



**INSTITUTO DE
TECNOLOGIA**

UNIVERSIDAD NACIONAL
DE GENERAL SAN MARTIN

COMISION NACIONAL
DE ENERGIA ATOMICA

**MAESTRIA EN
CIENCIA Y
TECNOLOGIA
DE MATERIALES**

**MICROSCOPIA
ELECTRÓNICA
DE LAMINAS
DELGADAS**

MIGUEL IPOHORSKI

"MICROSCOPIA ELECTRÓNICA DE LAMINAS DELGADAS"

Miguel Ipohorski

Egresado del Instituto de Física "José A. Balseiro".
Desde Marzo de 1964 pertenece al grupo de Investigadores de la Comisión Nacional de Energía Atómica, Gerencia de Desarrollo, Departamento de Materiales.
Miembro del Editorial Board de la Revista "Biocell", y del Advisory Editorial Board de la Revista "Ultramicroscopy".
Actividades: Microscopía Electrónica de Transmisión y Barrido, Microanálisis Dispersivo en Energía, Fractografía, Materiales Compuestos de Matriz Metálica, Recubrimientos, Análisis de Fallas.

Este curso forma parte de los requerimientos para obtener el grado académico de **"Magister en Ciencia Y Tecnología de Materiales"** aprobado con nivel nacional por el Ministerio de Cultura y Educación de la Nación en su Resolución N° 3314 del 16 de Diciembre de 1994.

Está organizado en el **Instituto de Tecnología**, creado el 16 de Noviembre de 1993 a través de un convenio entre la **Comisión Nacional de Energía Atómica** y la **Universidad Nacional de General San Martín**.

I - PRINCIPIOS DE LA MICROSCOPIA ELECTRONICA

I.1 - Poder de Resolución

I.2 - El Microscopio Electrónico

I.3 - Imágenes Electrónicas

I.4 - Origen del Contraste Electrónico

I.5 - Focalización de un Haz de Electrones por un Campo Magnético de Revolución

I.6 - Lentes Magnéticas Delgadas

I.6.1 - Aberración Esférica

I.6.2 - Astigmatismo

I.6.3 - Aberración Cromática

I.6.4 - Aberración por Difracción

II - EL MICROSCOPIO ELECTRONICO POR TRANSMISION

II.1 - Filamento. Cilindro de Wehnelt

II.2 - Anodo Acelerador

II.3 - Lentes Condensadoras

II.4 - Lente Objetivo

II.5 - Difracción por un Area Selecta

II.6 - Poder de Resolución de un Microscopio Electrónico

II.7 - Profundidad de Campo - Profundidad de Foco

II.8 - Columna del Microscopio Electrónico - Aperturas

II.9 - Portamuestras

II.10 - Sistema de Anticontaminación

II.11 - Calibración de la Magnificación

II.12 - Calibración de las Rotaciones

III - TEORIA CINEMATICA

III.1 - Teoría Cinemática de la Difracción de Electrones

III.2 - Función de Onda Asociada a un Haz de Electrones

III.3 - Difusión de Electrones por un Atomo. Factor de Difusión.

III.4 - Difracción de Electrones por un Cristal

III.4.1 - Cristalografía. Red Geométrica.

III.4.2 - Difracción por una Red Geométrica Tridimensional

III.4.3 - Esfera de Ewald

III.4.4 - Difracción por una Estructura Cristalina

III.4.5 - Factor de Estructura. Ejemplos.

III.4.6 - Intensidad Difractada Fuera de la Orientación de Bragg

III.4.7 - Ensanchamiento de los Nodos en el Espacio Recíproco.

III.4.8 - Líneas de Kikuchi.

III.4.9 - Construcción de las Líneas de Kikuchi Asociadas a un Diagrama de Difracción.

III.4.10 - Doble Difracción de Bragg

IV - CONTRASTE DE DEFECTOS CRISTALINOS

IV.1 - Aproximación de la Columna. Aproximación de Dos Haces

IV.2 - Imagen de una Lámina Delgada Perfecta

IV.2.1 - Franjas de Igual Espesor y de Igual Inclinación

IV.2.2 - Diagrama Fase Amplitud. Construcción de Fresnel

IV.3 - Imágenes de Defectos Cristalinos. Criterios de Visibilidad

IV.3.1 - Contraste de Fallas de Apilamiento

IV.3.2 - Contraste de Dislocaciones de Hélice y de Borde

IV.3.3 - Contraste de Lazos de Dislocaciones

IV.4 - Imágenes de Precipitados de una Segunda Fase

IV.4.1 - Contraste de Precipitados Coherentes

IV.4.2 - Contraste de Partículas Incoherentes

IV.5 - Imágenes Periódicas

IV.5.1 - Resolución Directa de Planos Cristalinos

IV.5.2 - Resolución Indirecta. Franjas de Moiré

IV.5.3 - Efecto de las Imperfecciones Cristalinas

IV.6 - Imágenes de Campo Oscuro

IV.7 - Técnicas Avanzadas de Microscopía Electrónica

AGRADECIMIENTOS

Se desea expresar el reconocimiento a las siguientes personas e instituciones por la colaboración prestada :

- Al Programa Multinacional de Materiales OEA-CNEA, Proyecto Regional de Desarrollo Científico y Tecnológico OEA, por su apoyo y la financiación del presente trabajo.
- Al Dr.J.R.Galvele, Director del Instituto de Tecnología UNGSM-CNEA.
- A la Dra.Alicia Sarce, Directora de la Maestría en Ciencia y Tecnología de Materiales del Instituto de Tecnología UNGSM-CNEA.
- Al Lic.Luis A.Quesada, Secretario Académico del Instituto de Tecnología UNGSM-CNEA.
- A las Sras.Lidia Montes de Novoa y Elida Rodríguez, a la Srta.Edith R.Laiker, y al Sr.Julio Paz, de la Secretaría del Instituto de Tecnología UNGSM-CNEA.
- Al Dr.Raúl A.Versaci y al Dr.A.A.Pochettino por la información y micrografías aportadas para el presente trabajo.
- Al Sr.Néstor J.Marccone por toda su asistencia técnica y colaboración.
- A la Srta.Mónica N.Barrientos.
- Al Sr.P.N.Nieto por todo el trabajo fotográfico.

I - PRINCIPIOS DE LA MICROSCOPIA ELECTRONICA

I.1 - Poder de Resolución

Es un hecho bien conocido que el ojo humano puede llegar a discernir objetos separados por unos 0,1 mm como mínimo. En realidad pueden llegar a distinguirse objetos más pequeños que este valor, si es que presentan suficiente contraste respecto del fondo. Pero en ningún caso se puede llegar a distinguir la forma real de estos objetos, ni tampoco se puede estimar sus dimensiones. Los objetos que no pueden resolverse directamente aparecen todos del mismo tamaño y forma aparentes (punto más oscuro o luminoso que el fondo).

Este límite en el poder de resolución del ojo humano se debe al fenómeno de la difracción de la luz por el ojo, tal como se ilustra en la Fig. I.1. En la Fig. I.1 (a) se esquematiza la distribución de intensidades luminosas de dos objetos separados por una distancia s que registraría la retina en ausencia de todo fenómeno de difracción. Sin embargo, debido al fenómeno de difracción de la luz, la imagen de cada objeto en la retina no es un punto definido claramente, sino una distribución de intensidades denominadas Disco de Airy. El perfil de intensidades correspondiente al par de objetos se muestra en forma esquemática en la Fig. I.1 (b). Las imágenes de los dos objetos pueden llegar a superponerse si la separación es pequeña. Si los centros de los respectivos discos de Airy están separados por una distancia menor que sus radios, entonces el observador verá solamente una única mancha luminosa. En este caso se dice que el ojo no llega a "resolver" los dos objetos. el radio R del disco de Airy está dado por la expresión aproximada

$$r = \lambda / 2 \operatorname{sen} \alpha \quad \text{radio del disco de Airy}$$

donde λ es la longitud de onda de la luz utilizada, y α es proporcional a la apertura del ojo.

El microscopio óptico es el instrumento que permite sobrepasar este límite, a través del aumento del valor de α del ojo humano, y la consecuente disminución del radio del disco de Airy. Este instrumento permite la resolución entre dos puntos hasta un valor dado por la expresión

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

donde n es el índice de refracción del medio situado entre la muestra y la lente objetivo. Por ejemplo, en un microscopio dotado de un objetivo de inmersión

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

y reemplazando estos valores en la expresión (I.1) se obtiene finalmente como valor máximo de la resolución obtenible en un microscopio óptico moderno

$$\Delta r = 0.2 \mu$$

$$0.2 \times 10^{-3} \text{ mm} = 2 \times 10^{-4} \text{ mm}$$

ojo H = 10^{-1} mm

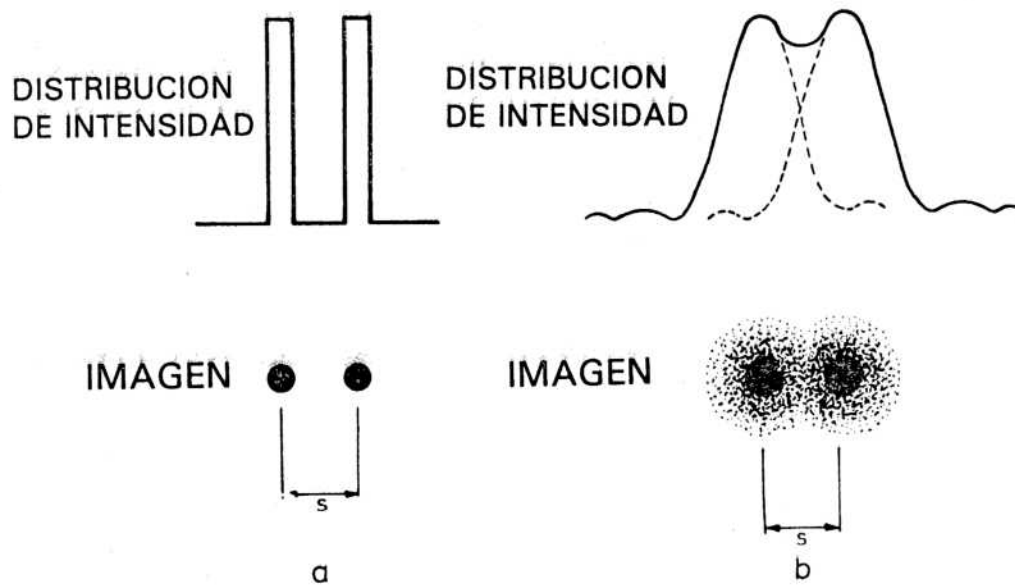


Fig.I.1 - Perfil de intensidades de las imágenes de dos objetos separados por una distancia s .

a) Distribución ideal en ausencia de difracción.

b) Distribución real de intensidades. Efecto de la disminución de nitidez debida al fenómeno de difracción.

