z/x es muy grande, negativo encima de la dislocación, y positivo por debajo. La magnitud

$$\text{arc tg } z/x$$

pasa del valor $-\pi/2$ a $+\pi/2$. El desfase total introducido por la dislocación en sus vecindades es $n\pi$. Se ve también que la amplitud difractada es independiente de y . El contraste es por lo tanto paralelo a la línea de la dislocación.

El cálculo numérico de III.22 nos conduce a los perfiles de intensidad difractada por una dislocación de hélice en función de la distancia x de la columna a la dislocación, para un valor dado de s . El cálculo se ha hecho para distintos valores de n , Fig. III.17 (b). La forma general de las curvas indica que las imágenes son siempre asimétricas. La distancia entre los máximos y la línea de dislocación propiamente dicha, es del orden del ancho total de la imagen, del orden de 100 a 150 Å. Además, el ancho de la imagen crece rápidamente con el orden de reflexión n ($=\vec{g}\cdot\vec{b}$).

En cuanto a la altura de los picos, es necesario notar que las curvas de la Fig. III.17 (b) representan el cuadrado de la amplitud A . Para obtener la intensidad real, tal como se vería en la pantalla de un microscopio electrónico, hay que multiplicar esta cantidad por el cuadrado del factor de estructura F para cada valor de n , o sea para cada valor de \vec{g} . Pero F decrece rápidamente con el orden de reflexión (hkl). Este hecho conduce a una disminución de la altura de los picos más altos, correspondientes a altos valores de n , haciendo que las intensidades reales de cada pico sean comparables entre sí. También se puede ver que para valores grandes de n , existen dos máximos de intensidad. En estos casos una única dislocación puede llegar a presentar dos imágenes.

Finalmente, la Fig. III.17 (b) muestra que la intensidad difractada no es máxima sobre la dislocación ($x=0$) sino que está situada a un costado de la misma, que depende del signo de s . Por lo tanto la imagen de una dislocación que atraviesa un contorno de extinción, se quiebra al pasar de la zona $s \gg 0$ a la zona de $s \ll 0$.

Diagrama Fase Amplitud

Consideremos la integral III.22. El círculo C_0 de radio $1/2ns$ corresponde a un cristal sin defectos, Fig. III.18. Según el signo de $\bar{g} \cdot \bar{b}$, s y x , pueden presentarse dos casos:

(1) $nsx > 0$

En este caso, el ángulo dado por

$$2\pi sz + n \operatorname{arc} \operatorname{tg} z/x$$

es, en valor absoluto, siempre mayor que el argumento $2\pi sz$ correspondiente al cristal sin defectos. Entonces el diagrama se desvía hacia el interior del círculo C_0 , y se va arrollando en espiral, tal como se indica en la Fig. III.18 (a). Se puede demostrar que para z positivo la espiral es asintótica a un círculo C_1 que tiene el mismo radio que el círculo C_0 , y para los z negativos es asintótica a un círculo C_2 . También se puede demostrar que el radio de curvatura de la espiral es menor que el radio de la curvatura de C_0 , o sea que la espiral tiende a C_0 desde su interior.

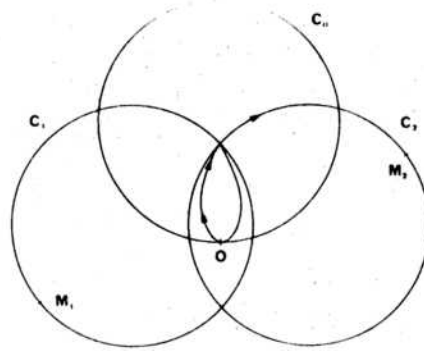
(2) $nsx < 0$

En este caso el argumento

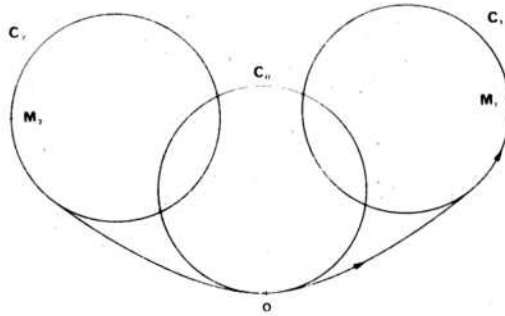
$$2\pi sz + n \operatorname{arc} \operatorname{tg} z/x$$

es, en valor absoluto, siempre inferior a $2\pi sz$. El diagrama está fuera del círculo C_0 y también forma una espiral que tiende a un círculo asintótico C_1 para los z positivos, y a un círculo C_2 para los z negativos, Fig. III.18 (b).

En cualquiera de los dos casos, se pueden deducir todas las propiedades mencionadas de las imágenes de dislocaciones de hélice, estudiando simplemente como varía la amplitud de la onda difractada (segmento M_1M_2) con los distintos parámetros del cristal. Consideremos por ejemplo una dislocación cuyo diagrama fase amplitud sea el de la Fig. III.19 (a). Si la profundidad t_1 a la que se encuentra la dislocación aumenta, consecuen-



a



b

Fig. III.18. Diagrama fase amplitud correspondiente a una dislocación de hélice paralela a las superficies de la lámina delgada.

(a) $nsx > 0$ (b) $nsx < 0$
 s : parámetro de desviación - x : distancia entre la columna y la línea de dislocación, $n = \frac{g}{b}$.

temente t_2 disminuye, y los puntos representativos M_1 y M_2 se desplazan sobre el diagrama en el sentido indicado por las flechas. La longitud del segmento M_1M_2 varía periódicamente con t_1 (y con t_2) siendo el periodo la longitud de la circunferencia $1/s$.

Si el diagrama correspondiente es como el de la Fig. III.19 (b), se puede ver que la longitud M_1M_2 no cambia al variar t_1 (y t_2).

III.3.6 Contraste de una dislocación de hélice inclinada

Teniendo en cuenta los resultados anteriores, es fácil predecir el contraste de una dislocación inclinada con respecto a las superficies de la lámina. La dislocación se puede considerar como una sucesión de pequeños segmentos paralelos a la lámina, situados a distintas profundidades. Si $nsx > 0$, Fig. III.19 (a), una dislocación inclinada presentará una imagen que puede ser oscura o clara, según la profundidad de la misma, que se repite cada vez que la profundidad de la dislocación aumenta en $1/s$. Este tipo de contraste oscilante se observa frecuentemente en láminas delgadas, Fig. III.20.

En el segundo caso $nsx < 0$, en cambio, la misma dislocación inclinada se verá como una línea de intensidad uniforme. Uno de los factores que determinan que los puntos M_1 y M_2 se sitúen como en la Fig. III.19 (a) o como en la Fig. III.19 (b) es el parámetro s de desviación respecto de la posición de Bragg, es decir la orientación de la lámina.

Finalmente, es necesario remarcar que todos estos resultados han sido obtenidos a partir de un campo de desplazamiento calculados para un material isotrópico. Sin embargo, la mayoría de los metales no son isotrópicos, y el valor de \bar{R} correspondiente a una dislocación de hélice dado por (III.21) es sólo una aproximación. En una lámina delgada, además, la presencia de dos superficies libres introduce otros efectos (fuerzas imagen). El problema general del cálculo de los desplazamientos producidos por una dislocación en una lámina delgada, teniendo en cuenta las condiciones de borde, no está completamente resuelto.

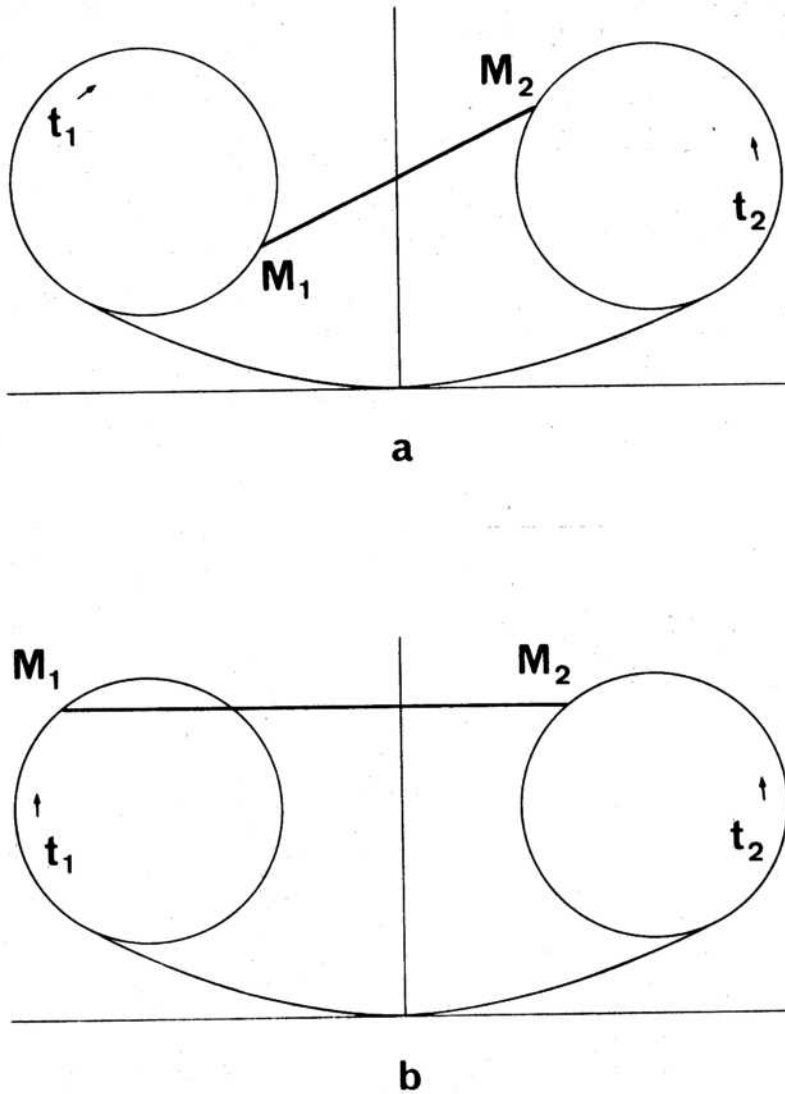


Fig. III.19. Diagrama fase amplitud de una dislocación de hélice, caso $nsx \ll 0$. La amplitud difractada, segmento M_1M_2 , depende de distintos parámetros. Según el valor particular de n, s y x , siempre con $nsx \ll 0$, pueden presentarse dos casos: (a) la intensidad difractada oscila en función de la profundidad t_1 . (b) la intensidad difractada es constante, cualquiera sea el valor de t_1 .

III.3.7 Contraste de una dislocación rectilínea mixta

El campo de desplazamientos de una dislocación rectilínea mixta se expresa en general, como la suma vectorial de los desplazamientos producidos por sus componentes de hélice y de borde, y está dado por

$$\vec{R} = \frac{1}{2\eta} \left[\vec{b}\theta + \vec{b}_c \frac{\text{sen}2\theta}{4(1-\nu)} + \vec{bx}\vec{l} \left(\frac{1-2\nu}{2(1-\nu)} \log \frac{r}{b} + \frac{\cos 2\theta}{4(1-\nu)} \right) \right] \quad (\text{III.23})$$

donde

\vec{b} : vector de Burger de la dislocación

\vec{b}_c : componentes de borde de \vec{b}

\vec{l} : vector unitario en el sentido positivo de la línea de dislocación

θ : ángulo entre la proyección de \vec{b} sobre un plano perpendicular a la línea, y el plano de deslizamiento

ν : número de Poisson

El desfase está dado por

$$\alpha = 2\eta \vec{g} \cdot \vec{R} \quad (\text{III.24})$$

La condición $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$ no es por sí sola suficiente para hacer nulo el contraste, puesto que según III.23 y III.24 las condiciones generales de extinción son

$$\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$$

$$\vec{g} \cdot \vec{b}_c = 0$$

$$\vec{g} \cdot (\vec{bx}\vec{l}) = 0 \quad (\text{III.25})$$

Estas condiciones son difíciles de verificar simultáneamente y existe extinción rigurosa solamente en los dos casos siguientes:

- Dislocación de hélice pura, con $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$
- Dislocación de borde pura, con \vec{g} paralelo a la dislocación

En la Fig. III.21 (a) se reproducen los perfiles de intensidad

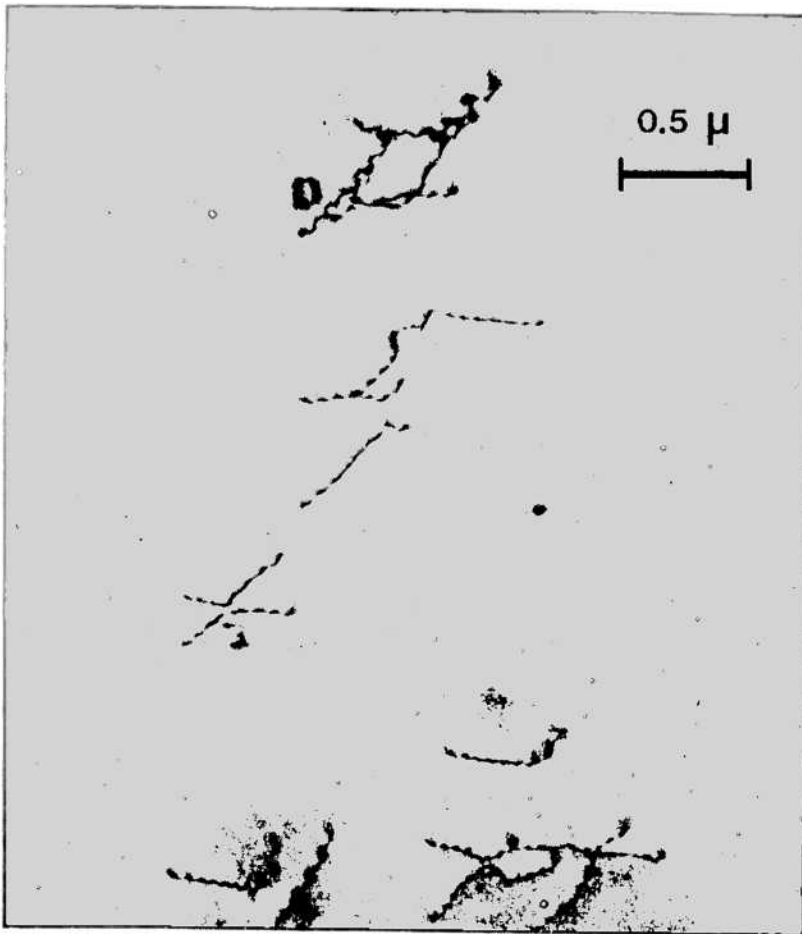


Fig. III.20. Dislocaciones en una lámina delgada de aluminio. Nótese el contraste oscilante de la imagen con la profundidad dentro de la lámina. Atención: A.A. Pochettino.

calculados por Gevers, Phil.Mag.8,651,1962, para una dislocación mixta, con $n=1$, en función de distintos valores del parámetro

$$\eta = \text{sen } \theta \text{ sen } \psi$$

donde

θ : ángulo entre la dislocación y su vector de Burger \vec{b}

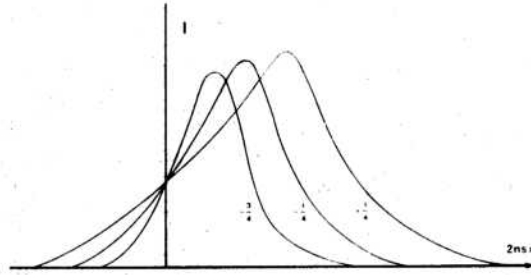
ψ : ángulo entre la dislocación y el vector de reflexión \vec{g}

En el caso de una dislocación de borde pura, se obtienen las curvas de la Fig. III.21 (b). Las variaciones del contraste para este caso son similares a las de una dislocación de hélice pura, y en general, el ancho de la imagen es el doble de la correspondiente a una dislocación de hélice, comparar las Figs. III.17 (b) y III.21 (b).