Los microscopios ópticos diseñados a fines del siglo pasado ya habían alcanzado esta resolución, con magnificaciones del orden de los 1000x. Aún mejorando la tecnología de la construcción de lentes ópticas, sin embargo el fenómeno de la difracción de la luz, como el de toda radiación electromagnética, es el que limita finalmente el poder de resolución de un microscopio óptico a un valor de $\lambda/2$ dado por la expresión (I.1). Una mejora en la resolución solo se podría obtener utilizando radiación de longitud λ más corta. El microscopio de luz ultravioleta ($\lambda = 0.2 \mu$) constituye actualmente el límite de la microscopía óptica ($\Delta r = \lambda/2 = 0.1 \mu$).

I.2 - El Microscopio Electrónico

El descubrimiento de los Rayos X en 1897, y posteriormente las experiencias de difracción de Bragg en 1913, pusieron en evidencia la existencia de radiación electromagnética de longitud mucho más pequeña que la de la luz visible ($\lambda = 1$ a $2 \text{ \AA}$). Sin embargo, dada la imposibilidad de construir algún tipo de lente para focalizar Rayos X, no se pudo desarrollar para esta nueva radiación un microscopio análogo al convencional de luz visible. El desarrollo de las técnicas de Rayos X se centró en la determinación de estructuras cristalinas a partir de la interpretación de experiencias de difracción.

Esta era la situación hasta el primer cuarto del presente siglo. La máxima resolución obtenible con un microscopio no podía superar el límite de los $0.1 - 0.2 \mu$. Este límite no estaba dado por problemas de diseño o construcción de los dispositivos, sino por la propia naturaleza ondulatoria de la luz.

Durante los primeros años de la década de 1920 Gabor en Berlín diseñó un osciloscopio de rayos catódicos operando a una tensión sumamente alta para la época : 50 kV [9]. En este dispositivo Gabor demostró la factibilidad de concentrar un haz de electrones por medio de un solenoide y una pieza polar adecuada. En 1927 H.Busch diseñó un sistema mejorado, y demostró además que la acción focalizadora de un campo magnético sobre un haz de electrones se podía asimilar al efecto de una lente convergente sobre un haz luminoso. Se considera actualmente a H.Busch como el fundador de la óptica electrónica.

Una lente electromagnética moderna como las utilizadas actualmente en todo microscopio electrónico, es un arrollamiento con dos piezas polares separadas por un gap de $\frac{1}{2} \text{ cm}$, y un agujero interior por el que pasa el haz de electrones. Cuando circula una corriente continua por el arrollamiento, se establece un fuerte campo magnético en el gap que deflecta los electrones del haz y los focaliza en un punto, de manera similar a una lente óptica con un haz luminoso. El poder de convergencia de una lente magnética aumenta a medida que se incrementa la corriente en las espiras. De esta manera se puede focalizar y defocalizar un haz de electrones variando la corriente eléctrica, sin movimientos mecánicos de las lentes.

En la misma década, las experiencias de Davisson y Germer permitieron comprobar el postulado formulado por De Broglie en 1924, según el cual un haz

de partículas aceleradas posee también naturaleza ondulatoria en ciertas condiciones, siendo la longitud de onda λ asociada a cada partícula inversamente proporcional a su energía

$$\lambda = h / mv$$

(1.2)

donde h es la constante de Planck, m la masa, y v la velocidad de la partícula. De esta manera, un haz de electrones acelerado por un potencial de 100 kV es equivalente 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 menor aún que la longitud de onda de los Rayos X. Entonces, la resolución alcanzable por algún tipo de instrumento que permitiera obtener imágenes focalizadas por medio de un haz de electrones, por ejemplo utilizando las lentes magnéticas mencionadas anteriormente, sería del orden de

$$\frac{0,61 \times 0,037}{2 \times 10^{-3}} \approx 10 \text{ Å}$$

(1.3)

suponiendo $n = 1$ y que las lentes de tal instrumento pudieran operar solo con aperturas muy pequeñas

$$\text{sen } \alpha \approx \alpha \approx 2 \times 10^{-3} \text{ radianes}$$

Basándose en la experiencia de Gabor y Busch sobre lentes magnéticas, y dado que las leyes de la óptica geométrica resultaron también aplicables a las trayectorias de un haz de electrones en un campo magnético, Knoll y Ruska [6] construyeron en Berlín en 1931 el primer microscopio electrónico por transmisión. Este primer instrumento no permitía en realidad aumentos mayores de 20x, y su poder de resolución era inferior al de un instrumento óptico. Pero dos años después, en 1933, Ruska diseñó y construyó el primer microscopio electrónico con una resolución que superaba a la del microscopio óptico. Este instrumento mejorado ya permitió alcanzar magnificaciones de hasta 10000x y su resolución máxima era de unos 500 Å.

En 1933 Marton en Bruselas, siguiendo los trabajos realizados por sus colegas en Berlín, también pudo construir un instrumento con el cual obtuvo las primeras micrografías de muestras biológicas. El interés por desarrollar este nuevo tipo de instrumentos fue creciendo en distintos centros de investigación, y ya antes de la II Guerra se habían obtenido apreciables avances en Holanda, Estados Unidos, Japón y Gran Bretaña.

El primer microscopio electrónico comercial fue construido en Gran Bretaña por L.C.Martin. Este instrumento, denominado EM1, fue manufacturado por Metropolitan-Vickers e instalado en el Imperial College en 1936. En 1945 esta misma firma construyó el EM2, con el que se podía ya alcanzar magnificaciones del orden de 10000x y cuya resolución alcanzó los 100 Å. El desarrollo continuó rápidamente después de la Guerra. Los instrumentos de la década de 1950

introdujeron el sistema de doble condensador y tres lentes magnificadoras, y potenciales más altos de aceleración (100 kV). Con estos avances técnicos se pudieron comenzar a observar láminas un poco más gruesas de muestras biológicas estabilizadas, así como materiales metálicos para estudiar los distintos defectos presentes en una red cristalina (dislocaciones, fallas de apilamiento,...).

Todos estos instrumentos se basaban en el siguiente esquema de funcionamiento, que también corresponde básicamente a los microscopios modernos.

La fuente de electrones en un microscopio es un filamento de tungsteno caliente que emite electrones por efecto termoiónico. Estos electrones son acelerados por un ánodo polarizado con una alta tensión positiva (100 kV). Un sistema de lentes magnéticas condensadoras focaliza este haz sobre una zona dada de la muestra, efecto éste equivalente a "iluminar" la muestra en el caso óptico. Debajo de la muestra, que debe ser una lámina delgada, otra lente magnética denominada "objetivo" forma una imagen electrónica magnificada en un factor , 100 x. Esta primer imagen es finalmente aumentada por la lente denominada "proyectora", equivalente al ocular de un sistema óptico. Los electrones que forman la imagen final magnificada, inciden siempre sobre una pantalla fluorescente o una placa fotográfica, donde se hace visible al ojo humano.

Además, como los electrones del haz deben atravesar en su trayectoria distancias del orden del $\frac{1}{2}$ metro, la columna de un microscopio electrónico debe siempre estar bajo un vacío dinámico de $\approx 10^{-5}$ torr producido por una bomba difusora y una bomba mecánica.

1.3 - Imágenes Electrónicas

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 las observaciones de la 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 absorbidos al atravesar una lámina delgada de material.

1.4 - Origen del Contraste Electrónico

Según que la lámina delgada esté compuesta por un material amorfo o cristalino, las imágenes se originan en mecanismos de **Contraste por Difusión** o **Contraste por Difracción**. Ambos mecanismos son consecuencia de un mismo fenómeno : la difusión de los electrones por los átomos que componen la muestra.

dispersión

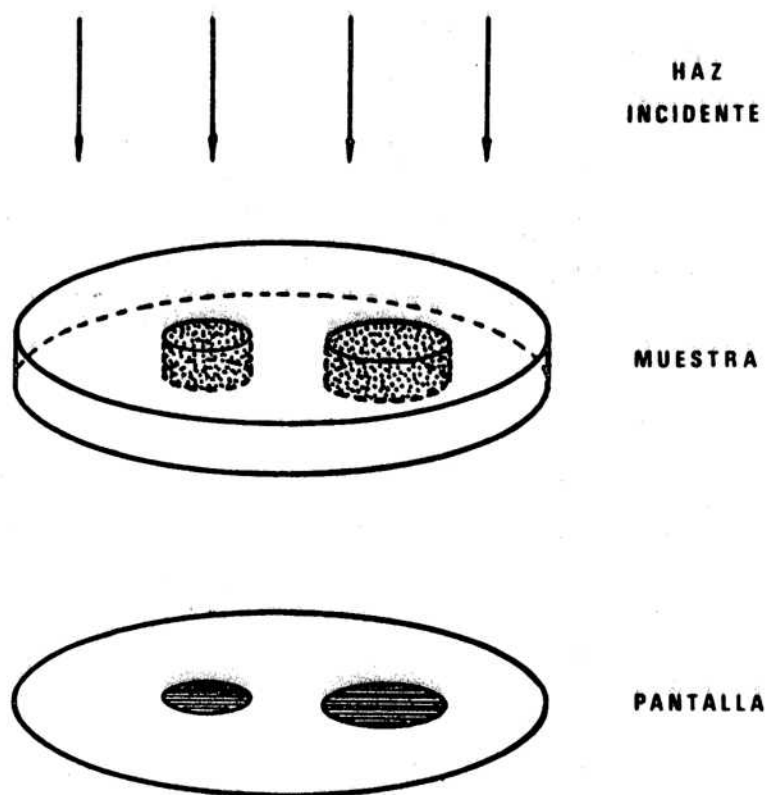


Fig.1.2 - Origen del contraste en una muestra no cristalina. Si las partículas contenidas en el interior son más absorbentes frente al haz electrónico, el contraste observado en una pantalla fluorescente será un conjunto de sombras oscuras en medio de un fondo más claro. El sistema de lentes magnéticas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

El término difusión de electrones se utiliza como traducción de "electron scattering".

Para fijar ideas, consideremos una muestra como la esquematizada en la Fig.I.2, compuesta por un material amorfo que contiene en su interior partículas de un material más denso frente al haz electrónico. Por lo tanto la porción del haz incidente que incide sobre estas partículas perderá más electrones por absorción, y el contraste correspondiente observado sobre 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 las partículas 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 que se observa en cuerpos amorfos, como la mayoría de las sustancias biológicas y las réplicas de carbono de superficies metálicas.

Precisamente en 1940, Borries y Ruska [7] observaron que las distribuciones de intensidad de ciertas imágenes de láminas de óxido de cromo no estaban de acuerdo con la interpretación basada en el mecanismo de contraste por difusión. Posteriormente otros autores fueron informados 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 era necesario considerar el fenómeno, ya conocido, de la difracción de electrones por un cristal. Efectivamente, en 1927 Davisson y Germer [5] ya habían observado que la incidencia de un haz de electrones sobre un cristal de níquel daba origen a una serie de haces de distintas intensidades, que se propagaban en distintas direcciones. Aunque la teoría de la difracción de electrones por un cristal requiere un tratamiento más extenso, como se verá en el Capítulo III, se puede ver esquemáticamente cual es el origen del **Contraste por Difracción**.

En el esquema de la Fig.I.3 la lámina delgada de un material cristalino está orientada de tal manera que la incidencia del haz de electrones sobre la misma origina un solo haz difractado. Interponiendo una apertura circular de manera de interceptar el haz difractado, y permitiendo que solamente el haz transmitido pueda ser amplificado por las lentes magnéticas del microscopio, se tendrá en la pantalla de observación final 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, está directamente relacionada con la estructura de la muestra. Aún si la muestra es homogénea, pueden existir en el cristal ciertos defectos que afectan la intensidad difractada en las distintas zonas de la lámina, dando así origen al contraste por difracción.

El análisis de un defecto cristalino sencillo, como es una dislocación de borde, permite visualizar el origen del contraste por difracción. Una dislocación de borde es un plano extra en una familia de planos cristalinos, Fig.I.4. Se supone en este ejemplo ilustrativo, que además los planos cristalinos 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.

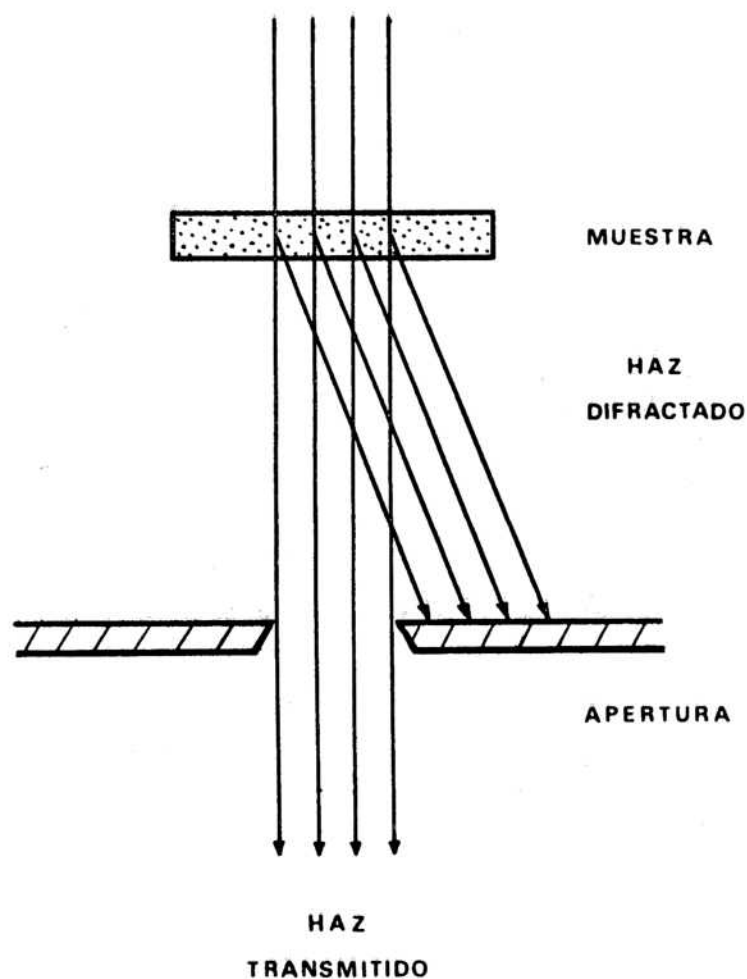


Fig.1.3 - Contraste por Difracción, campo claro. El contraste es producido por las variaciones de las intensidades difractadas por distintas zonas de la lámina delgada.

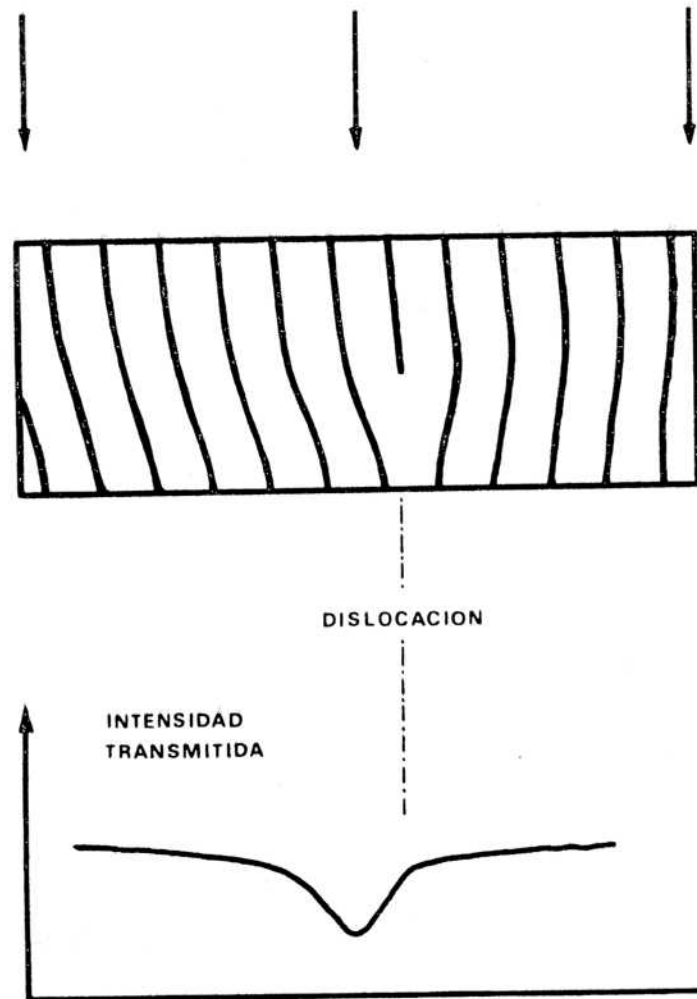


Fig.1.4 - Contraste producido por una dislocación de borde en una lámina delgada cristalina. Las distorsiones a la izquierda de la dislocación orientan los planos cristalinos hacia la posición de Bragg. Estas zonas dan origen a un fuerte haz difractado, y por lo tanto en una micrografía electrónica de campo claro se observa una línea oscura desplazada a un lado de la línea de dislocación.

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

$$2 d \sin \theta = \lambda$$

donde λ es la longitud de onda del haz de electrones, ver Capítulo III. La intensidad del haz transmitido a través de la lámina delgada esquematizada en la Fig. I.4 tendrá un cierto valor constante que depende de las condiciones de la observación. Pero en las zonas 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 la lámina, se altera la imagen de la dislocación y eventualmente el contraste puede llegar a desaparecer. En este ejemplo ya se puede ver que el conocimiento de las condiciones de difracción en las cuales fue obtenida una micrografía dada es fundamental para la interpretación correcta de toda imagen electrónica. Para ello es necesario conocer los principios del fenómeno de difracción de electrones de alta energía por un cristal, que se dan en el Capítulo III.

I.5 - Breves Nociones de Optica Electrónica

Una lente magnética consta esencialmente de una bobina por la que circula una corriente I , y una pieza polar cilíndrica ubicada en su parte central. En el entrehierro de la pieza polar se establece un campo magnético 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 proporcionar imágenes electrónicas focalizadas, debido a la fuerza de Lorentz que actúa sobre toda partícula de carga e que entra a un campo magnético H con una velocidad v , dada por

$$F = e v \times H \quad (1.2)$$

Como esta fuerza es constantemente normal a la dirección del movimiento, modifica solamente la dirección de la velocidad v , pero no su módulo, y por lo tanto 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, para pasar finalmente al caso de una lente magnética delgada como las que componen un microscopio electrónico.