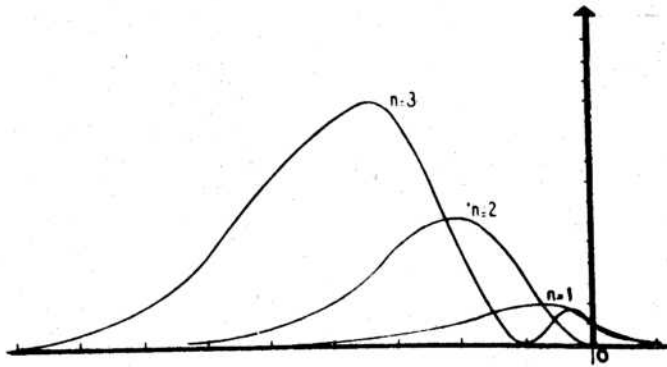
La imagen depende además de las orientaciones relativas entre la dislocación, su vector de Burger, y el vector \vec{g} . El ancho es mínimo cuando la línea de dislocación es la bisectriz del ángulo agudo formado por \vec{b} y \vec{g} . El ancho del contraste es máximo, en cambio, cuando la dislocación es la bisectriz del ángulo obtuso formado por los vectores \vec{b} y \vec{g} .

III.3.8 Contraste de lazos de dislocaciones

Los cálculos de contraste de lazos cerrados de dislocaciones, en la aproximación cinemática se realizan descomponiendo el lazo en una sucesión de segmentos rectilíneos de dislocaciones, y suponiendo que el campo de deformaciones resultante es isotrópico. Las deformaciones traen como consecuencia que en ciertas regiones existan planos cristalinos en posición cercana a la de Bragg, que por lo tanto difractan intensamente los electrones del haz incidente y originan así el contraste del lazo.



a



b

Fig. III.21. (a) Perfiles de intensidad correspondientes a una dislocación mixta. (b) Dislocación de borde, $n = \bar{g} \cdot \bar{b}$.

Para interpretar correctamente los resultados es fundamental ajustarse a una definición del vector de Burger de un lazo. Aquí hemos seguido las convenciones utilizadas por Mazey, Barnes y Howie (4), Fig. III.22.

El sentido positivo de circulación sobre el lazo se define de tal manera que coincide con el de las agujas del reloj, si el mismo es observado según la dirección y sentido del haz incidente.

El sentido positivo del circuito de Burger es entonces el que coincide con el de las agujas del reloj para un observador que se desplaza sobre el lazo según el sentido de circulación definido anteriormente. El vector de Burger es el segmento que une el punto de partida con el final de este último circuito.

De acuerdo a esta definición, el vector de Burger de un lazo formado por intersticiales, siempre forma un ángulo menor que $\pi/2$ con un vector de sentido opuesto al del haz incidente. La misma convención implica que para un lazo de vacancias, el mismo ángulo siempre está comprendido entre $\pi/2$ y π .

Las características principales que presentan las imágenes de lazos cerrados de dislocaciones en la aproximación de dos haces, son las siguientes (1)(2):

- a) La imagen de un lazo es una línea cerrada, negra sobre fondo blanco, de un ancho comprendido entre unos 100 y 400 Å, si la orientación de la lámina delgada es tal que se verifica la condición $s > 0$ para alguna de las familias de planos cristalinos. El parámetro de desviación s de la posición de Bragg es positivo si el nodo del espacio recíproco (hkl) asociado con una familia de planos está dentro de la esfera de Ewald, y es negativo, si se halla fuera de la misma, sección II.3.6.2.
- b) El contraste de un lazo de dislocaciones es oscilante si la lámina se halla orientada en la posición exacta de Bragg ($s = 0$).
- c) Un lazo caracterizado por su vector de Burger \vec{b} es invisible para aquellas orientaciones de la lámina delgada que verifican

$$\vec{g}_{hkl} \cdot \vec{b} = 0$$

- d) Lazos prismáticos contenidos en un plano normal al haz incidente, para los cuales se verifica la condición $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$ para todo valor de \vec{g} , pre-

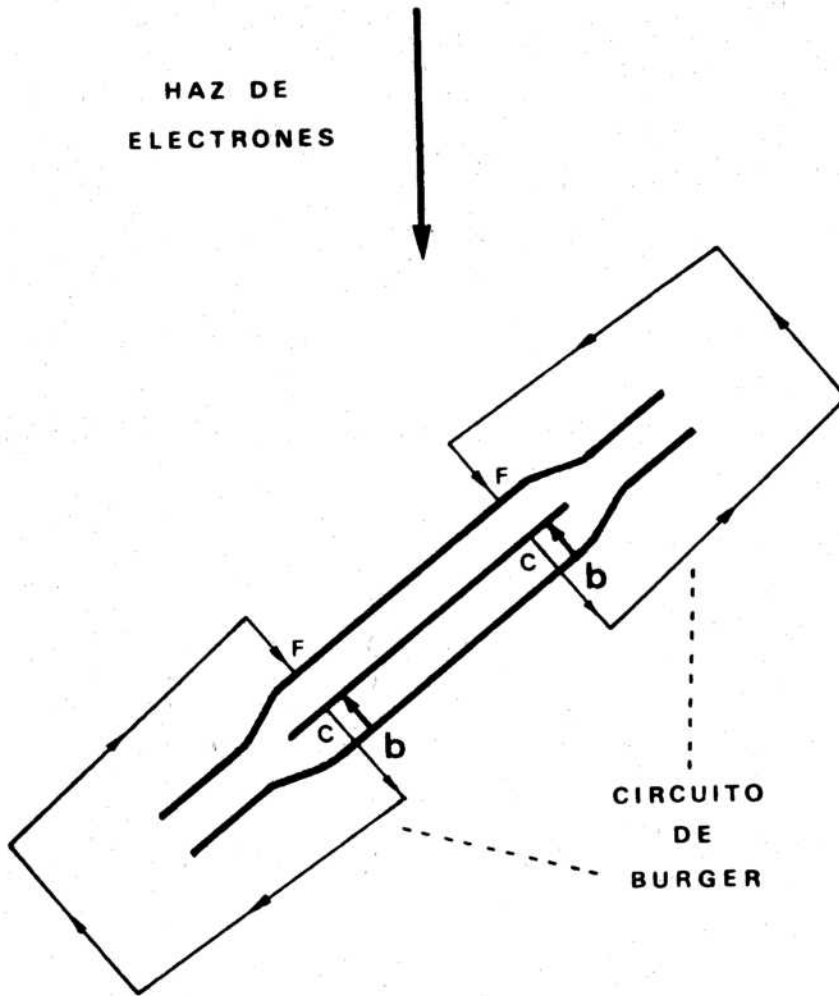


Fig. III.22. Vector de Burger de un lazo cerrado de dislocaciones. Para lazos de tipo intersticial, el vector de Burger forma un ángulo menor que 90° con un vector de sentido opuesto al haz incidente.

sentan una imagen residual con una línea de contraste nulo normal a la dirección de g .

- e) De acuerdo a la definición de vector de Burger adoptada, la imagen es mayor que la proyección geométrica del lazo si la cantidad $(g \cdot b)$ es positiva y está dentro de proyección si $(g \cdot b)s \ll 0$ (Fig. III.23). Por lo tanto, si en una observación se varía el signo de la cantidad $(\vec{g} \cdot \vec{b})_s$, manteniendo constante el resto de los parámetros, varía el tamaño de la imagen del lazo observada en la pantalla del microscopio electrónico.

Esto se puede realizar de dos maneras:

- Manteniendo constante del vector \vec{g} y variando el signo de s .
- Manteniendo positivo el valor de s y rotando la muestra de forma tal que el vector de reflexión \vec{g} cambie a $-\vec{g}$. En láminas delgadas metálicas se prefiere este método, puesto que se mantienen así las condiciones ópticas de visibilidad de defectos.

Veremos a continuación como es posible determinar el vector de Burger b de lazos de dislocaciones, mediante una serie de experiencias sistemáticas de variación de contraste. En el trabajo que se detalla (5) fue posible además determinar la naturaleza intersticial de los lazos presentes en monocristales de Al irradiados con neutrones.

Las experiencias en el microscopio electrónico se realizaron en condiciones de visibilidad óptima. Estas condiciones corresponden a una orientación tal que es $s > 0$ para reflexiones de bajos índices. Se eligió una orientación cristalográfica de las láminas tal que la normal a las mismas coincidiera con la dirección $\{101\}$. De esta manera el haz electrónico incide normal a los planos (101) de las muestras. El diagrama de difracción correspondiente, plano (101) de la red recíproca del Al, Fig. III.24, contiene las reflexiones $(\bar{1}11)$, $(1\bar{1}\bar{1})$, (002) y (202) .

Las experiencias de visibilidad de contraste permiten clasificar a los lazos de dislocaciones observados en las muestras en cuatro grandes grupos:

- 1) Lazos visibles en las reflexiones $(\bar{1}11)$ y (020) , e invisibles en la reflexión $(1\bar{1}\bar{1})$.
- 2) Lazos visibles en las reflexiones $(1\bar{1}\bar{1})$ y (020) e invisibles en la reflexión $(\bar{1}11)$.
- 3) Lazos visibles en las reflexiones $(\bar{1}11)$ y $(1\bar{1}\bar{1})$ e invisibles en la reflexión (020) .

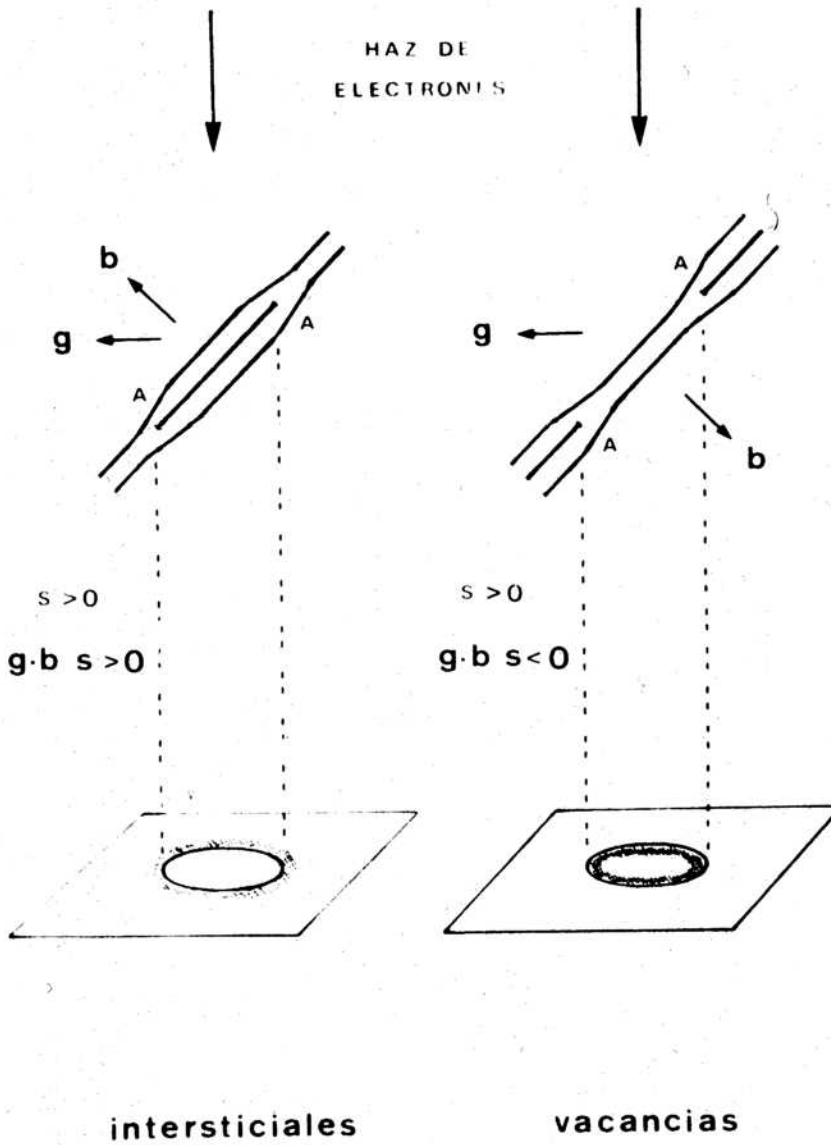


Fig. III.23. Análisis de la variación del producto $(\vec{g} \cdot \vec{b})s$ para lazos de dislocaciones. Cuando $(\vec{g} \cdot \vec{b})s > 0$ la imagen electrónica del lazo es mayor que su proyección geométrica. Las zonas indicadas con A son las que difractan fuertemente dando origen al contraste.

- 4) Lazos que presentan una imagen residual en las reflexiones $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$, $(1\bar{1}\bar{1})$ y (020) .

Las posibilidades dentro de cada uno de estos grupos son las siguientes:

- 1) Los únicos vectores de Burger compatibles con las condiciones de visibilidad para los lazos de este grupo son:

$$\vec{b} \quad \begin{aligned} \vec{b}_1 &= \pm \frac{1}{2} \{011\} \\ \vec{b}_2 &= \pm \frac{1}{2} \{1\bar{1}0\} \end{aligned}$$

Efectivamente, para los vectores de reflexión $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ y (020) en los cuales los lazos son visibles, se cumple que $\vec{g} \cdot \vec{b} = \pm 1$, y es $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$ para la reflexión $(1\bar{1}\bar{1})$ en la cual los lazos no presentan contraste.

La primer experiencia de variación del signo de la cantidad $(\vec{g} \cdot \vec{b})s$ se realizó observando la imagen de los lazos en las reflexiones $\vec{g} = (\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ y $g = (1\bar{1}\bar{1})$ manteniendo $s > 0$. Se mostró que dentro de este grupo existían a su vez dos familias de lazos cuyo comportamiento era distinto. En efecto, los lazos como los marcados con A en la Fig. III.25 presentan una imagen mayor en la reflexión $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$, mientras que para los marcados con B el contraste era mayor en la reflexión opuesta $(1\bar{1}\bar{1})$.

Entonces, caben 2 posibilidades:

- Los lazos de tipo A y B son de la misma naturaleza, pero sus planos de hábito son distintos.
- Ambos tipos de lazos ocupan los mismos planos cristalográficos, pero son de distinta naturaleza.

Mediante técnicas de estereo-microscopía electrónica se pudo confirmar la primer posibilidad.