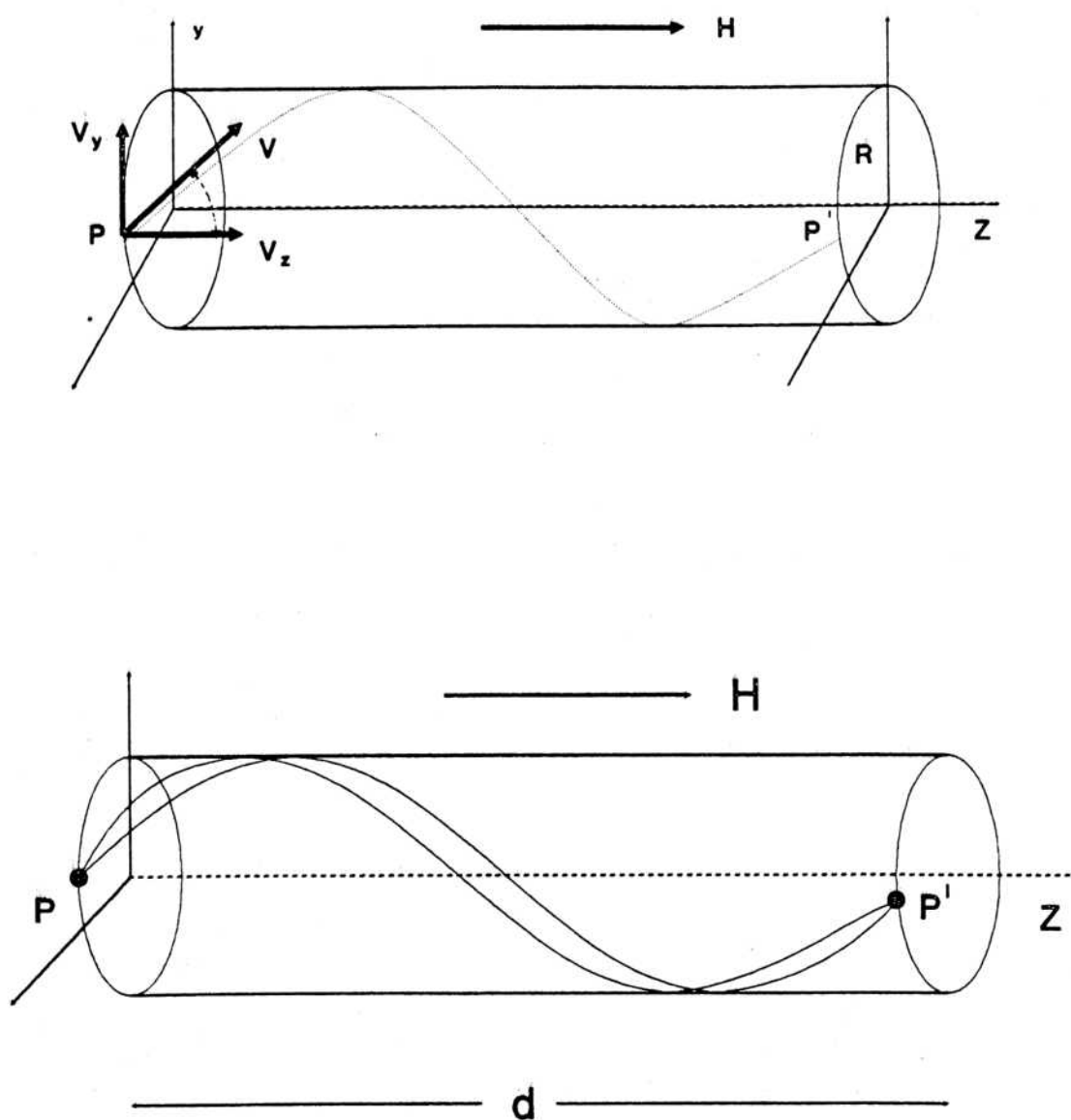


Fig.1.5 - a) Trayectoria de un haz de electrones en un campo magnético uniforme. b) Focalización de un haz de electrones ligeramente divergente por un campo magnético uniforme. Si a partir del punto P diverge un haz de electrones, será focalizado por el campo magnético en un único punto P' .

1.6 - 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 v es perpendicular a 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

$$R = \frac{m v}{e H} = \text{constante}$$

y entonces el electrón describe una circunferencia [8]. Por el contrario, si v es paralela a H , entonces es $F = 0$ y su trayectoria no es modificada. En el caso general, si v forma un cierto ángulo α con el campo magnético 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.1.5 (a). El tiempo T necesario para completar una vuelta está dado por

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

y durante el tiempo T el electrón se desplaza una distancia

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

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 partir del punto P, Fig.1.5 (b), diverge un haz de electrones de igual energía (igual velocidad) en direcciones poco inclinadas respecto de H , será focalizado por el campo magnético en un único punto P'. Este es el principio general en el cual se basa el diseño de todas las lentes magnéticas utilizadas en microscopía electrónica.

1.5 - Focalización de un Haz de Electrones por un Campo Magnético de Revolución

En la presente sección se verá que no es necesario un campo magnético estrictamente uniforme para focalizar un haz divergente de electrones. Un haz de partículas aceleradas puede ser focalizado por un campo magnético no uniforme, siempre que exista simetría de revolución alrededor de un eje, como es el caso real

en un entrehierro de simetría cilíndrica [3].

Consideremos un campo magnético con simetría de revolución alrededor del eje z entre dos planos P_1 y P_2 , Fig. I.6(a). En coordenadas semipolares (r, θ, z) las componentes del campo $\vec{H}$ son

$$H_r, 0, H_z$$

$$\vec{F} = e \vec{v} \wedge \vec{H} = \begin{vmatrix} \hat{e}_r & \hat{e}_\theta & \hat{e}_z \\ v_r & v_\theta & v_z \\ H_r & 0 & H_z \end{vmatrix}$$

y las componentes de la velocidad del electrón $\vec{F} = -e [v_\theta H_z \hat{e}_r - (v_r H_z - v_z H_r) \hat{e}_\theta + (-v_\theta H_r) \hat{e}_z]$

$$v_r = \frac{dr}{dt} \quad v_\theta = r \frac{d\theta}{dt} \quad v_z = \frac{dz}{dt} \quad \left\{ \begin{array}{l} \vec{F} = -e v_\theta H_z \hat{e}_r + e (v_r H_z - v_z H_r) \hat{e}_\theta \\ \quad + e v_\theta H_r \hat{e}_z \end{array} \right.$$

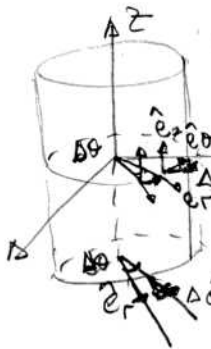
la fuerza de Lorentz que ejerce el campo sobre un electrón en movimiento, ec. I.2, se expresa en estas coordenadas

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

Las ecuaciones de movimiento resultan entonces [7]

$$m \left[\frac{d^2 r}{dt^2} - r \left(\frac{d\theta}{dt} \right)^2 \right] = -e r H_z \frac{d\theta}{dt} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \vec{v} &= \frac{dr}{dt} \hat{e}_r + r \frac{d\theta}{dt} \hat{e}_\theta + \frac{dz}{dt} \hat{e}_z \\ \vec{a} &= \frac{d^2 r}{dt^2} \hat{e}_r + \frac{dr}{dt} \frac{d\hat{e}_r}{dt} + \frac{dr}{dt} \frac{d\theta}{dt} \hat{e}_\theta + r \frac{d^2 \theta}{dt^2} \hat{e}_\theta + r \frac{d\theta}{dt} \frac{d\hat{e}_\theta}{dt} + \frac{d^2 z}{dt^2} \hat{e}_z + \frac{dz}{dt} \frac{d\hat{e}_z}{dt} \end{aligned}$$



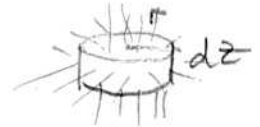
$$\frac{m}{r} \frac{d}{dt} \left(r^2 \frac{d\theta}{dt} \right) = e \left(H_z \frac{dr}{dt} - H_r \frac{dz}{dt} \right) \quad (1)$$

$$m \frac{d^2 z}{dt^2} = e r H_r \frac{d\theta}{dt} \quad (3)$$

$$\vec{a} = \frac{d^2 r}{dt^2} \hat{e}_r + \frac{dr}{dt} \frac{d\hat{e}_r}{dt} + \frac{dr}{dt} \frac{d\theta}{dt} \hat{e}_\theta + r \frac{d^2 \theta}{dt^2} \hat{e}_\theta + r \frac{d\theta}{dt} \frac{d\hat{e}_\theta}{dt} + \frac{d^2 z}{dt^2} \hat{e}_z + \frac{dz}{dt} \frac{d\hat{e}_z}{dt} \quad (1, 2, 3)$$

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

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



y el flujo a través de la superficie lateral es

$$2\pi r dz H_r$$

Por lo tanto

$$2\pi r^2 dz H_r + \pi r^2 dH_z = 0$$

$$\therefore H_r = -\frac{r}{2} \frac{dH_z}{dz}$$

(1.4)

Las ecuaciones de movimiento (1.3) se pueden expresar

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

$$\frac{d}{dt} \left(r^2 \frac{d\theta}{dt} \right) = \frac{e r}{m} \left(H_z \frac{dr}{dt} + \frac{r}{2} \frac{dH_z}{dz} \frac{dz}{dt} \right) = \frac{e}{m} \frac{d}{dt} \left(\frac{r^2}{2} H_z \right)$$

(1.5)

$$\frac{d^2 z}{dt^2} = -\frac{e}{m} \frac{r^2}{2} \frac{dH_z}{dz} \frac{d\theta}{dt}$$

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.1.6(a), o bien si su velocidad inicial v está contenida en el plano meridiano zy . En ambos casos es

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

y por lo tanto

$$\frac{d\theta}{dt} = \frac{e}{2m} H_z$$

(1.6)

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

$$dz = v dt$$

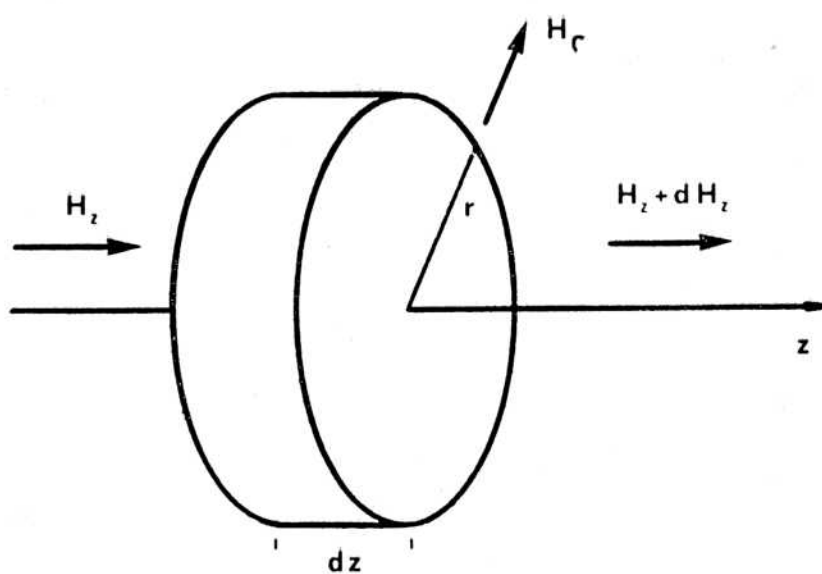
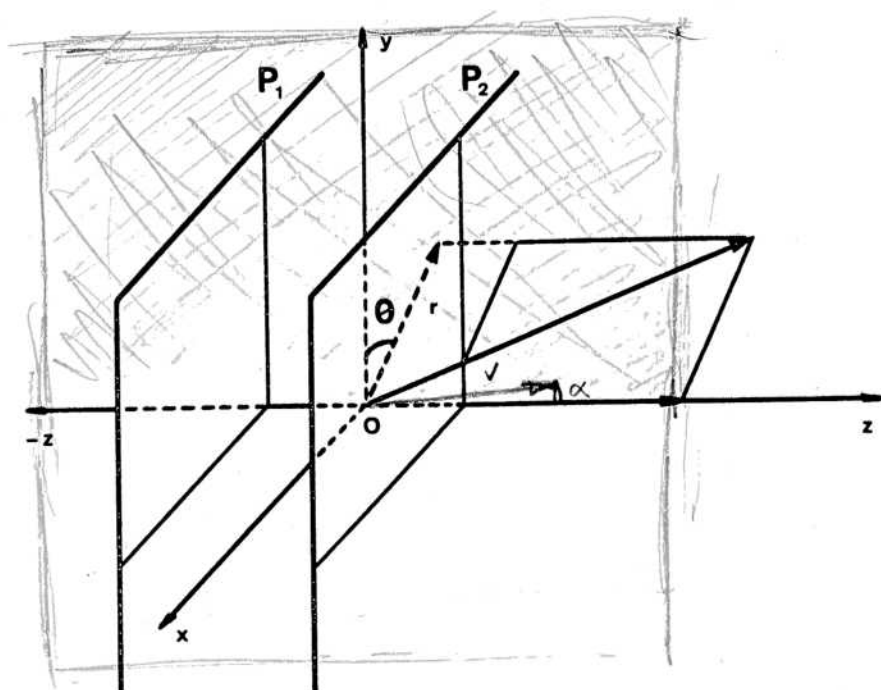


Fig.I.6 - a) Focalización de un haz de electrones por un campo magnético de revolución. b) Flujo del campo magnético H a través de la superficie de un cilindro de radio r y altura dz . (I.7)

y reemplazando en (1.6)

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

1.7

Finalmente, integrando

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

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.(1.7), alrededor del eje z.
- Sobre este plano el electrón describe una trayectoria que se puede calcular de la manera siguiente.

Introduciendo (1.6) en la primer ecuación de movimiento (1.5)

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

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

(1.8)

Como

$$dt = \frac{dz}{v}$$

(1.9)

entonces

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

y reemplazando en (1.8)

$$\frac{d^2 r}{dz^2} + \frac{e^2}{4m^2 v^2} r H_z^2 = 0$$

(1.10)

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

$$\frac{1}{2} m v^2 = e V \Rightarrow m v^2 = z e V$$

(I.11)

la ec.(I.10) resulta finalmente

$$\frac{d^2 r}{dz^2} + \frac{e}{8mV} r H_z^2 = 0$$

(I.12)

En esta última ecuación se puede ver que r y $d^2 r/dz^2$ 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 lente magnéticas son por lo tanto siempre convergentes. H_z^2

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.I.7(a), situado en el plano $z = -z_0$, que llamaremos **Plano Objeto**, a una distancia C_2 del eje z . Entonces debe ser

$$r(-z_0) = C_2$$

para lo cual es suficiente que

$$r_1(-z_0) = 0$$

$$r_2(-z_0) = 1$$

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 todo **objeto** de longitud C_2 le corresponde una **imagen** aumentada en el factor

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

Un campo magnético, sin otra condición que la simetría de revolución alrededor de

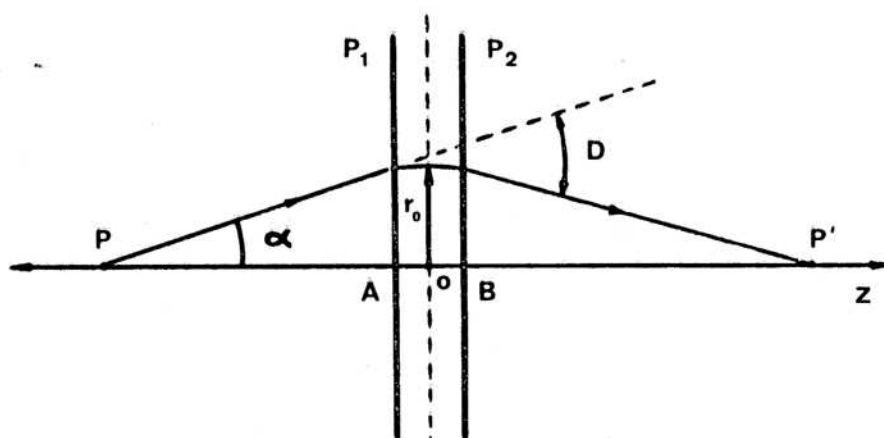
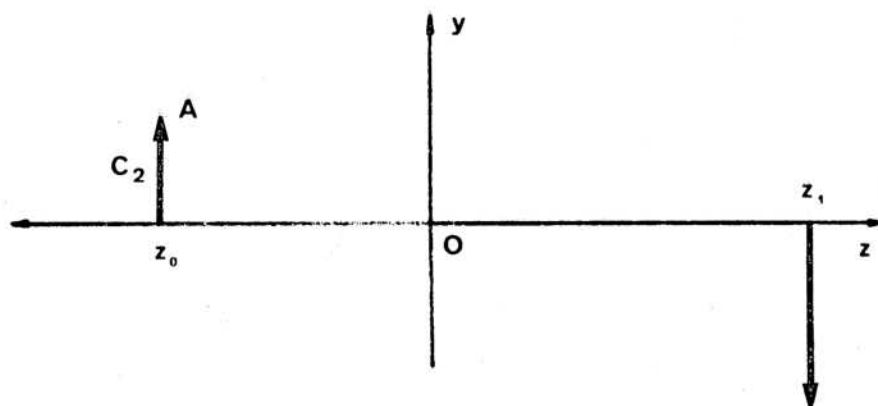


Fig.I.7 - a) Magnificación de una imagen electrónica por un campo magnético de revolución. b) Esquema de una lente magnética delgada. Entre dos planos próximos P_1 y P_2 se establece un campo magnético de revolución.

un eje, puede así focalizar un haz divergente de electrones y en principio proporcionar imágenes electrónicas focalizadas y magnificadas.

1.6 - Lentes Magnéticas Delgadas

Por analogía con el caso óptico, se denomina **Lente Delgada** a un campo magnético de revolución alrededor de un eje, limitado en una pequeña región del espacio, por ejemplo entre los planos P_1 y P_2 de la Fig.1.7(b)

Si un electrón es emitido desde el punto **P** bajo un ángulo pequeño, su trayectoria será modificada solamente entre los planos P_1 y P_2 y en muy buena aproximación se puede suponer que describe un pequeño arco de circunferencia de radio constante r_0 . La ecuación diferencial (1.8) se expresa para este caso

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

o también, según (1.9)

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

Una primera integración nos permite calcular el valor del ángulo de desviación **D**, Fig.1.7(b)

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

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, según la Fig.1.7(b)

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

y resulta

$$\frac{1}{p} + \frac{1}{p'} = \frac{e^2}{4m^2 v^2} \int_A^B H_z^2 dz$$

(1.13)

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 entonces

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

Si H_z se expresa en Gauss, y V (Tensión de Aceleración) en volts, el valor numérico de f , en cm, se calcula mediante

$$\frac{1}{f(\text{cm})} = \frac{0,022}{V(\text{volts})} \int_A^B H_z^2 (\text{gauss}) dz \quad (1.14)$$

Normalmente en una lente magnética de un microscopio electrónico moderno, el valor de f es del orden de los 3 mm.

Por lo tanto, conocida la distancia focal f de una lente magnética, se puede obtener gráficamente la imagen electrónica de un objeto mediante las trayectorias de los rayos principales, de acuerdo a las leyes de la óptica geométrica :

- Todo haz de rayos paralelos al eje óptico converge en el punto focal imagen
- Todo haz que pasa por el centro de la lente delgada no es desviado
- Todo haz que pasa por el punto focal objeto emerge paralelo al eje óptico
- Todo haz de rayos paralelos entre sí focaliza en un punto del plano perpendicular al eje óptico que pasa por el punto focal imagen (plano focal imagen), ver más adelante Fig.11.4.

Un campo magnético de revolución localizado en una pequeña región del espacio se obtiene dentro del entrehierro de una pieza polar cilíndrica rodeada por un solenoide, Fig.1.8. Si I es la corriente eléctrica que circula por el solenoide, es H_z directamente proporcional a I , y según la ec.(1.14)

$$\boxed{\frac{1}{f} \approx \frac{I^2}{V}}$$

(1.15)

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

El comportamiento de una lente magnética delgada frente a un haz monoenergético de electrones es entonces análogo al de una lente óptica convergente. Solamente es necesario tener en cuenta la rotación adicional de la imagen, dada por la ec.(1.7). Si el campo magnético se expresa en Gauss, y la

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

$$\frac{1}{2}mv^2 = eV$$

$$v = \sqrt{\frac{2eV}{m}}$$

tensión de aceleración en Volts, de (I.7) y (I.11) resulta

$$\frac{e}{8mV} = \frac{0,022}{V} \quad \left(\theta \text{ (radianes)} = \frac{0,148}{\sqrt{V \text{ (volts)}}} \int_A^B H_z dz \right) \quad (I.16)$$

I.6.1 - 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 aquellos 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 ideal (o gaussiano) a una distancia

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

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. El aumento de la lente es **M**, 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

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

y por lo tanto el círculo de confusión, sobre el plano objeto, tiene un diámetro de **5 Å** 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 de corregir la aberración esférica.