Finalmente, para conocer la naturaleza intersticial o vacancia de los lazos, es necesario eliminar la indeterminación en el signo de los respectivos vectores de Burger. Las experiencias de variación de contraste en función del signo de la cantidad $(\vec{g} \cdot \vec{b})s$, que ya hemos mencionado, son suficientes para resolver esta incerteza. En efecto, como para los lazos de tipo A, la imagen es mayor en la reflexión $\vec{g} = (\bar{1}\bar{1}\bar{1})$, debe ser necesariamente:

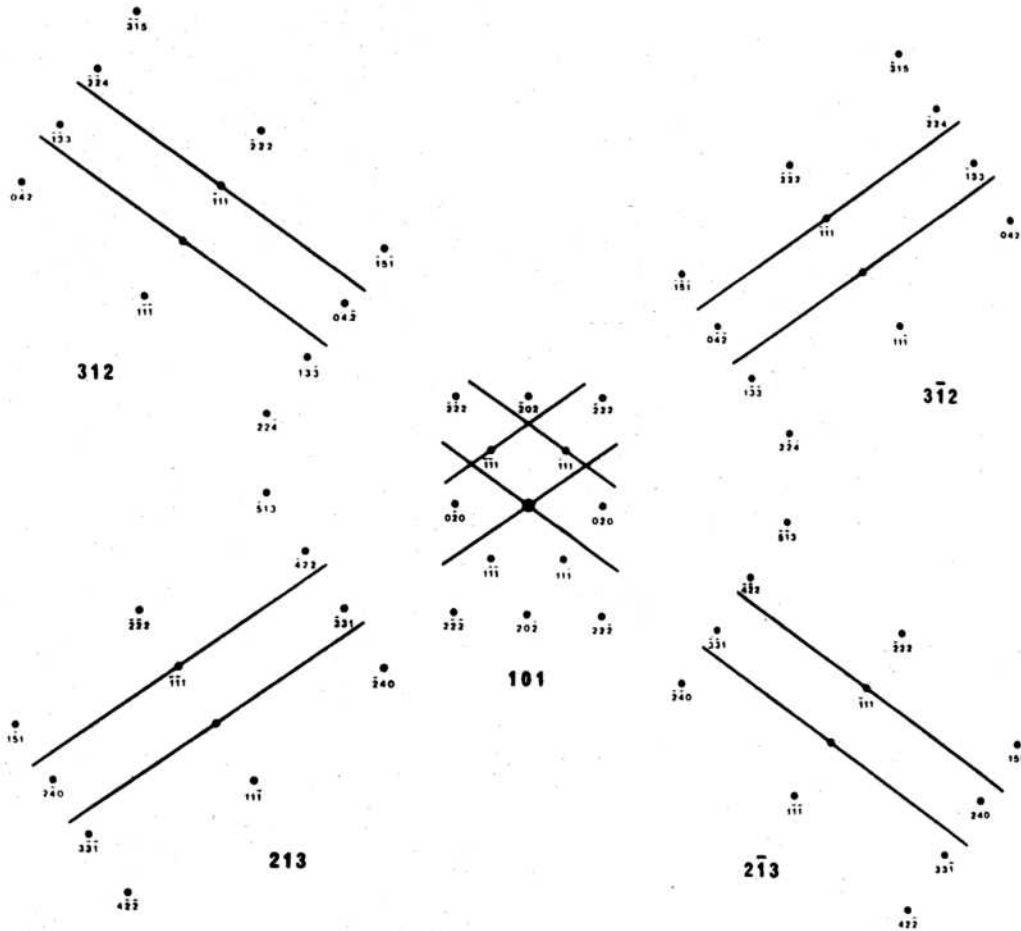


Fig. III.24. Diagramas de difracción de los polos de tipo $\langle 312 \rangle$ a los que se llega siguiendo las bandas de Kikuchi $(\bar{1}11)$ y $(1\bar{1}\bar{1})$ a partir del polo $[101]$.

$$\vec{g} \cdot \vec{b} > 0$$

y esta condición se satisface solamente para el valor positivo de \vec{b}_1

$$\vec{b}_1 = + \frac{1}{2} [011]$$

Este es un vector que está dirigido hacia "afuera" de la lámina delgada, cuya normal es $\vec{n} = [101]$ (Fig. III.24), y el ángulo que forma con la misma es menor que $\pi/2$. Por lo tanto los lazos son de tipo intersticial.

Para eliminar posibles errores debido a que las observaciones se realizaron con la lámina rotada algunos grados fuera del polo $[101]$ se inclinó la lámina a lo largo de la banda de Kikuchi $(\bar{1}11)$ hasta el polo $[2\bar{1}3]$, Fig. III.24. En esta nueva orientación se repitieron las experiencias de cambio de signo de $(\vec{g} \cdot \vec{b})$ s. Las variaciones de contraste observadas fueron las mismas. Como en este caso $\vec{n} = [2\bar{1}3]$ y además

$$\vec{n} \cdot \vec{b}_1 > 0$$

los lazos son efectivamente del tipo intersticial.

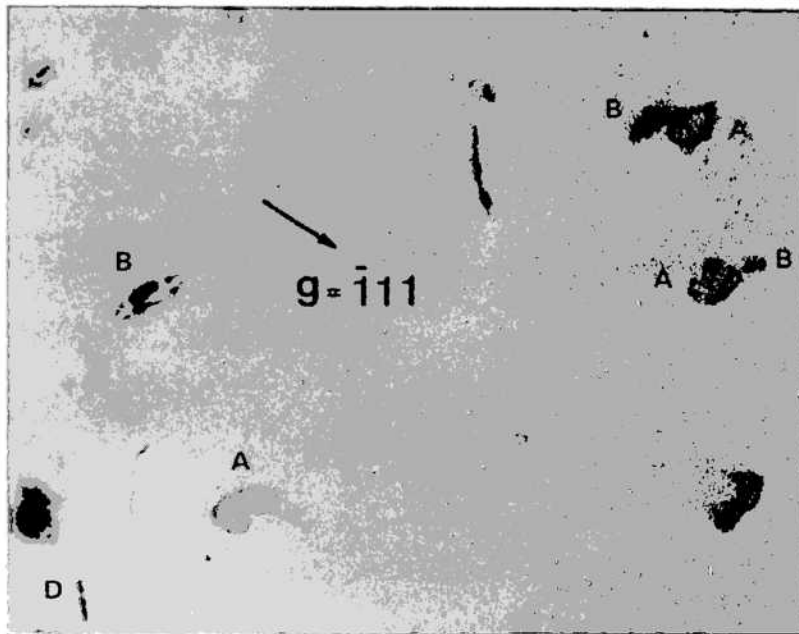
Para los lazos del tipo B el diámetro del contraste es mayor en la reflexión $\vec{g} = (1\bar{1}\bar{1})$, y para que sea $\vec{g} \cdot \vec{b} > 0$ debe ser

$$\vec{b}_2 = \frac{1}{2} [1\bar{1}0]$$

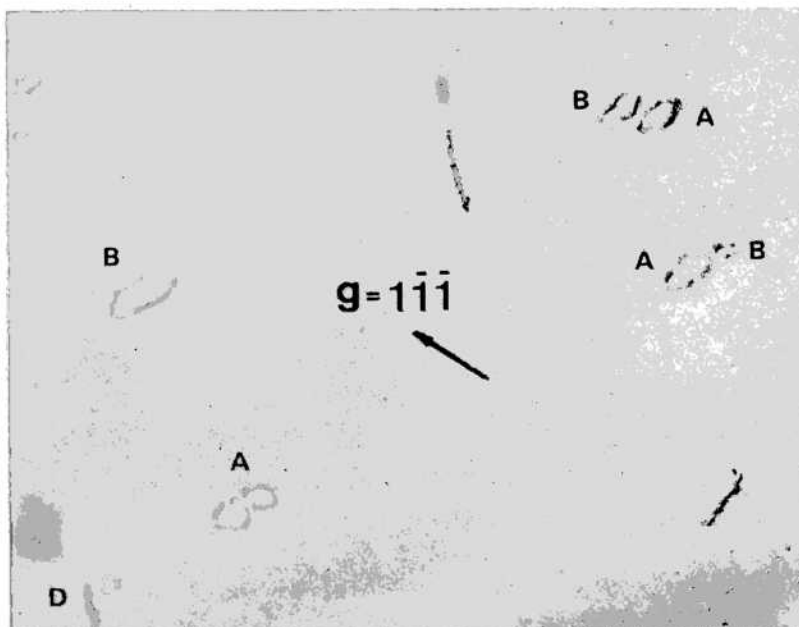
Las experiencias de cambio de signo de $(\vec{g} \cdot \vec{b})$ s fueron repetidas en el polo $[2\bar{1}3]$, con los mismos resultados del caso anterior, confirmando así la naturaleza intersticial de los lazos de este grupo.

2) Los lazos visibles en las reflexiones $(11\bar{1})$ y (020) e invisibles en la reflexión $(\bar{1}11)$ fueron analizados de la misma manera que los anteriores. Las experiencias de variación de contraste se efectuaron sobre el polo $[3\bar{1}2]$, siguiendo la banda de Kikuchi $(11\bar{1})$ (Fig. III.24). Los resultados obtenidos para ambos grupos se resumen en la Tabla III.1, confirmando la naturaleza intersticial de todos ellos.

3) Los lazos visibles en las reflexiones $(11\bar{1})$ y $(\bar{1}11)$ e invisibles en la



a



b

Fig. III.25. Micrograffias correspondientes a una misma zona de una lámina delgada de aluminio irradiado, obtenidas en distintas reflexiones. Con A y B se indican los lazos visibles en las reflexiones $(\bar{1}11)$ y (020) , e invisibles en $g = 11\bar{1}$.

reflexión (020), requieren un análisis diferente de los dos casos anteriores. El único vector de Burger compatible con los criterios de visibilidad mencionados es:

$$\vec{b}_3 = \pm \frac{1}{2} [\bar{1}01]$$

siendo el plano de hábito de estos lazos $(\bar{1}01)$ normal a la superficie de las láminas delgadas y paralelo al haz incidente para orientaciones próximas al polo $[101]$. Para poder realizar las experiencias de contraste variando el signo de $(\vec{g} \cdot \vec{b})_s$, es necesario rotar la lámina hacia una orientación en la cual las imágenes de estos lazos tengan un diámetro apreciable.

TABLA III.1

Visible ($\vec{g} \cdot \vec{b} = \pm 1$)	Invisible ($\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$)	Possible \vec{b}	plano de hábito	($\vec{g} \cdot \vec{b}$) _s > 0	\vec{b}	\vec{n}	$\vec{n} \cdot \vec{b}$	
$\bar{1}\bar{1}\bar{1}$	020	$1\bar{1}\bar{1}$	$\pm \frac{1}{2} [011]$	(011)	$\bar{1}\bar{1}\bar{1}$ (A)	$\frac{1}{2} [011]$	$2\bar{1}3$	> 0
			$\pm \frac{1}{2} [1\bar{1}0]$	($1\bar{1}0$)	$1\bar{1}\bar{1}$ (B)	$\frac{1}{2} [110]$	$2\bar{1}3$	> 0
$1\bar{1}\bar{1}$	020	$\bar{1}\bar{1}\bar{1}$	$\pm \frac{1}{2} [110]$	(110)	$1\bar{1}\bar{1}$	$\frac{1}{2} [110]$	$3\bar{1}2$	> 0
			$\pm \frac{1}{2} [0\bar{1}1]$	($0\bar{1}1$)	$\bar{1}\bar{1}\bar{1}$	$\frac{1}{2} [0\bar{1}1]$	$3\bar{1}2$	> 0

En nuestro caso las observaciones se realizaron en los polos $[213]$ y $[312]$ siguiendo las bandas de Kikuchi $(1\bar{1}\bar{1})$ y $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ respectivamente,

(Fig. III.24) y los datos obtenidos se resumen en la Tabla III.2. Los lazos de este grupo también son de tipo intersticial.

TABLA III.2

Lazos Observados sobre banda	En Reflexiones	$(\vec{g} \cdot \vec{b}) \quad s > 0$	\vec{b}	\vec{n}	$\vec{n} \cdot \vec{b}$
$(11\bar{1})$	$\vec{g} = \bar{1}\bar{1}1$	$\vec{g} = \bar{1}\bar{1}1$	$\frac{1}{2} [\bar{1}01]$	213	> 0
	$\vec{g} = 11\bar{1}$				
$(\bar{1}11)$	$\vec{g} = 1\bar{1}\bar{1}$	$\vec{g} = 1\bar{1}\bar{1}$	$\frac{1}{2} [10\bar{1}]$	312	> 0
	$\vec{g} = \bar{1}11$				

A diferencia de los dos grupos anteriores, no existen aquí dos familias distintas de lazos que presenten alguna diferencia en su contraste, sino que los lazos situados sobre los planos $(\bar{1}01)$ fueron observados en dos orientaciones distintas. El hecho de que los vectores de Burger difieran en signo, según cual sea el sentido de rotación de la lámina, no implica indeterminación en los resultados. Este hecho es simple consecuencia de la convención adoptada para definir el vector de Burger de un lazo de dislocaciones. En efecto, al

rotar la lámina hacia el polo (213) o el (312) siguiendo las bandas $(11\bar{1})$ y $(\bar{1}11)$ respectivamente, los lazos que originalmente eran paralelos al haz electrónico, se inclinan en sentidos opuestos. Si se aplica la convención mencionada al principio, los vectores de Burger así obtenidos resultan de sentidos opuestos, pero en ambos casos el producto $\vec{n} \cdot \vec{b}$ es positivo. En consecuencia \vec{b} no es un vector que rota solidariamente con el lazo, pero caracteriza sin lugar a dudas la naturaleza del mismo.

4) Lazos que presentan una imagen residual en las reflexiones $(\bar{1}11)$, $(1\bar{1}\bar{1})$ y (020) .

Estos lazos están situados sobre los planos (101) , y en todos los casos es $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$. El análisis de contraste utilizado en los tres grupos anteriores no es aplicable a estos lazos, y no es posible obtener información directa acerca de la naturaleza de los mismos mediante las técnicas mencionadas.

III.4. CONTRASTE DE PRECIPITADOS DE UNA SEGUNDA FASE

El análisis del contraste de una segunda fase distribuida en la matriz es uno de los problemas más complejos de la microscopía electrónica. Un precipitado puede dar lugar a distintos tipos de contraste, según su profundidad en la lámina, tamaño, naturaleza o coherencia, además de las condiciones de difracción de la observación.

Un precipitado puede hacerse visible en un microscopio electrónico debido a los efectos de difracción propios, o a la distorsión que origina en la matriz. En el primer caso se alteran la amplitud y la fase de las ondas en las columnas que atraviesan el precipitado, y se dice que el contraste proviene del precipitado. El segundo caso, denominado contraste de la matriz es característico de los precipitados coherentes. El contraste se origina en las distorsiones elásticas de las columnas de la matriz próximas al precipitado.

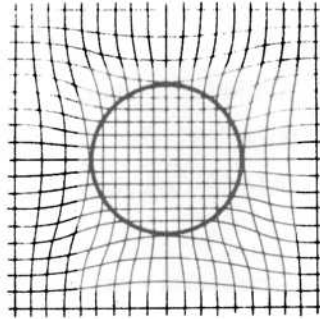
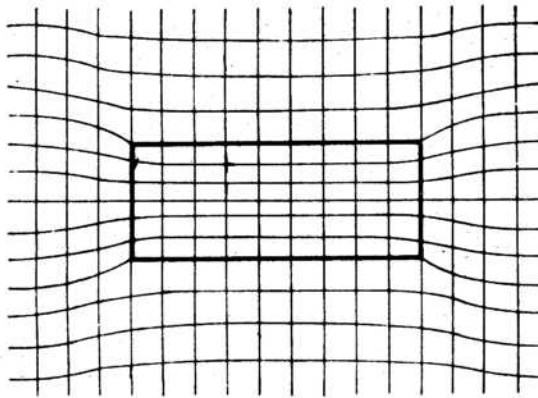
**a****b**

Fig. III.26. (a) Precipitado esférico coherente con la matriz.
(b) Precipitado coherente plano.

III.4.1 Contraste de la Matriz. Precipitados Coherentes

Un precipitado es coherente cuando tiene la misma estructura de la matriz, y existe por lo tanto continuidad de los planos cristalinos a través de la interfase. Como los espaciados cristalinos no son exactamente los mismos, un precipitado coherente introduce una deformación en los planos de la matriz. El desplazamiento $\vec{R}(\vec{r})$ producido por la distorsión sobre las columnas de la lámina delgada introduce un desfase $\alpha(\vec{r}) = 2\pi \vec{g} \cdot \vec{R}(\vec{r})$ que da origen a distintos efectos de contraste, según las características particulares de las dos fases. Resumiremos aquí, a título de ejemplo, los cálculos efectuados por Ashby y Brown (7).

El caso más simple es el de un precipitado esférico de radio r_0 , Fig. III.26 (a), cuyo campo radial de desplazamientos está dado por

$$\begin{aligned} \vec{R} &= \frac{\epsilon r_0^3}{r^3} \vec{r} & \text{para } r > r_0 \\ \vec{R} &= \epsilon \vec{r} & \text{para } r < r_0 \end{aligned} \quad \text{(III.26)}$$

donde el parámetro ϵ es tal que

$$\begin{aligned} \epsilon > 0 & \quad \text{si el precipitado comprime la matriz} \\ \epsilon < 0 & \quad \text{si el precipitado dilata la matriz} \end{aligned} \quad \text{(Fig. III.26 (a))}$$

Como el campo de deformaciones es puramente radial, para toda reflexión \vec{g}_{hkl} siempre existe una línea para la cual es $\vec{g} \cdot \vec{R} = 0$, y el contraste tiene la forma de dos lóbulos separados por una línea denominada de contraste nulo. Los cálculos predicen las siguientes propiedades.

Las imágenes de campo claro son simétricas solamente para precipitados situados en el medio de la lámina delgada. Las imágenes de campo oscuro son siempre asimétricas.