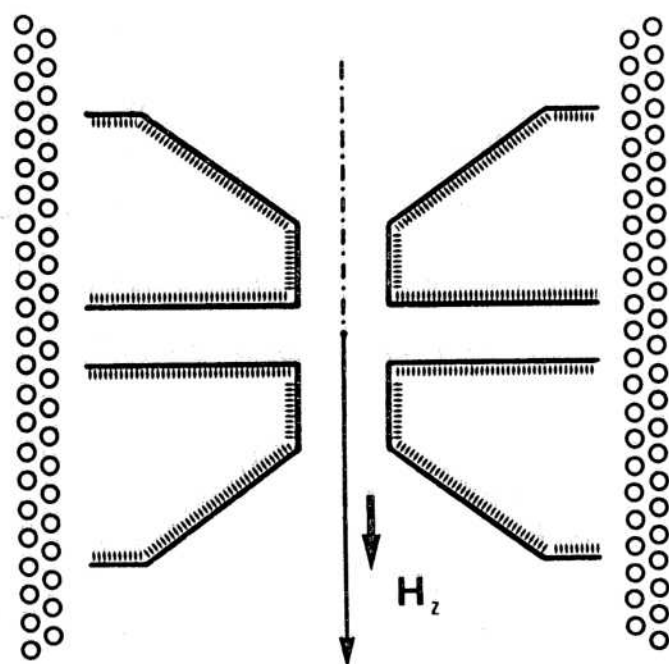


Fig.1.8 - Esquema de una lente magnética. La corriente I que circula por la bobina genera un campo magnético de revolución en el interior de la pieza polar cilíndrica. El diámetro del entrehierro es del orden de los 3 mm. La lente se hace más poderosa (menor distancia focal) aumentando la corriente I .

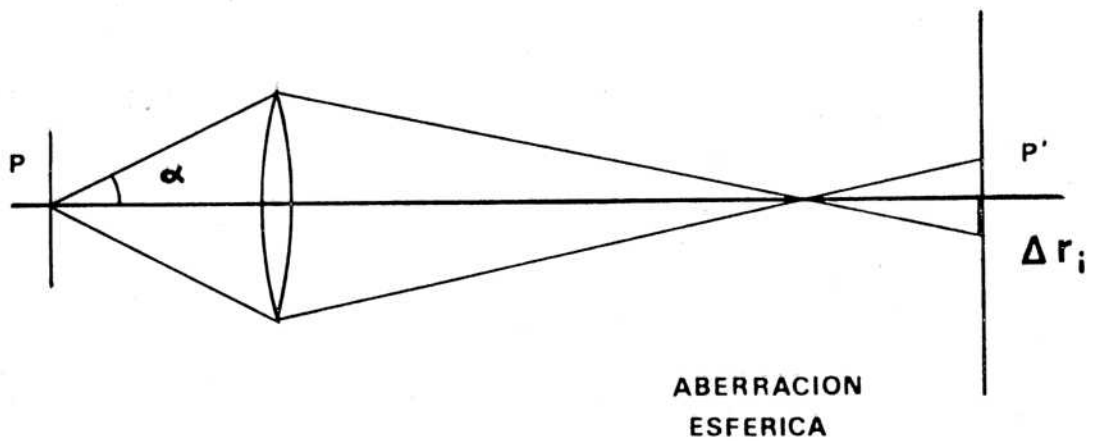


Fig.1.9 - Aberración Esférica. Los electrones que pasan por un punto **P** del objeto formando un ángulo α con el eje óptico cortan al plano objeto ideal (gaussiano) a una distancia Δr_i del punto imagen gaussiano **P'**, que sería la imagen de **P** dada por una lente sin aberración esférica. La única manera de disminuir este defecto es introduciendo aperturas que limiten el ángulo α .

La única manera de disminuir su efecto es mediante aperturas adecuadas que limiten el ángulo α , pero tal como se verá en I.6.4 esto solamente es posible hasta un cierto límite.

I.6.2 - Astigmatismo

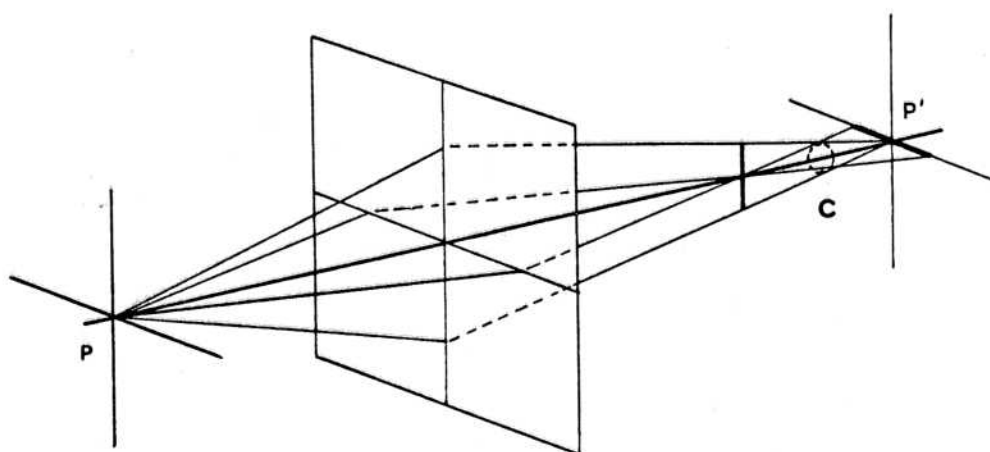
El astigmatismo tiene su origen en cualquier tipo de apartamiento de la simetría de revolución de una lente, sea ésta óptica o magnética. En el caso óptico, una variación local del radio de curvatura de la lente da origen a esta aberración. En una lente magnética, cualquier inhomogeneidad en el maquinado de las piezas polares o una partícula magnética extraña, puede dar origen a una distorsión de la simetría cilíndrica del campo magnético. En consecuencia, las distancias focales son distintas para rayos contenidos en 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 es en general una elipse, y en un plano particular del espacio imagen es un círculo, denominado **Círculo de Mínima Confusión**.

Para obtener una resolución de unos $5\text{\AA}$ en un microscopio electrónico, las piezas polares de la lente objetivo deberían estar maquinadas dentro de unos $0.05\ \mu$. Dada la imposibilidad de alcanzar esta precisión, se introduce en la lente objetivo un dispositivo denominado **astigmador** que consiste de dos pares de pequeñas bobinas. la corriente que circula por cada una de ellas se puede ajustar desde el exterior del instrumento de 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 de electrones sobre las distintas aperturas, y sobre todo en la apertura 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, ver sección II.XX.

I.6.3 - 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, capítulo III, la energía de los electrones no es alterada. pero en otro tipo de procesos, denominados de **difusión inelástica**, un electrón puede perder una cierta fracción de su energía. Por lo tanto el haz de electrones que después de atravesar la muestra entra al campo magnético de la lente objetivo, no es estrictamente monoenergético, y se caracteriza por una distribución de longitudes de onda.



astigmatismo

Fig.I.10 - Astigmatismo. Todo apartamiento de la simetría de revolución de una lente magnética da origen al astigmatismo de la imagen. Las distancias focales son distintas para rayos contenidos en planos distintos. La imagen de un punto **P** es una elipse, y en una posición particular es un círculo **C**, denominado Círculo de Mínima Confusión.

De la misma manera que en el 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 a los electrones según su longitud de onda (energía), ver p.ej. 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

$$\Delta r_c = M C_c \alpha \frac{\Delta E}{E}$$

(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.6.1), 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.6.4 - Aberración por Difracción

Ya se ha mencionado en la sección (I.6.1) que no existen dispositivos adecuados para eliminar la aberración esférica de una lente magnética. Solamente se puede disminuir su efecto introduciendo aperturas que limiten el ángulo α . 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

$$n = 1 \quad \text{sen } \alpha = \alpha$$

y por lo tanto el límite de resolución por efecto de difracción es

$$\Delta r_d = \frac{0,61}{\alpha} \lambda$$

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

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

(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 $\text{\AA}$.

$$1.14 \quad \frac{1}{f(\text{cm})} = \frac{0,022}{V(\text{volts})} \int_A^B H_z^2 (\text{gauss}) dz$$

$$1.16 \quad \theta(\text{rad}) = \frac{0,148}{\sqrt{V(\text{volts})}} \int_A^B H_z dz$$

$$1.1 \quad \Delta r = \frac{0,61 \lambda}{m \sin \alpha}$$

$$\Delta r_d = \frac{0,61 \lambda}{\alpha}$$

$$1.17 \quad \Delta r_i = M C_s \alpha^3$$

$$\frac{0,61 \lambda}{\alpha} = M C_s \alpha^3$$

$$\frac{0,61}{M C_s} \lambda = \alpha^4$$

$$\alpha_{\text{opt}} = A \lambda^{1/4} C_s^{-1/4}$$

$$\Delta r_i = M C_s \alpha_{\text{opt}}^3 = (M A^3) C_s \lambda^{3/4} C_s^{-3/4}$$

$$\Delta r_i = B C_s^{1/4} \lambda^{3/4}$$

REFERENCIAS

- 1 - Electron Microscopy of Thin Crystals, A.Howie, P.B.Hirsch, R.B.Nicholson, D.W.Pashley, M.J.Whelan, Butterworths, 1965.
- 2 - R.D.Heidenreich, Fundamentals of Transmission Electron Microscopy, Interscience, John Wiley, 1964
- 3 - Magnetic Electron Lenses, Editor : P.W.Hawkes, Topics in Current Physics, Vol.18, Springer Verlag, 1982.
- 4 - Transmission Electron Microscopy, L.Reimer, Physics of Image Formation and Microanalysis, Springer Series in Optical Sciences, Vol.36, Springer Verlag, 1984.
- 5 - C.J.Davisson y L.H.Germer, Nature 119 (1927) 558
- 6 - M.Knoll y E.Ruska, Ann.der Physik 12 (1932) 607
- 7 - B.von Borries y E.Ruska, Naturwiss. 28 (1940) 366
- 8 - Classical Electricity and Magnetism, W.K.H.Panofsky y M.Philips, Addison Wesley, 1959
- 9 - T.Mulvey, Fourty Years of Electron Microscopy, Fifth European Congress on Electron Microscopy, EMCON 72, Manchester, 1972

$$50 \mu m = 50 \times 10^{-6} m = 50 \times 10^{-6} \times 10^{10} A = 50 \times 10^4 A = 5 \times 10^5 A$$

$$1 \mu m = 10^4 A$$

II - EL MICROSCOPIO ELECTRONICO POR TRANSMISION

En este capítulo se describen los principales elementos que componen un sistema óptico-electrónico y la función que desempeña cada uno de ellos en un microscopio electrónico por transmisión. En particular, en la sección II.8 se describe el funcionamiento del microscopio electrónico Philips EM 300 de 100 kV instalado en el Departamento Materiales de la Gerencia Desarrollo de la CNEA.

II.1 - Filamento. Cilindro de Wehnelt

El primer elemento de todo sistema óptico-electrónico es la fente emisora de electrones. En los microscopios comerciales se utilizan normalmente un Filamento de Tungsteno calentado al rojo blanco por medio de una corriente eléctrica. El filamento está rodeado por una pieza cilíndrica denominada Cilindro de Wehnelt, Fig.II.1, que se mantiene a un potencial negativo variable, del orden de 200 a 400 V, valor controlado por la corriente de emisión. Este tipo de 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 los electrones que constituyen luego el haz electrónico incidente sobre la muestra [1] [2]. En efecto, el campo eléctrico establecido entre el Cilindro de Wehnelt y el filamento focaliza los electrones emitidos sobre una zona de diámetro próximo a los 50 μ . Este punto de entrecruzamiento es en realidad la fente de electrones del sistema óptico-electrónico 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 se puede disminuir 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 conveniente verificar periódicamente el punto de operación correcto. Normalmente un filamento de tungsteno alcanza unas 40 horas de uso bajo alta tensión.

Recientemente se han desarrollado cátodos de Hexaboruro de Lantano (LaB_6) mucho más durables que los filamentos de tungsteno y que permiten obtener mayor intensidad del haz electrónico y por lo tanto mayor brillo en las imágenes [3]. El filamento emisor es en este caso una varilla de LaB_6 calentada indirectamente por radiación o bombardeo electrónico a partir de una espira de tungsteno, Fig.II.2. El radio de curvatura en la punta del filamento es de $\approx 1 \mu$ 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 del sistema de Emisión de Campo, también llamado cátodo frío. El fenómeno de emisión de electrones bajo la acción de un campo eléctrico se conoce desde hace 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, con un radio de curvatura de $\approx 600-2000 \text{ \AA}$, y un ánodo muy cercano polarizado con un alto potencial positivo. El campo eléctrico resultante, de unos 10^7 Volts/cm sobre la punta, es suficiente para arrancar electrones. La emisión aumenta además orientando cristalográficamente la aguja de tungsteno. De esta manera se pueden obtener intensidades mucho mayores que las correspondientes a la emisión termoiónica. El sistema de emisión de campo solamente puede operar con vacío del orden de 10^{-10} torr .

II.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. Normalmente 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 la resolución del instrumento, que en realidad está limitada por la aberración esférica de la lente objetivo. 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 la muestra y el contraste es en consecuencia más débil. Por lo tanto en la observación de muestras de espesores menores que unos $1000 \text{ \AA}$, sobre todo si son réplicas de carbono o muestras amorfas, conviene seleccionar tensiones de aceleración más bien bajas. Por el contrario, en muestras de mayores espesores o sustancias cristalinas en general, es conveniente operar con un haz de mayor energía. Aunque el contraste puede disminuir, 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.

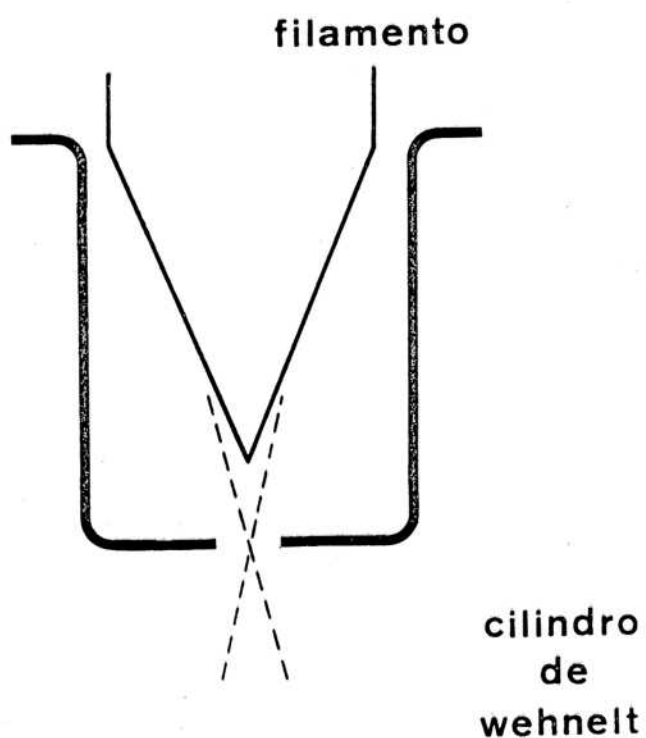


Fig.II.1 - Esquema de una fuente emisora de electrones tipo triodo. El filamento de tungsteno está rodeado por el Cilindro de Wehnelt, polarizado negativamente. El campo eléctrico resultante focaliza el haz en un punto de entrecruzamiento que constituye la fuente de electrones del microscopio.

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 conviene operar con las intensidades más bajas posibles, compatibles con un brillo adecuado de la imagen final.

II.3 - Lentes Condensadoras

La función del sistema de lentes condensadoras es concentrar un haz paralelo de electrones sobre una zona elegida de la lámina delgada.

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 $\approx 2/3$. La zona iluminada por este único 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 delgadas cristalinas, Fig.II.3. El primer condensador, generalmente una lente de gran poder, proyecta una imagen del punto de entrecruzamiento demagnificada en un factor máximo del orden de ≈ 100 . La segunda lente condensadora proyecta a su vez esta imagen sobre la muestra aumentada aproximadamente dos veces. El diámetro mínimo del haz incidente puede ser por lo tanto de unos 2 μ . Variando la potencia de la segunda lente condensadora es posible variar en forma continua el diámetro de la zona iluminada desde este valor mínimo de 2 μ hasta un máximo de 50 μ .

La introducción del sistema de doble condensador permitió entonces el rápido desarrollo de las observaciones de láminas delgadas cristalinas con las siguientes ventajas :

- Solamente es iluminada la zona de la muestra que aparece en la pantalla de observación, evitándose la contaminación de las zonas adyacentes.
- Se disminuyen los efectos de carga eléctrica de la muestra, factor importante en muestras no conductoras.
- Disminuye la divergencia angular del haz electrónico y los diagramas de difracción resultan más precisos.

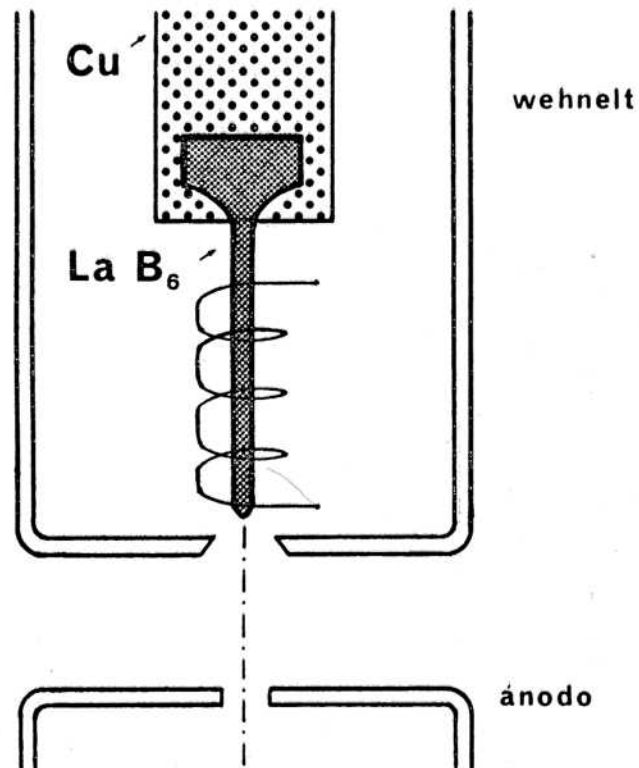


Fig.II.2 - Esquema de una fuente de electrones de Hexaboruro de Lantano. El filamento emisor es una varilla de LaB_6 calentada por radiación a partir de una espira de tungsteno. Este tipo de fuente permite obtener mayor intensidad en las imágenes electrónicas y una mejora en la resolución.