Si el precipitado se encuentra a una distancia menor que $\xi_{hkl}/2$ de las superficies libres de la lámina, las imágenes son anormalmente extendidas, y además asimétricas respecto de



Fig. III.27. Hidruros en una lámina delgada de zirconio - M = 30.000.

la línea de contraste nulo. Las imágenes son idénticas en campo claro y campo oscuro para los precipitados situados cerca de la superficie de la lámina y complementarias si los defectos son cercanos a la superficie de salida del haz.

En campo oscuro la asimetría de las imágenes depende solamente de \vec{g}_{hkl} , y permite diferenciar entre los casos $\epsilon > 0$ y $\epsilon < 0$.

Un precipitado coherente plano produce una deformación de la matriz tal que los desplazamientos atómicos son perpendiculares al plano del disco, Fig. III.26 (b). Los cálculos de contraste se realizan suponiendo que el precipitado es un lazo de dislocaciones de vector de Burger fraccionario $b_p = \epsilon t$, donde t es el espesor de la lámina. Los resultados principales se pueden resumir de esta manera:

- Discos perpendiculares al plano de la lámina delgada presentan una línea de contraste nulo, si \vec{g}_{hkl} es perpendicular al disco.
- Discos paralelos al plano de la lámina presentan siempre una línea de contraste nulo para todas las reflexiones \vec{g}_{hkl} paralelas a la lámina.
- Discos situados cerca de la superficie de la lámina dan origen a imágenes asimétricas. En campo oscuro es posible determinar el signo del parámetro ϵ .
- La extensión de las imágenes de campo oscuro permite calcular el valor de b_p .

III.4.2 Contraste del Precipitado. Partículas Incoherentes

Un precipitado puede ser visible en una micrografía electrónica debido a los siguientes efectos:

- Diferencia de factor de estructura entre el precipitado y la matriz.
- Difracción debido a una orientación favorable de la partícula.
- Desplazamientos producidos en la matriz que originan un cambio de fase brusco en la amplitud de la onda difractada (franja similares a las producidas por una falla de apilamiento).
- Contraste en la interfase.

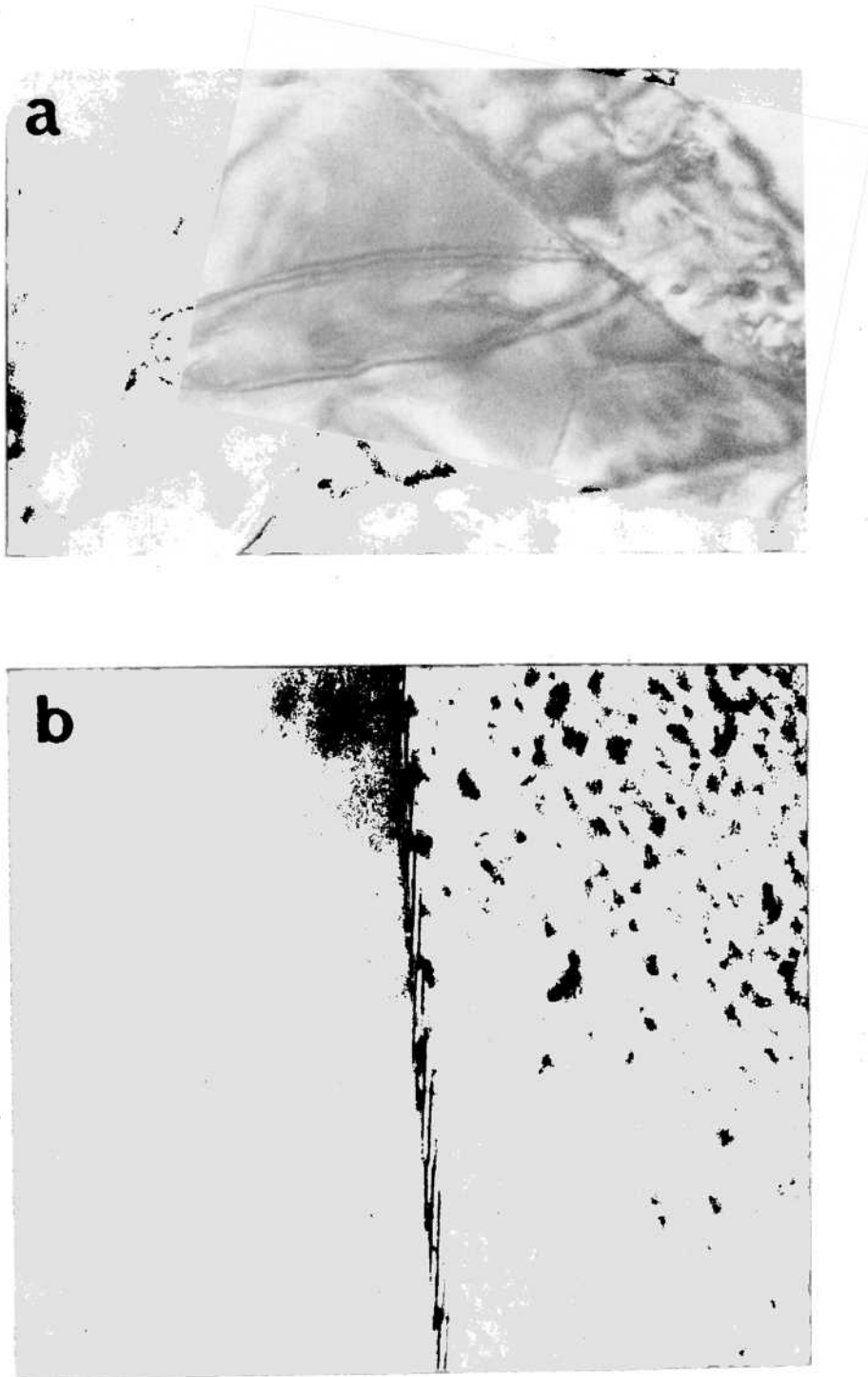


Fig. III.28. a) Franjas de desplazamiento en un precipitado dentro de una lámina delgada de aleación Zr-2.5% Nb. b) Franjas en un límite de grano de una lámina delgada de zirconio. Atención: Raúl A. Versaci

Si los factores de estructura de la matriz y del precipitado son distintos, las distancias de extinción toman valores diferentes. Se puede demostrar que en este caso las columnas que contienen al precipitado, se comportan como si su altura fuera incrementada en un valor

$$\xi_g \Delta t \left(\frac{1}{\xi_p} - \frac{1}{\xi_g} \right) \quad (\text{III.27})$$

donde Δt es el espesor del precipitado, y ξ_p y ξ_g las distancias de extinción del precipitado y la matriz, respectivamente. Se puede demostrar además que para partículas pequeñas ($\Delta t \ll \xi_g$) la variación de la intensidad está dada por

$$\Delta I = - \pi \Delta t \left(\frac{1}{\xi_p} - \frac{1}{\xi_g} \right) \frac{\text{sen } 2\pi t}{\xi_g} \quad (\text{III.28})$$

y por lo tanto el contraste es máximo si la profundidad del precipitado es igual a

$$\frac{t}{\xi_g} = \frac{1}{4}, \frac{3}{4}, \dots$$

Si la lámina delgada se orienta de tal manera que una familia de planos (hkl) del precipitado difracta fuertemente, o viceversa, en la micrografía aparece un contraste uniforme que puede ser oscuro o claro. Este contraste aparece en general en precipitados grandes ($> 1 \mu$) y es el más simple de interpretar. En el diagrama de difracción se observan además una serie de haces adicionales, junto con los correspondientes a la matriz. En la imagen de campo oscuro obtenida con uno de estos haces suplementarios, los precipitados aparecen claros sobre un fondo más oscuro. Además, el análisis detallado del diagrama de difracción permite calcular los espaciados cristalinos

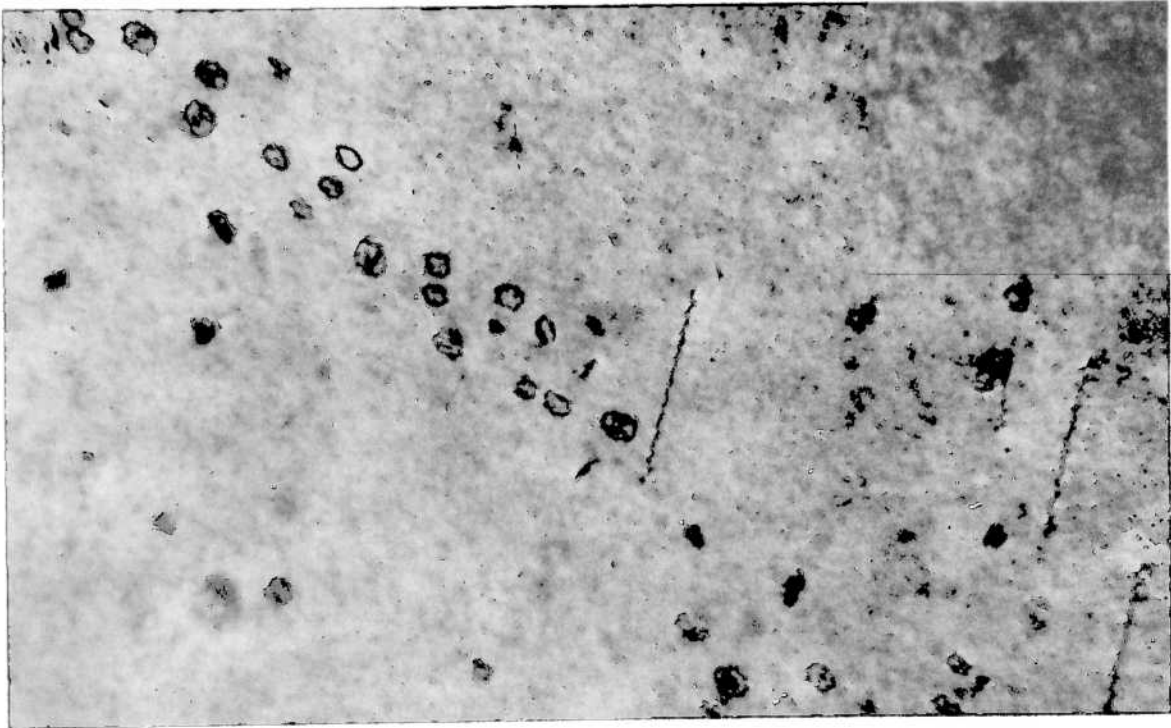


Fig. III.29. Precipitados de forma lenticular en una lámina delgada de aleación Fe - 4.6% Si.- M = 35.000.

d_{hkl} , y en principio, determinar luego la naturaleza del precipitado.

Las franjas de desplazamiento se presentan cuando los desplazamientos de los planos cristalinos de la matriz, producidos por un precipitado dado, son de sentido opuesto a ambos lados del mismo. Este corrimiento de una familia de planos en un cierto vector \vec{R} da origen a un sistema de franjas, que se suelen denominar "franjas de tipo falla de apilamiento". En realidad estas últimas son un caso particular de franjas de desplazamiento que se producen para $\vec{R} = \vec{a}/3 \{111\}$ en una estructura f.c.c.

Los cálculos de contraste (1) indican que en orientaciones alejadas de la posición de Bragg ($s \gg 0$) la periodicidad de las franjas es similar a las franjas de igual espesor, sección III.2.1., correspondientes a una distancia de extinción

$$\xi_g^s = \frac{\xi_g}{(1+s^2 \xi_g^2)^{1/2}} \quad (\text{III.29})$$

Para orientaciones cercanas a la de Bragg, aparecen pequeñas oscilaciones de contraste superpuestas a las anteriores, y la imagen del precipitado consiste en un conjunto de franjas que pueden llegar a ser bastante complejas, Fig. III.27. Cada una de las franjas corresponde a una igual profundidad de la partícula dentro de la matriz. En el caso de un precipitado plano las franjas son paralelas a la línea de intersección con la superficie de la lámina. En todos los casos la visibilidad de las franjas de desplazamiento es máxima cuando la matriz está orientada cerca de una fuerte reflexión de Bragg (hkl).

También se suelen observar franjas en las vecindades de los bordes de un precipitado, si éste o la matriz están orientados cerca de la posición de Bragg. Estas franjas, similares a las franjas de igual espesor, son paralelas a la línea de intersección de la partícula con la superficie de la lámina. Este tipo de contraste se presenta también en la interfase

entre dos granos, Fig. III.28.

Otro efecto de contraste proveniente de la estructura de la interfase, se suele observar en las imágenes de pequeños precipitados, y se presenta en forma de franjas concéntricas más anchas que las franjas de desplazamiento. Estas franjas son circulares para precipitados lenticulares, Fig. III.29, y elípticas si las partículas están inclinadas respecto del haz.

Finalmente, una cavidad o burbuja gaseosa dentro de la matriz puede hacerse visible en las vecindades de las líneas de igual espesor. Una cavidad de diámetro Δr corre el espesor local t de la lámina hasta un valor $t - \Delta r$. De esta manera si la cavidad está situada en una región de espesor $n \xi_0$ (n : entero, ξ_0 : distancia de extinción) aparece más blanca que el fondo. Si por el contrario, si la misma cavidad está ubicada en una zona de espesor $n \xi_0 + \Delta r$, el espesor local es en realidad $n \xi_0$, y aparece entonces negra en un fondo más claro. Este tipo de contraste se observa también en láminas delgadas con micropicaduras en sus superficies debidas a un pulido electrolítico incorrecto.

III.5 IMAGENES PERIODICAS

En ciertas condiciones de operación del microscopio electrónico, y para una orientación favorable de la lámina delgada, es posible observar imágenes periódicas consistentes en franjas, cuyo espaciado e intensidad dependen de la estructura de la muestra.

III.5.1 Resolución directa de planos cristalinos

Si la apertura de objetivo se coloca de tal manera que el haz transmitido más uno difractado (hkl) contribuyen a formar la imagen, la amplitud de la onda total está dada por la expresión

$$A = e^{2ni \vec{k} \cdot \vec{r}} + A_g e^{2ni \vec{k}' \cdot \vec{r}}$$

donde \vec{k} es el vector de onda del haz transmitido y

$$\vec{k}' = \vec{k} + \vec{g}$$

es el vector de la onda difractada por el cristal. Entonces

$$A = e^{2\pi i \vec{k} \cdot \vec{r}} + A_g e^{2\pi i (\vec{k} + \vec{g}) \cdot \vec{r}} = e^{2\pi i \vec{k} \cdot \vec{r}} (1 + A_g e^{2\pi i \vec{g} \cdot \vec{r}})$$

Expresando

$$A_g = R e^{i\delta}$$

la intensidad total resulta

$$I = |A|^2 = \left| 1 + R e^{2\pi i \vec{g} \cdot \vec{r} + i\delta} \right|^2 = 1 + R^2 + 2R \cos (2\pi \vec{g} \cdot \vec{r} + \delta) \quad (\text{III.30})$$

Recordando la expresión III.9 de la amplitud de la onda difractada

$$A_g = \frac{F}{r} \frac{\text{sen } \eta s t}{\eta s t} e^{-i\eta s t}$$

y omitiendo los factores F y r, entonces

$$R = \frac{\text{sen } \eta s t}{\eta s t}, \quad \delta = -\eta s t$$

Como el vector \vec{g} es prácticamente perpendicular al haz incidente, se puede elegir una cierta coordenada x paralela a \vec{g} sobre un plano normal al haz, de tal manera que

$$2\pi \vec{g} \cdot \vec{r} = 2\pi g x = 2\pi \frac{x}{d}$$

donde d es el espaciado cristalino representado por el vector \vec{g} . La intensidad total III.30 se expresa finalmente

$$I = 1 + R^2 + 2R \cos \left(2\pi \frac{x}{d} - \eta s t \right) \quad (\text{III.31})$$

Para valores fijos de s y t, esta expresión representa una intensidad constante, más una modulación en la dirección x cuya periodicidad es precisamente d, el espaciado de la familia de planos cristalinos (hkl) que origina el haz difractado. La imagen está compuesta por franjas de espaciado d, lo

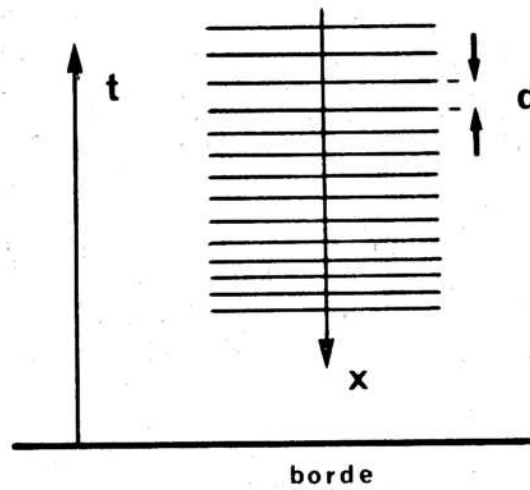
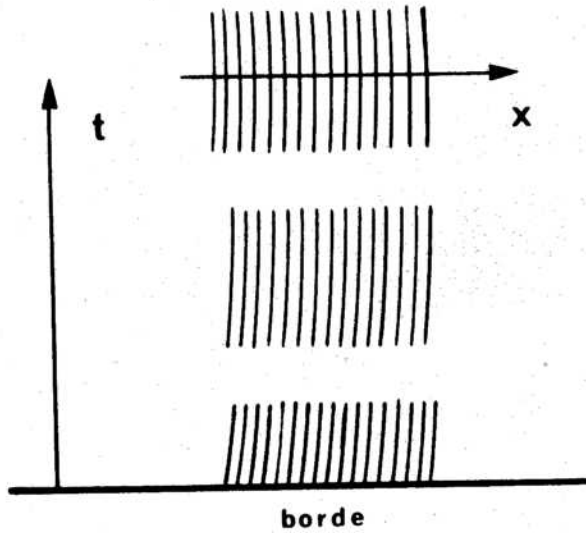


Fig. III.30. Variación del espaciado d en la resolución directa de planos cristalinos, con la geometría de la lámina delgada.

(a) Franjas perpendiculares al borde de la lámina. Las franjas se curvan al variar el espesor t de la lámina.

(b) Franjas paralelas al borde de la lámina. El espaciado d varía con el espesor t .

que de cierta manera significa una "resolución" directa de los planos cristalinos. Esta imagen periódica se obtiene si la imagen es formada por el haz directo más, por lo menos, un haz difractado. Si otros haces difractados pasan a través de la apertura de objetivo, pueden aparecer varios sistemas de franjas simultáneamente.

La visibilidad de las franjas depende de la orientación s y el espesor t de la lámina. Para

$$\eta st = n\eta \quad \text{es } R = 0$$

y desaparece la modulación. Por el contrario, para

$$\eta st = n\eta + \frac{\eta}{2} \quad R : \text{máximo}$$

y la amplitud de las franjas es máxima. También es necesario notar que la posición de las franjas no guarda una correspondencia simple con la posición real de los planos cristalinos. Por ejemplo si consideramos franjas cercanas al borde de la lámina, Fig. III.30 (a), y perpendiculares el mismo, a medida que t varía, también varía el valor de x para el cual la intensidad es máxima, y las franjas se curvan. Además, la variación de t origina una variación de la visibilidad y entonces puede haber desplazamiento en los máximos de intensidad. Por otro lado, si las franjas son paralelas al borde, Figura III.30 (b), entonces t varía con x y el espaciado de las franjas pasa de \underline{d} a un cierto valor que depende de la variación local de \underline{t} y \underline{x} .

Si un instrumento puede resolver las imágenes periódicas correspondientes a una familia de espaciado d , no significa que pueda resolver dos puntos separados por esa distancia d , puesto que la "resolución directa" de planos cristalinos es en realidad un efecto de interferencia entre el haz transmitido y el difractado. Actualmente ya se han obtenido imágenes de planos cuyos espaciados son del orden de 1 \AA , con instrumentos cuya resolución real es del orden de los 4 \AA .

En la Figura III.31 se muestra una imagen de planos cristalinos separados por una distancia de 82.2 \AA correspondiente a la enzima orgánica denominada "catalasa".

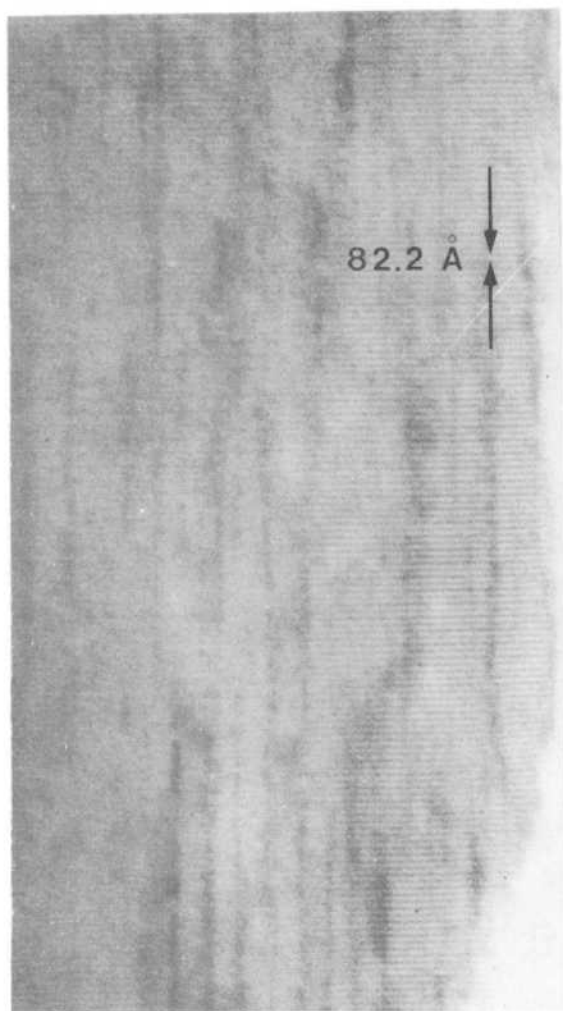


Fig. III.31. Resolución directa de planos cristalinos de la enzima catalasa.

III.5.2 Resolución indirecta de planos cristalinos. Franjas de Moiré

La estructura periódica de un cristal puede ponerse en evidencia también por medio de diagramas de interferencia producidos por cristales superpuestos, aún cuando los espaciados de cada uno de ellos estén por debajo de la resolución del microscopio. Este fenómeno se llama "resolución indirecta" de la red cristalina.

La formación de estos diagramas, llamados de Moiré, puede considerarse como un efecto puramente geométrico. En la Figura III.32 se muestra una analogía óptica que representa la superposición de dos reticulados distintos. En la Figura III.32 (a) los dos reticulados son paralelos pero difieren en el espaciado, y su superposición directa produce un nuevo reticulado ficticio. El nuevo espaciado D está relacionado con los espaciados d_1 y d_2 originales por

$$D = \frac{d_1 d_2}{|d_1 - d_2|} \quad (\text{III.32})$$

El diagrama de Moiré representa la periodicidad según la cual los dos espaciados están en coincidencia, y el valor de D puede llegar a ser suficientemente grande como para poder resolverse en el microscopio electrónico, aunque d_1 y d_2 estén por debajo del límite de resolución del instrumento. Este diagrama se llama más precisamente "diagrama de Moiré paralelo" para distinguirlo del "diagrama de Moiré por rotación", esquematizado en la Figura III.32 (b). En este último caso los dos reticulados tienen igual espaciado d , pero están rotados en un pequeño ángulo uno respecto del otro. El diagrama de Moiré así formado resulta aproximadamente perpendicular a las líneas de los dos espaciados originales, y tiene un nuevo espaciado dado ahora por

$$D = \frac{d}{2 \sin \frac{\alpha}{2}} \quad (\text{III.33})$$

que normalmente se puede aproximar por

$$D = \frac{d}{\alpha}$$

Se suele definir un factor de magnificación de Moiré M , dado por

$$M = \frac{D}{d}$$

Para diagramas de rotación es

$$M = \frac{1}{\alpha}$$

mientras que para diagramas de Moiré paralelos

$$M = \frac{d}{|d_1 - d_2|}$$

si se supone que

$$d_1 \approx d_2 \approx d$$

La superposición de dos reticulados de diferente espaciado, rotados ligeramente entre sí en un ángulo α da origen a los diagramas de Moiré mixtos.

$$D \approx \frac{d_1 d_2}{\left[(d_1 - d_2)^2 + d_1 d_2 \alpha^2 \right]^{1/2}}$$

Las analogías ópticas de la Figura III.34 pueden extenderse al estudio de redes cristalinas, considerando que los dos reticulados son las proyecciones de los planos atómicos de dos cristales superpuestos. El diagrama de Moiré se produce entonces por la superposición de las resoluciones directas de las dos familias de planos, suponiendo que éstas puedan formarse. Puede demostrarse que la condición para que se forme un diagrama de Moiré es que un haz que ha sido difractado una vez por las dos familias de planos cristalinos contribuya a la imagen. Este resultado se puede ilustrar de la siguiente manera. Supongamos que P sea el haz difractado por la familia de planos de espaciado d_1 del cristal situado arriba, y que éste a su vez es difractado por el cristal inferior, por planos de espaciado d_2 , Figura III.33 (a), dando

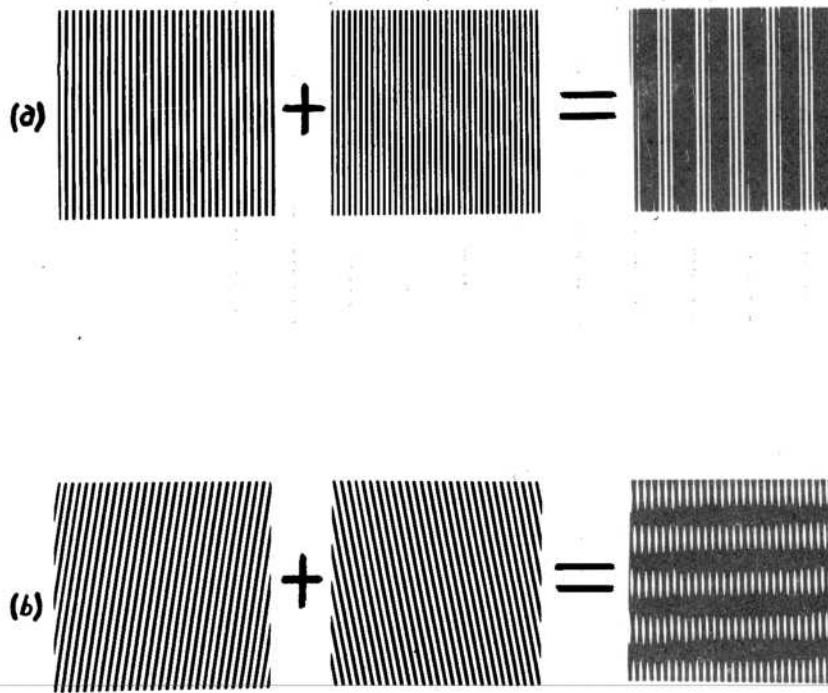
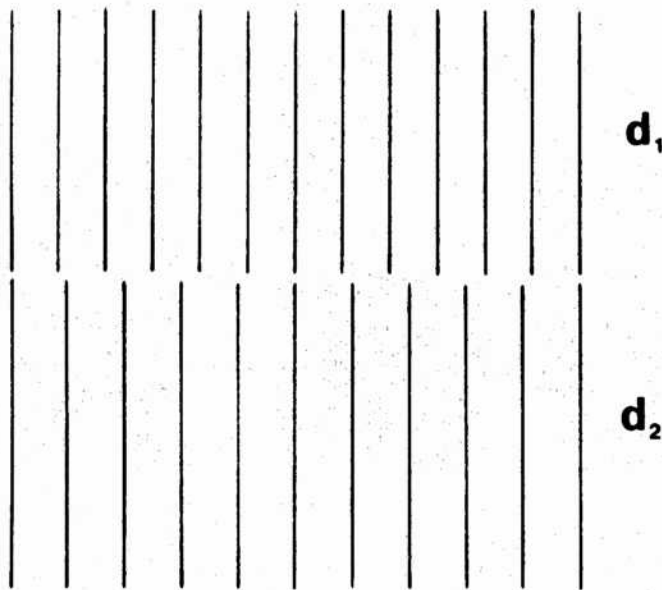
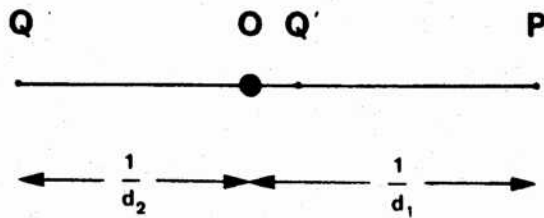


Fig. III.32. Analogía óptica para demostrar la formación de franjas de Moiré por la superposición de dos sistemas de franjas periódicas.
 (a) diagramas de Moiré paralelos - (b) diagramas de rotación.



a



b

Fig. III.33. (a) Esquema de formación de franjas de Moiré por la superposición de dos cristales de espaciados diferentes d_1 y d_2 . (b) Si P es el haz difractado por la familia de planos de espaciado d_1 , y éste a su vez es difractado por el cristal inferior, se origina el haz Q' en el diagrama de difracción. Este corresponde a un haz difractado por una familia de espaciado

$$\frac{d_1 d_2}{d_2 - d_1}$$

que es el espaciado de las franjas de Moiré.

origen al punto Q'. El caso ilustrado corresponde a $d_2 > d_1$.

El nuevo punto Q' equivale al punto original Q, cuando el origen se corre desde O hasta P. Si

$$OP = \frac{1}{d_1} \quad OQ = \frac{1}{d_2}$$

resulta inmediatamente que

$$OQ' = OP - OQ = \frac{1}{d_1} - \frac{1}{d_2} = \frac{d_2 - d_1}{d_1 d_2}$$

Entonces Q' corresponde a un haz difractado por una familia ficticia de planos cristalinos de espaciado

$$\frac{d_1 d_2}{d_2 - d_1}$$

que es precisamente el espaciado de las franjas de Moiré.

Un cálculo similar puede hacerse para los diagramas de rotación, Figura III.34(a). El punto P corresponde a la familia de planos de espaciado d correspondientes al cristal superior. Este haz a su vez es difractado por los planos de igual espaciado d del cristal inferior, dando origen al punto Q'. La distancia OQ' es ahora

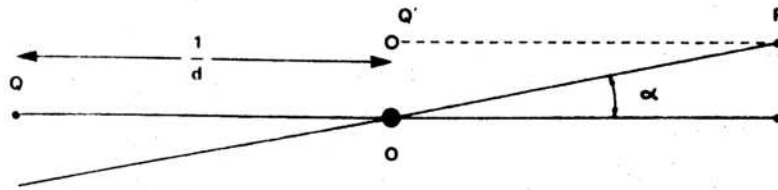
$$OQ' = \frac{1}{d} 2 \operatorname{sen} \frac{\alpha}{2}$$

El punto Q' corresponde a la difracción por una familia ficticia de planos de espaciado

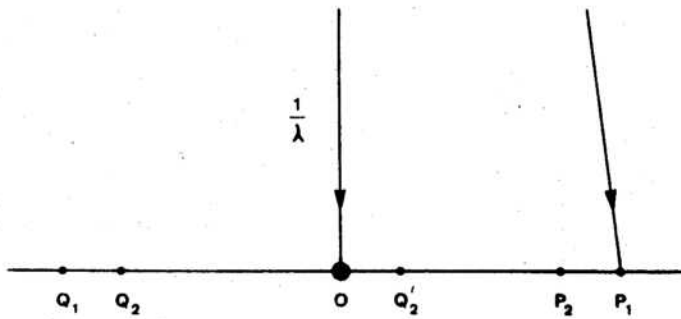
$$D = \frac{d}{2 \operatorname{sen} \frac{\alpha}{2}}$$

Un diagrama de Moiré, sea éste paralelo o de rotación, se origina a partir de la combinación del haz transmitido con un haz doblemente difractado.

Dado que la formación de diagramas de Moiré depende del fenómeno de doble difracción, es importante considerar la probabilidad para que ocurra



a



b

Fig. III.34. (a) Esquema de formación de franjas de Moiré de rotación. El haz P corresponde a una reflexión del cristal superior. Este haz es a su vez difractado por los planos de igual espaciado del cristal inferior, dando origen al haz Q'_2 que corresponde a la familia de espaciado $d/(2 \text{ sen } \alpha / 2)$. (b) Esquema que demuestra que las condiciones para la formación de franjas de Moiré no son demasiado estrictas. Si la esfera de Ewald contiene a la reflexión P_1 es altamente probable que contenga también al haz doblemente difractado Q'_2 .

esta doble difracción. Consideremos por ejemplo diagramas de Moiré paralelos. En la Figura III.34 (b) se muestran los puntos de la red recíproca P_1 y Q_1 correspondientes al cristal 1, y P_2 y Q_2 correspondientes al cristal 2. Supongamos que la esfera de reflexión pasa exactamente a través del punto P_1 y origina un haz difractado que pasa al cristal 2. Si consideramos este haz como incidente a su vez sobre el cristal 2, entonces, para ver qué nuevos haces pueden originarse a partir de éste, se traslada el origen de la red recíproca al punto P_1 , desplazando todos los puntos hacia la derecha, en una distancia igual a OP_1 . El punto Q_2 pasará entonces a la posición Q'_2 , el punto Q_1 a la posición O , y así sucesivamente. Ahora bien, la curvatura de la esfera de Ewald es mucho menor que la indicada en la Fig. III.34 (b) y los nodos de la red recíproca se extienden perpendicularmente a las superficies de la lámina delgada en una extensión igual a $1/t$ (t : espesor de la lámina). Estos dos factores son suficientes para que la esfera de reflexión contenga al punto Q'_2 . Además, con un pequeño giro de la muestra, siempre se puede llevar la esfera aún más cerca de Q'_2 sin alejarla demasiado de P_1 . Es decir que las condiciones para que exista una doble difracción no son demasiado estrictas, si la lámina observada es delgada.

Las franjas de Moiré son siempre perpendiculares a la línea que une los dos haces difractados que se combinan para originarlas, por supuesto teniendo en cuenta las rotaciones relativas entre imagen y diagrama de difracción en el microscopio electrónico. Este hecho permite identificar rápidamente el origen de cualquier diagrama de Moiré y también distinguir entre diagramas paralelos y de rotación. Además los diagramas paralelos son paralelos a las dos familias de planos que los originan, mientras que los diagramas de rotación son perpendiculares a los mismos. En la Figura III.35 se muestra un ejemplo de franjas de Moiré paralelas.

III.5.3 Efecto de las imperfecciones cristalinas sobre las imágenes periódicas

Consideremos ahora el efecto de una pequeña rotación en los diagramas de Moiré paralelos. Si los dos cristales están rotados en un ángulo θ sus diagramas de difracción también estarán rotados en el mismo ángulo θ , Fig. III.36. Pero el punto Q' producido por la doble difracción rota en un ángulo ω mucho más grande que θ , y pasa a la posición Q'' . El ángulo ω está dado por:

$$\omega = \frac{Q'Q'}{OQ'} = \frac{\frac{1}{d_2} \theta}{\frac{|d_2 - d_1|}{d_1 d_2}} = \frac{d_1}{|d_1 - d_2|} \theta = M \theta$$

Es decir que la rotación de las franjas resulta también magnificada por el mismo factor de magnificación de Moiré M . Las franjas de Moiré son así muy sensibles a una pequeña rotación entre los reticulados. Este hecho permite detectar la presencia de dislocaciones en alguno de los dos reticulados, aún cuando las distorsiones introducidas por la dislocación en sus vecindades sean muy pequeñas. Se puede demostrar que si la rotación se produce en el cristal de menor espaciado, las franjas de Moiré rotan en el mismo sentido mientras que si el cristal de mayor espaciado es el que rota, las franjas rotan en sentido contrario.

Las imágenes periódicas de la red cristalina (resolución directa) también proveen un método muy directo para detectar y analizar imperfecciones, ya que estas imágenes ponen en evidencia la manera en la cual se perturba la periodicidad de la red. Se pueden hacer así observaciones directas de dislocaciones y fallas de apilamiento.

Consideremos la resolución directa, como una proyección de los planos atómicos. Entonces, para determinar el efecto de una dislocación en una familia dada de planos, basta con proyectar los planos que contienen la dislocación. Si observamos las franjas correspondientes a un cristal perfecto, y movemos una dislocación desde un extremo hasta la mitad de la micrografía, entonces las franjas de un lado de la imagen estarán desplazadas respecto de las otras en una distancia igual a la componente del vector de Burger \vec{b} normal a los planos (hkl) cuya imagen se está observando. Es decir que un cierto número N de franjas termina bruscamente sobre la zona de la dislocación. Se puede demostrar fácilmente que

$$N = \vec{g} \cdot \vec{b}$$

Entonces la característica principal de la imagen directa de una dislocación es la presencia de N franjas que se interrumpen bruscamente. Para una dislocación perfecta, N es siempre un número entero. El mismo resultado es válido para una dislocación de hélice, a pesar de que ésta no contiene ningún



Fig. III.35. Dislocaciones interfaciales, y franjas de Moiré (indicadas con una flecha) en distintos precipitados de una aleación Zr-2.5% Nb templada y recocida - $M = 70.000$. Atención: Raúl A. Versaci.

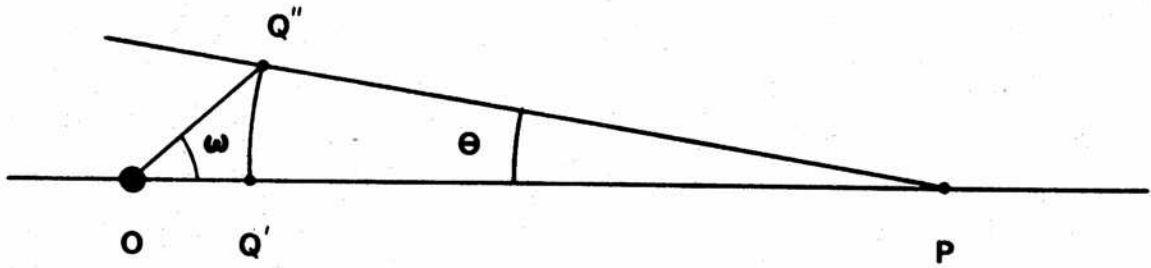


Fig. III.36. Efecto de una pequeña rotación θ de uno de los reticulados que da origen al diagrama de Moiré paralelo. El punto Q' producido por doble difracción pasa a una nueva posición Q'', rotada en un ángulo $\omega = M\theta$. Las franjas de Moiré resultan así muy sensibles a una pequeña distorsión cristalina, permitiendo detectar la presencia de dislocaciones y otros defectos.

tipo de plano extra como la de borde. De esta manera el número N de franjas interrumpidas es una medida de la componente del vector de Burger, pero de ninguna manera es una indicación del carácter de la dislocación.

También es interesante notar que la condición de visibilidad de una dislocación en resolución directa, es idéntica a la que se aplica normalmente en el contraste por difracción. Una dislocación es invisible si el número de franjas N es cero, o sea $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$. La razón de esta correspondencia es muy sencilla. En ambos casos el contraste depende de las **distorsiones** introducidas en los planos (hkl) en las vecindades de la dislocación, y estas distorsiones solamente son apreciables si el vector de Burger tiene una componente no nula en la dirección normal a estos planos.

Consideremos ahora la resolución indirecta de planos cristalinos. Habíamos visto ya la sensibilidad de estos diagramas frente a pequeñas rotaciones (o en general distorsiones) locales de una de las redes cristalinas que los originan. Esto se puede ver inmediatamente en las analogías ópticas esquematizadas en las Figs. III.37 (a) y (b) para los diagramas paralelos y de rotación. Estos resultados geométricos son consecuencia de las pequeñas rotaciones de una red respecto de la otra. A partir de estas imágenes geométricas se pueden deducir también las siguientes propiedades:

- El número de franjas interrumpidas en un diagrama de Moiré formado por planos (hkl) , es igual al número N de franjas interrumpidas en el caso de la resolución directa de los mismos planos.
- Si la dislocación pertenece a la red de menor espaciado, en el caso paralelo, la dislocación en el diagrama de Moiré tiene el mismo signo. Si la dislocación está en la red de mayor espaciado, la dislocación de Moiré resultante tiene signo opuesto.
- Para dos dislocaciones superpuestas (una en cada cristal), el número de franjas interrumpidas es la diferencia entre los valores de N de cada una de las dislocaciones, si éstas son de igual signo. Si las dislocaciones son de signo opuesto, el número de franjas interrumpidas es igual a la suma de las franjas interrumpidas individuales.
- Si las dislocaciones son parciales, es decir aquellas cuyo vector de Burger \vec{b} no es un período de traslación de la red, valen la mismas consideraciones excepto que N puede ser un número fraccionario.

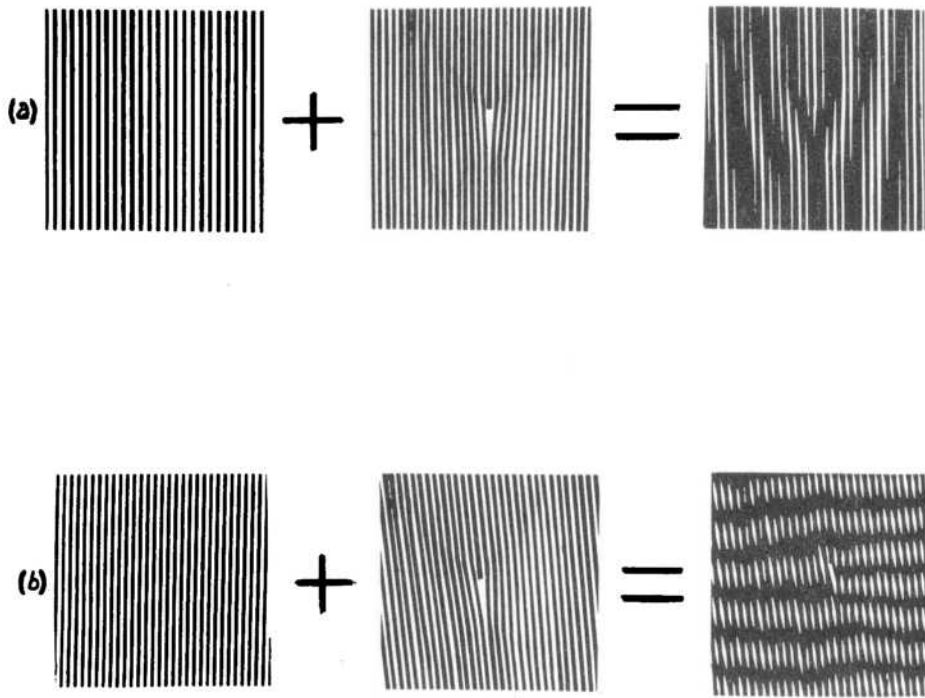


Fig. III.37. Analogía óptica que muestra como puede hacerse visible una dislocación de borde por medio de las franjas de Moiré.
(a) Diagramas paralelos - (b) Diagramas de rotación.

REFERENCIAS

- 1 A. Howie, P.B. Hirsch, R.B. Nicholson, D.W. Pashley, M.J. Whelan, "Electron Microscopy of Thin Crystals", Butterworths, 1965.
- 2 "Cristalografía y Difracción de Rayos X", A.F. Bonfiglioli, PMM/A-1, Departamento de Metalurgia, CNEA, Buenos Aires, 1970.
- 3 J.P. Hirth y J. Lothe, "Theory of Dislocations", McGraw Hill, 1968.
- 4 D.J. Mazey, R.S. Barnes y A. Howie, Phil.Mag.7 (1962), 1861.
- 5 A. Howie y M.J. Whelan, Proc.Roy.Soc. A 263 (1961), 217.
- 6 "Determinación de la Naturaleza de Lazos de Dislocaciones Utilizando Técnicas de Microscopía Electrónica", A.A. Pochettino y M. Ipohorski, CNEA/TE 30/123, Buenos Aires, 1974.
- 7 M.F. Ashby y L.M. Brown, Phil. Mag. 8 (1963), 1083.

IV.1. CAMPO OSCURO

Las observaciones en campo oscuro constituyen una de las técnicas usuales de la microscopía electrónica de láminas delgadas cristalinas. Una micrografía en campo oscuro se obtiene desplazando la apertura de objetivo de tal manera que uno de los haces difractados contribuya a formar la imagen electrónica. Veremos a continuación algunas de las aplicaciones más corrientes de esta técnica.

IV.1.1 Imágenes múltiples en campo oscuro

En la Figura IV.1 se muestra esquemáticamente la marcha de rayos en la lente objetivo, en el caso de difracción por un área selecta. La apertura de difracción está situada en el plano imagen del objetivo. La lente siguiente (intermedia) está focalizada también en este plano, de manera que en la pantalla final tenemos la imagen del área seleccionada. Si se reduce la excitación de la lente intermedia hasta que ésta focalice sobre el plano focal imagen del objetivo, se obtiene en la pantalla el diagrama de difracción del área anterior.

Si se aumenta ahora la excitación de la lente intermedia, es decir si se focaliza debajo del plano focal PQ, cada haz de difracción aumenta de tamaño y constituye una imagen de bajo aumento del área seleccionada de la muestra. Este ajuste de la lente intermedia puede continuarse hasta que cada imagen individual aumente lo suficiente como para tocar su vecina próxima, es decir hasta que focaliza sobre un plano como el RS en la figura.

El sistema de imágenes múltiples formados de esta manera consiste en una imagen de campo claro (haz directo) rodeada de todas las imágenes de campo oscuro, correspondientes a la misma zona de la muestra. Las imágenes múltiples de campo oscuro como las mencionadas son muy útiles en el sentido de que simultáneamente presentan la imagen de campo claro, las imágenes de campo oscuro, y el diagrama de difracción. En efecto, los centros de las imágenes individuales están dispuestas de la misma manera que los haces en el diagrama de difracción.

Además, no existe rotación relativa entre las imágenes y el diagrama de difracción y solamente hay que tener en cuenta la inversión de 180° . Se pueden así determinar fácilmente direcciones cristalográficas de defectos o

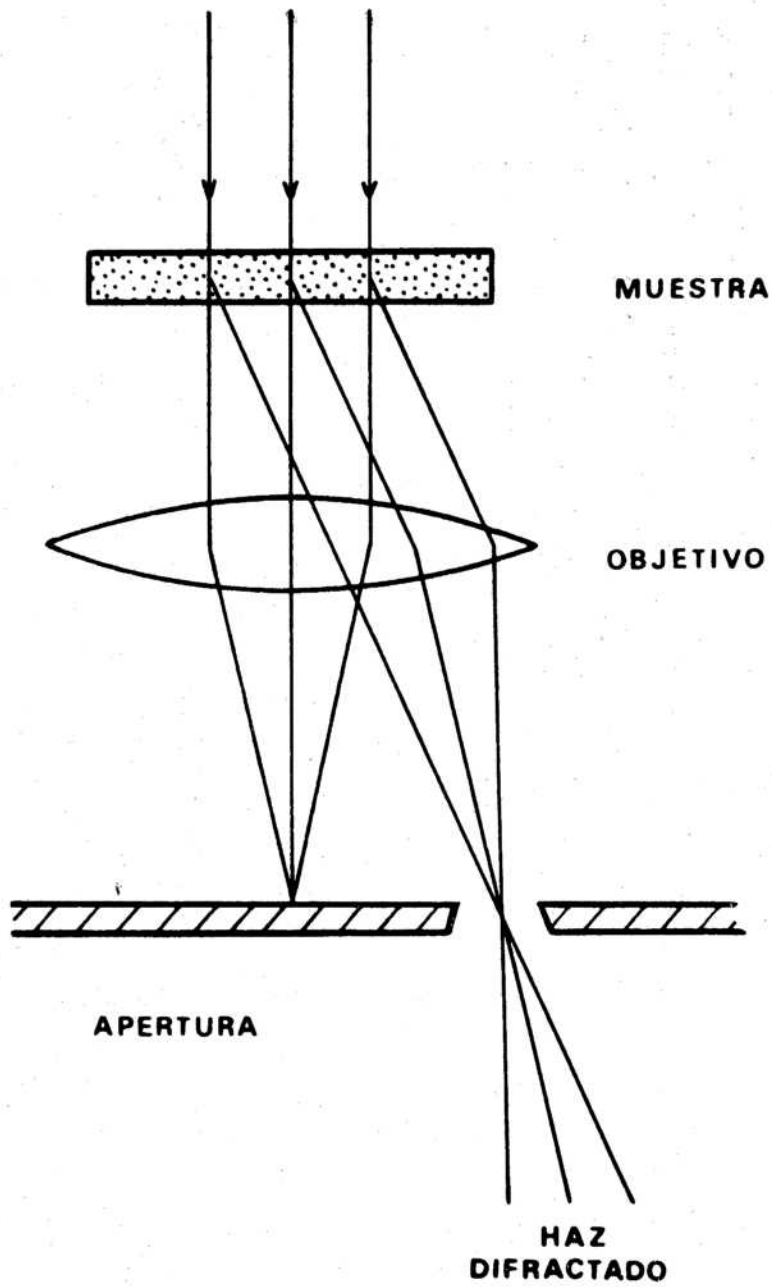


Fig. IV.1. Esquema de formación de una imagen de campo oscuro. La apertura de objetivo se desplaza de tal manera que un solo haz difractado contribuya a formar la imagen electrónica.

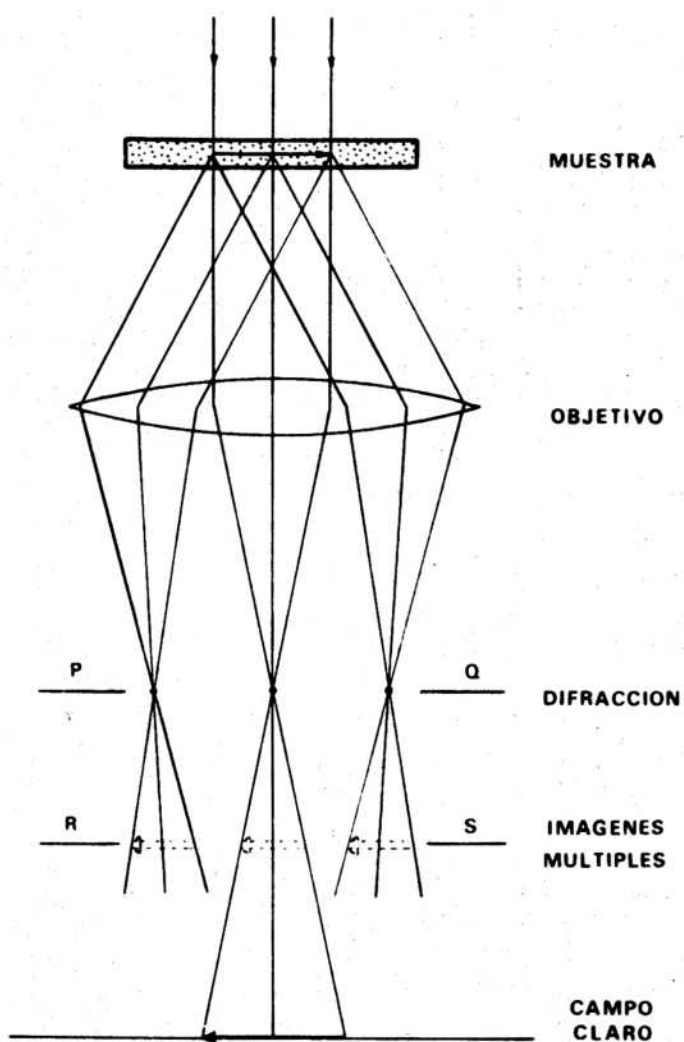


Fig. IV.2. Imágenes múltiples en campo oscuro. La imagen de campo claro (haz directo) aparece rodeada por las imágenes de campo oscuro. Los centros de estas imágenes están dispuestos de la misma manera que el diagrama de difracción.

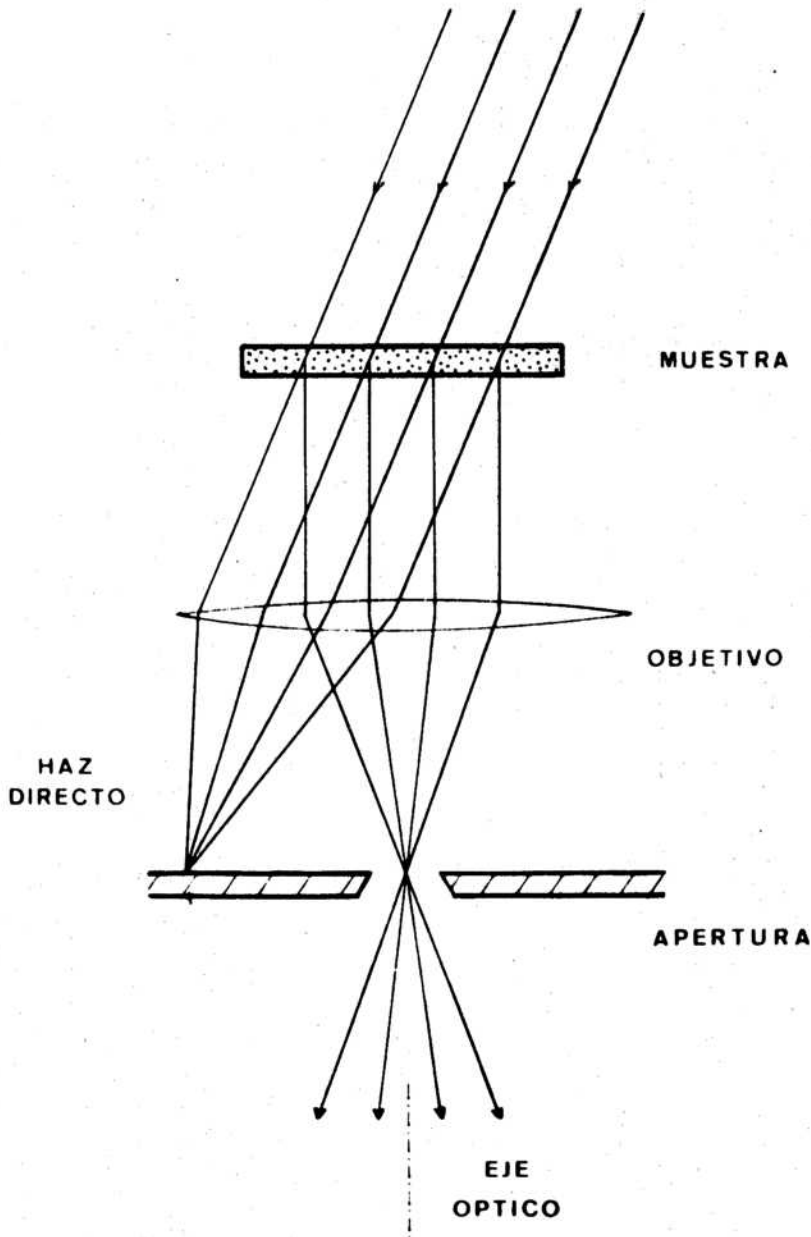


Fig. IV.3. Campo oscuro, apertura desplazada. La apertura de objetivo se desplaza sobre el plano focal imagen de manera que la imagen sea formada por un haz difractado. El haz incidente sobre la muestra se inclina para que el haz difractado sea paralelo al eje óptico del microscopio.

precipitados puesto que toda la información necesaria para ello aparece en una única micrografía.

IV.1.2 Campo oscuro. Apertura desplazada

Si se necesita observar áreas de más de 1μ de diámetro con un cierto detalle, o si se trabaja con aumentos mayores que unos 10000 x sobre la pantalla, entonces las imágenes múltiples ya no son convenientes. Lo que se hace entonces, y éste es el método comúnmente conocido como campo oscuro, es seleccionar un haz difractado desplazando la apertura de objetivo, Fig. IV.2 y operar el microscopio de manera convencional con el aumento que se desea, pero la imagen de campo oscuro así obtenida es altamente astigmática, debido al efecto de aberración esférica sobre un haz inclinado respecto del eje óptico.

Este efecto puede evitarse si el sistema de iluminación se inclina de tal manera que el haz difractado elegido pase por el eje óptico, de la misma manera que lo hace el haz incidente cuando se opera en campo claro. Con este ajuste, la resolución de la imagen de campo oscuro es igual que la de campo claro.

La mayoría de los microscopios electrónicos modernos poseen dispositivos para variar la inclinación del haz incidente sobre la muestra. En particular el Philips EM 300 tiene incorporado un sistema de bobinas deflectoras de manera que este procedimiento se realiza cómodamente mediante controles eléctricos.

Dado que una imagen de campo oscuro revela aquellas partes de la muestra que contribuyen al haz difractado elegido para formar la imagen, esta técnica permite determinar el origen de cualquier haz difractado. Esta información es sumamente importante para la interpretación del diagrama de difracción de una muestra que contiene dos o más fases cristalinas. Un caso común es el de una aleación que contiene una fase precipitada de tamaño tan pequeño que no es posible obtener el diagrama de difracción individual de uno solo de ellos. Cada precipitado da origen al diagrama particular correspondiente a su orientación y el diagrama resultante es en general difícil de interpretar.

Pero mediante técnicas de campo oscuro, pueden identificarse los precipitados que dan origen a cada haz difractado y así un diagrama complejo pue-

de separarse en sus componentes originales, cada una de las cuales puede identificarse con facilidad. Una vez interpretados cada uno de estos diagramas elementales, puede incluso determinarse la orientación relativa de los precipitados respecto de la matriz.

IV.1.3 Contraste en una micrografía de campo oscuro

El contraste producido en campo claro por alguna distorsión cristalina (dislocación, precipitado, etc.) depende fuertemente de las condiciones de difracción (orientación) de la muestra.

Sin embargo no siempre es fácil determinar exactamente las condiciones de difracción bajo las cuales se obtiene un determinado contraste en una imagen de campo claro. Por ejemplo en la aproximación de dos haces, siempre existen reflexiones que, aunque débilmente excitados, influyen de alguna manera sobre la imagen. Estas dificultades no existen en campo oscuro, puesto que la reflexión que opera es única y está perfectamente definida. Así puede determinarse el contraste debido a una sola reflexión cristalina. Este tipo de micrográficas son sumamente útiles para la determinación del vector de Burger de una dislocación (1).

Como una imagen de campo oscuro está controlada por un solo haz difractado, presenta generalmente más contraste que la correspondiente imagen de campo claro. Esta última depende de los distintos haces que puedan estar presentes. Por lo tanto es muy ventajoso utilizar técnicas de campo oscuro para observar defectos que presentan muy bajo contraste en campo claro, caso de precipitados muy pequeños.

Otro hecho que debe tenerse en cuenta es la influencia de la contaminación de la muestra durante las observaciones. Las moléculas de hidrocarburos existentes dentro de la columna de un microscopio al ser bombardeadas por el haz electrónico, polimerizan y quedan sobre la superficie de la muestra, formándose una capa amorfa que crece continuamente. Esta capa de contaminación da origen a una radiación difusa centrada alrededor del haz directo. La mayor parte de esta radiación pasa a través de la apertura de objetivo, y produce un fondo difuso sobre la imagen de campo claro. En cambio en campo oscuro se elimina una proporción apreciable de la radiación difusa, y la imagen presenta por lo tanto mayor contraste.

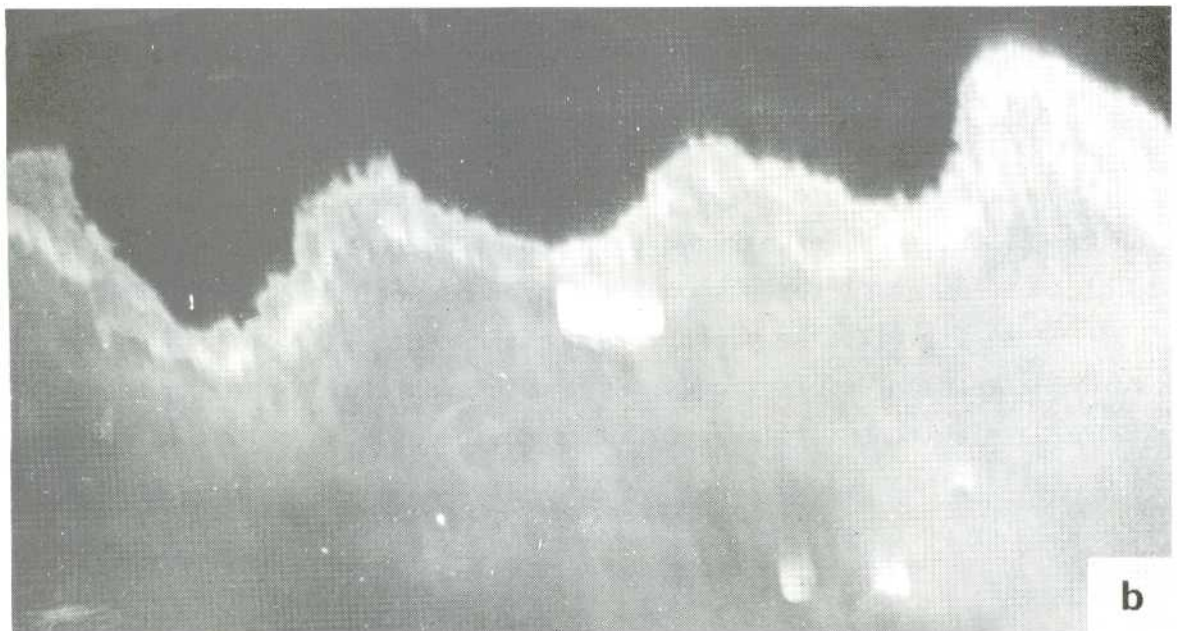
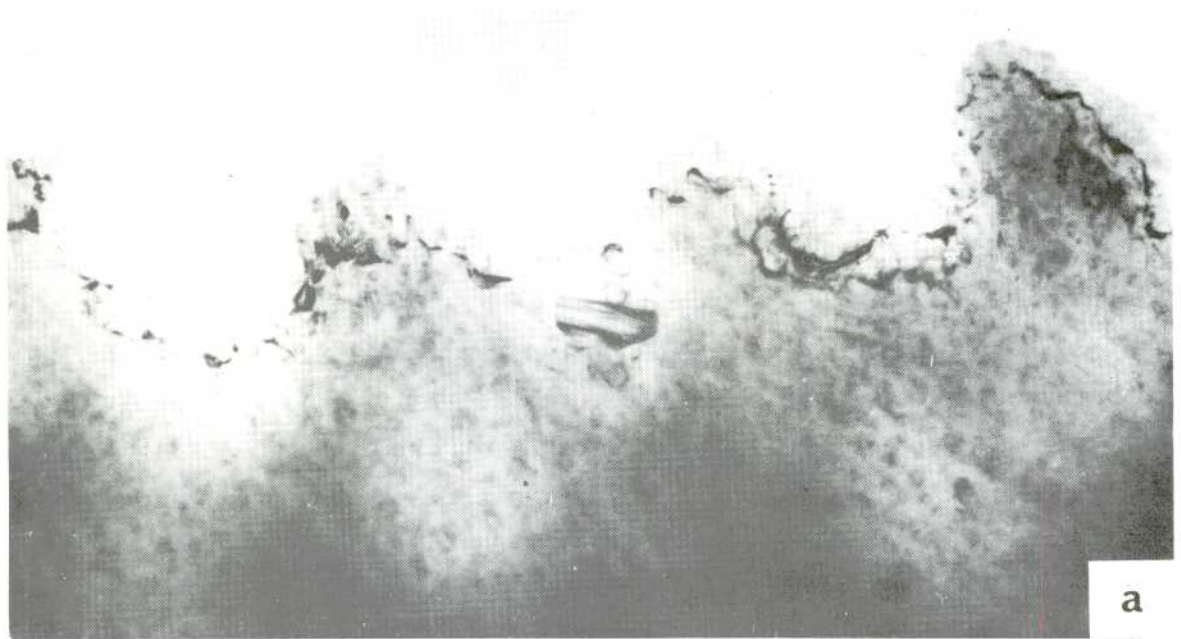


Fig. IV.4. Imagen de un precipitado de $ZrCr_2$ en una lámina delgada de zircaloy 4.- M = 30.000 x. Atención: Raúl A. Versaci.
a) Campo Claro b) Campo Oscuro

Más detalles sobre las técnicas de campo oscuro pueden consultarse en el libro de Hirsch y col. (1).

IV.2 El microscopio electrónico utilizado como cámara de difracción

En todo microscopio electrónico es posible observar y fotografiar diagramas de difracción provenientes de láminas delgadas cristalinas o amorfas. Para ello solamente es necesario variar la excitación de la lente intermedia, tal como se ha descrito en la sección I.3.3.

En el caso particular del microscopio Philips E? 300 el dispositivo auxiliar, denominado PW 6524/01, convierte al instrumento en una unidad de difracción de electrones muy completa. Por un lado es posible obtener diagramas de difracción de muestras masivas, evitándose así la preparación de láminas delgadas. Se pueden observar así diagramas de muestras de distintas formas y tamaños, tanto por transmisión como por incidencia rasante. Por otro lado, el dispositivo se monta debajo de la lente proyectora del microscopio y las lentes del mismo se utilizan solamente para producir un haz de electrones de sección muy pequeña, que incide directamente sobre la muestra y da origen al diagrama de difracción. Este diagrama se observa directamente en la pantalla final del microscopio, sin que intervenga ninguna otra lente. Por lo tanto se puede calibrar esta cámara de difracción con gran precisión, pues desaparecen los errores de reproducibilidad debidos a posibles ciclos de histéresis en las lentes magnéticas.

En la Fig. IV.5 se muestra esquemáticamente la geometría de una cámara de difracción de electrones. Esta está constituida por una fuerte emisora de electrones (filamento), un soporte donde se coloca la muestra y una pantalla final de observación o placa fotográfica.

La ley de Bragg

$$2 d_{hkl} \sin \theta = \lambda$$

relaciona el ángulo total 2θ de difracción, con la longitud de onda λ del haz electrónico incidente y los espaciados interplanares d_{hkl} de la muestra observada.

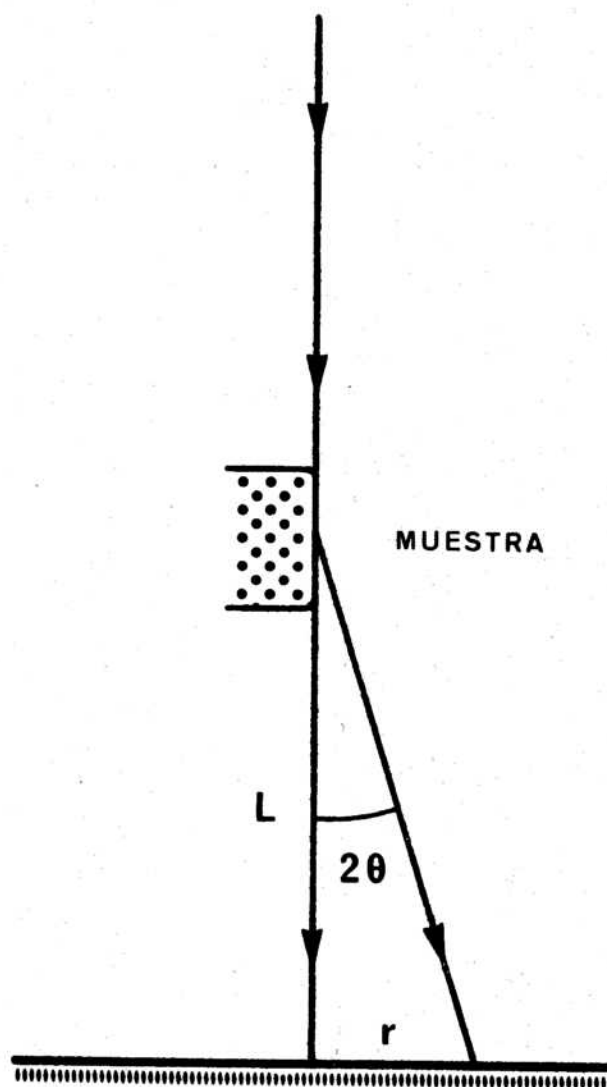


Fig. IV.5. Esquema de un difractómetro de electrones. La distancia L entre la muestra y la placa fotográfica se denomina longitud de la cámara, r es el radio de uno de los anillos de difracción, y 2θ es el ángulo de difracción de Bragg.

Si llamamos r_{hkl} a los radios de los anillos de difracción de una muestra policristalina, o en general, a la distancia entre un haz difractado y el haz central,

$$r_{hkl} = L \operatorname{tg} 2\theta$$

donde L es la distancia muestra-placa fotográfica, llamada también longitud de la cámara de difracción. Puesto que los ángulos 2θ son muy pequeños en difracción de electrones

$$r_{hkl} = L \cdot 2\theta$$

y la ley de Bragg

$$2 d_{hkl} \cdot \theta = \lambda$$

y resulta finalmente

$$r_{hkl} = \frac{\lambda L}{d_{hkl}} \quad (\text{IV.1})$$

Podemos individualizar de esta manera las distintas reflexiones que caracterizan a la sustancia observada, conociendo los espaciados cristalinos d_{hkl} y calculando en la última expresión los radios r_{hkl} de los anillos de difracción correspondientes.

La magnitud λL se suele llamar constante de difracción de la cámara, y depende directamente de la longitud de onda de los electrones que a su vez depende del voltaje acelerador de los mismos. En general, los fabricantes suelen dar los valores de λL para las distintas tensiones de aceleración del instrumento. En el caso particular del dispositivo de difracción adaptable al microscopio Philips EM 300 se da el valor de L correspondiente a las placas fotográficas de 6 x 9 cm.

$$L = 353.5 \text{ mm}$$

Los valores de λL se pueden calcular entonces a partir de la

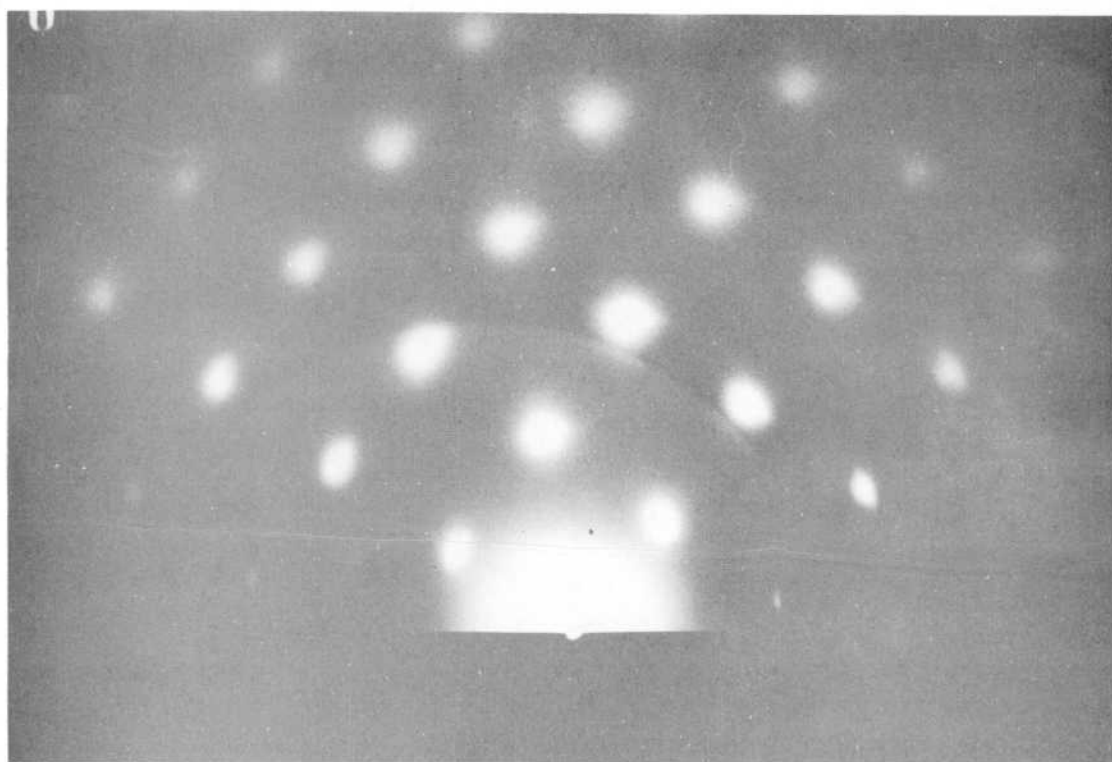
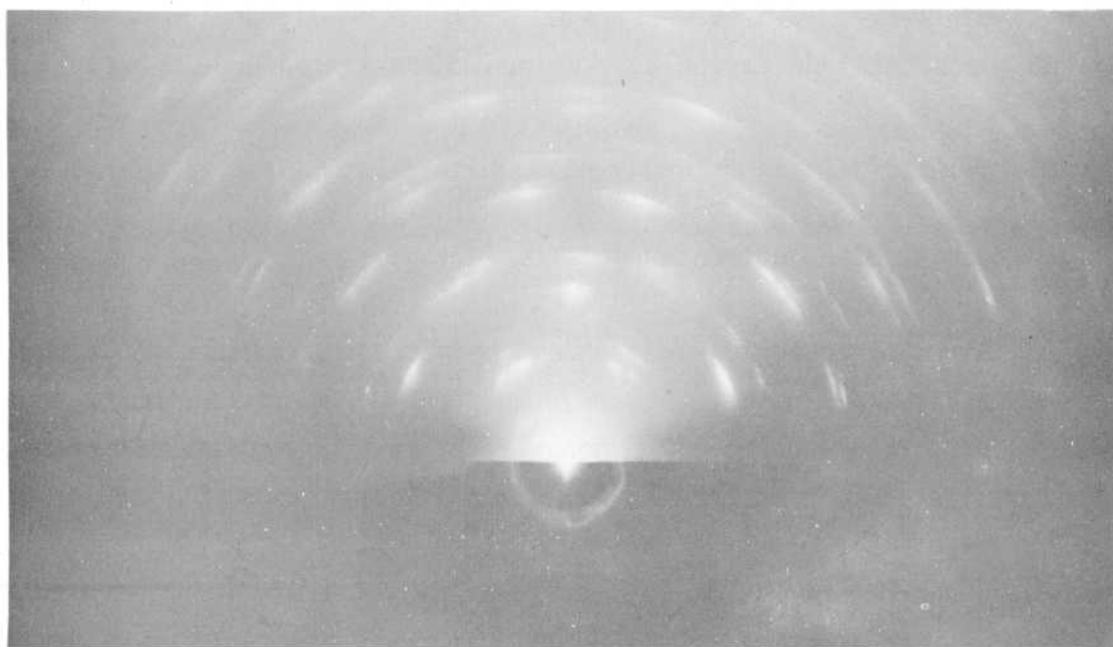
**a****b**

Fig. IV.6. Diagramas de difracción rasante obtenidos con el dispositivo de difracción de electrones del microscopio Philips EM 300, a una tensión de aceleración de 80 kV.
a) Monocristal de zirconio b) Chapa de cobre laminada

Tabla IV.1 que da los valores de la longitud de onda λ correspondientes a las distintas tensiones de aceleración del instrumento.

TABLA IV.1

V (kV)	λ (Å)
20	0.08588
40	0.06014
60	0.04865
80	0.04177
100	0.03702

Las técnicas de difracción rasante de electrones se han utilizado en el laboratorio para determinar la naturaleza de capas muy delgadas de óxido de hierro (2), para identificar distintas sustancias, y para determinar texturas cristalinas superficiales (3) .

En la Fig. IV.6 se muestra un diagrama de difracción de electrones de un monocristal de zirconio, y de una chapa laminada de cobre.

IV.3 Microscopía Electrónica de Alto Voltaje

En un microscopio electrónico operado con un potencial de aceleración de 100 a 125 kV es posible observar muestras de Cu o Al de hasta unos 0.5 de espesor, valor que es mucho menor en el caso de metales más pesados, como oro y tungsteno. En el estudio de defectos cristalinos, particularmente dislocaciones, los efectos de las superficies libres de la lámina delgada producen un reordenamiento de la distribución, y las micrografías electrónicas no siempre son representativas de la estructura existente en el material masivo. Por lo tanto es de gran importancia en este campo poder disponer de haces electrónicos de mayor penetración.

Alrededor de 1950 numerosos investigadores se dedicaron al diseño de



Fig. IV.7. Lazos de dislocaciones, de tipo intersticial, producidos por la irradiación con un haz de electrones de 700 kV, en una lámina delgada de cobre - M = 50.000.

microscopios electrónicos de más alta tensión de aceleración, encontrando al principio serias dificultades técnicas. Recién en 1956 se construyó en Japón un microscopio de 300 kV y en 1960 el prototipo de 1.2 MeV en Toulouse. El aumento consiguiente del poder de penetración del haz, permitió la observación de láminas delgadas de espesores superiores a 1μ , de muestras de materiales compuestos, cerámicos, cemento, aceros, muestras biológicas, etc. Actualmente ya existen instrumentos comerciales de 1 MeV, y prototipos de 3 MeV en funcionamiento.

Un microscopio de alto voltaje es similar en principio a un instrumento convencional. La fuente de alta tensión debe estar convenientemente aislada de la columna. Para el microscopio AEI de 1 MeV es necesario disponer de una habitación entera para la fuente. El microscopio propiamente dicho se instala en el piso inmediato inferior. En el microscopio Jeol, también de 1 MeV, la fuente de alta tensión se encierra en un recipiente con gas a alta presión, ubicado sobre la columna. En ambos instrumentos el sistema de lentes es similar al de un microscopio de 100 kV. Los arrollamientos son más voluminosos, puesto que es necesario producir un campo magnético más intenso para desviar un haz de electrones de mayor energía. Los controles son en general de tipo electromagnético, y el blindaje es reforzado para absorber los rayos X de alta energía que se producen a lo largo de la columna, y sobre la pantalla de observación.

El microscopio de alto voltaje ha sido utilizado ampliamente en los estudios de daño por radiación. Cuando una lámina delgada metálica es observada con un haz de electrones de alta energía, los átomos de la red cristalina son desplazados en sus posiciones, dando origen a pares de intersticiales y vacancias. La energía E_d para desplazar un átomo es del orden de los 25 keV, y para la Ag, $E_d \approx 750$ keV. Por lo tanto durante la observación de muestras a 1000 kV siempre se produce daño debido a la irradiación del haz incidente. Pero este hecho no significa que siempre se observe alguna variación estructural en la lámina delgada. Para que los defectos producidos, sean intersticiales o vacancias, se aglomeren y puedan ser visibles en la imagen, deben cumplirse ciertas condiciones de temperatura, velocidad de producción de defectos, configuración de dislocaciones, etc. En general, en láminas de Cu, Al, o sus aleaciones, siempre se observa la aparición de pequeños lazos de dislocaciones después de algunos minutos de irradiación. En la Fig. IV.7 se muestra, a título de ejemplo, la configuración de lazos de intersticiales nucleados en una lámina de Cu, después de la irradiación con un haz de

electrones de 750 kV.

REFERENCIAS

- 1 A. HOWIE, P.B. HIRSCH, R.B. NICHOLSON, D.W. PASHLEY, M.J. WHELAN, "Electron Microscopy of Thin Crystals", Butterworths, 1965.
- 2 "Análisis Radiocristalográfico en el Microscopio Electrónico Philips EM 300", PMM/A-64, Departamento de Metalurgia, CNEA, Buenos Aires, 1971.
- 3 "Determinación de Texturas Cristalinas por Difracción de Electrones", CNEA/TE-27/111, Departamento de Metalurgia, CNEA, Buenos Aires, 1973.