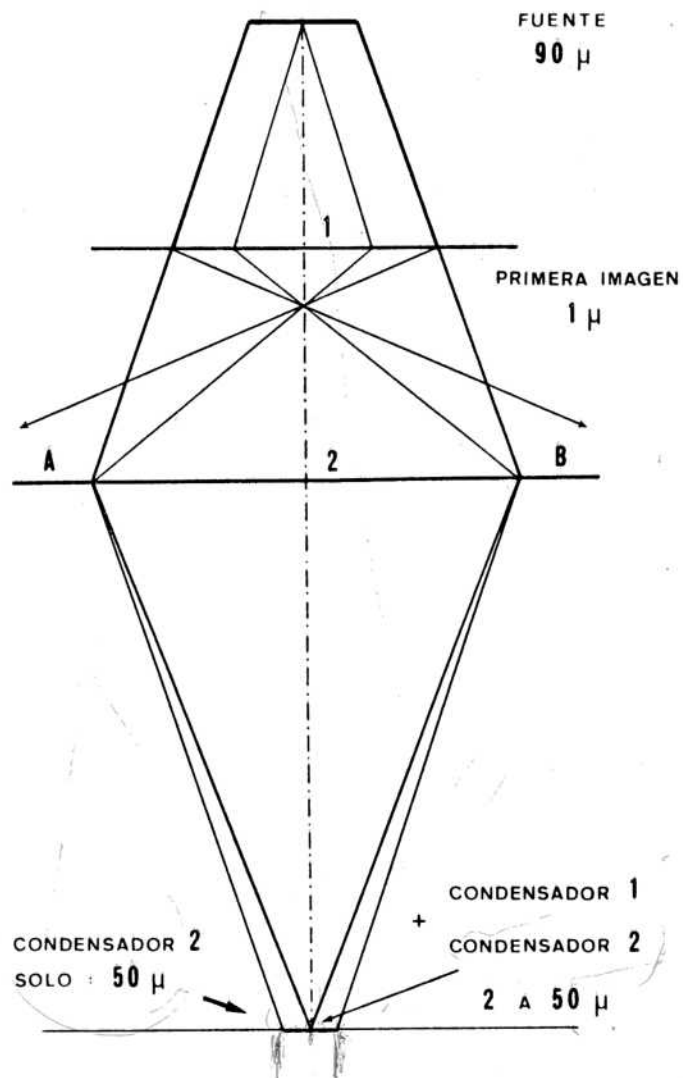


Fig.II.3 - Esquema de un sistema de doble condensador. La primer lente proyecta una imagen del punto de entrecruzamiento demagnificada en un factor ≈ 100 . Variando la potencia de la segunda lente condensadora es posible variar en forma continua el diámetro de la zona iluminada de la muestra.

II.4 - 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.

Las trayectorias de los rayos principales en la lente objetivo, que no necesariamente coinciden con las trayectorias reales de los electrones, se esquematizan en la Fig.II.4. El haz de rayos paralelos proyectado por el sistema de condensadores, atraviesa la muestra y una primer imagen electrónica de ésta se forma sobre un cierto plano I_1 a una distancia p' de la lente. Esta imagen, real e invertida, sirve a su vez de objeto para la lente siguiente, denominada lente intermedia. En las condiciones normales de operación del microscopio, la corriente de la lente intermedia y por lo tanto su distancia focal f , se ajusta de manera de reproducir sobre la pantalla final la distribución de intensidades electrónicas del plano I_1 , aumentada en un cierto factor. En estas condiciones el microscopio opera en Iluminación Normal, o Imagen, Fig.II.5.

Por otro lado los haces difractados por la muestra son focalizados por la misma 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 para que focalice sobre este plano. En estas condiciones, aparece sobre la pantalla final de observación 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 con una única perilla que controla la corriente de la lente intermedia.

Es muy 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.

II.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, plano I_1 en la Fig.II.4, se introduce una apertura de un cierto diámetro D , denominada apertura de área selecta. Si es M el aumento de la lente objetivo, y suponiendo que la lente no tiene aberraciones, esta operación es equivalente a introducir una apertura de diámetro M veces menor sobre la muestra.

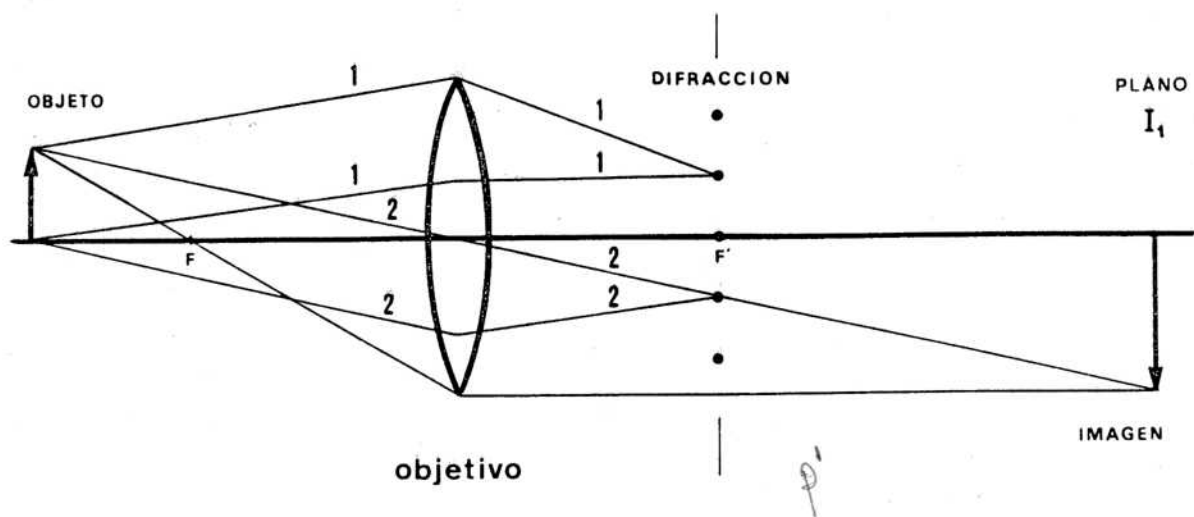


Fig.II.4 - Formación de la primera imagen y de su diagrama de difracción por la lente objetivo de un microscopio electrónico. La primer imagen electrónica del objeto se forma sobre el plano I_1 . Los haces difractados focalizan sobre el plano focal imagen de la lente.

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 final como el correspondiente diagrama de difracción. Esta técnica permite obtener el diagrama de difracción de una partícula o fase aislada en una muestra inhomogénea. Por ejemplo con una apertura de $25\ \mu$ diámetro y con $M = 25$, es posible observar el diagrama de difracción de un precipitado aislado de $1\ \mu$. Además, desplazando la apertura de difracción hacia la zona adyacente, observando el diagrama de difracción de la matriz, es posible obtener la relación cristalográfica entre el precipitado y la matriz que lo contiene. Normalmente en un microscopio electrónico el plano I_1 es fijo y coincide con el plano en el cual desliza la apertura de área selecta.

Las operaciones para obtener un diagrama de difracción por un área selecta depende de cada instrumento en particular [4], pero en todos los casos se sigue la secuencia que se detalla :

- 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 ^msombra 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 el diagrama no corresponde exactamente a la zona delimitada por la apertura de difracción. El principal error proviene de la aberración esférica. En la Fig.II.6 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 tanto la imagen como el borde de 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).

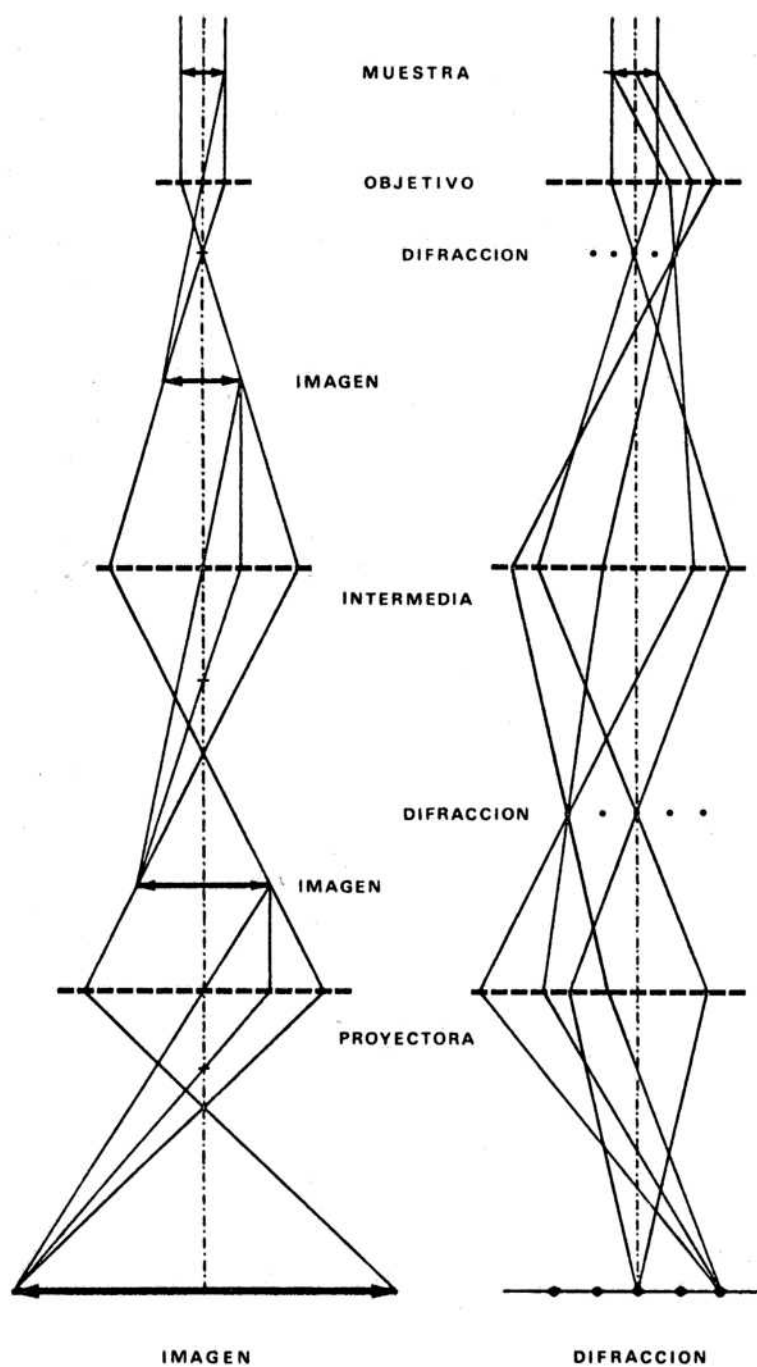


Fig.II.5 - Esquema de formación de una imagen (a) y de su diagrama de difracción (b) en un microscopio electrónico. Las trayectorias de los electrones son las mismas hasta la lente intermedia. La variación de la potencia de esta última hace aparecer en la pantalla final la imagen electrónica de la muestra o su diagrama de difracción.

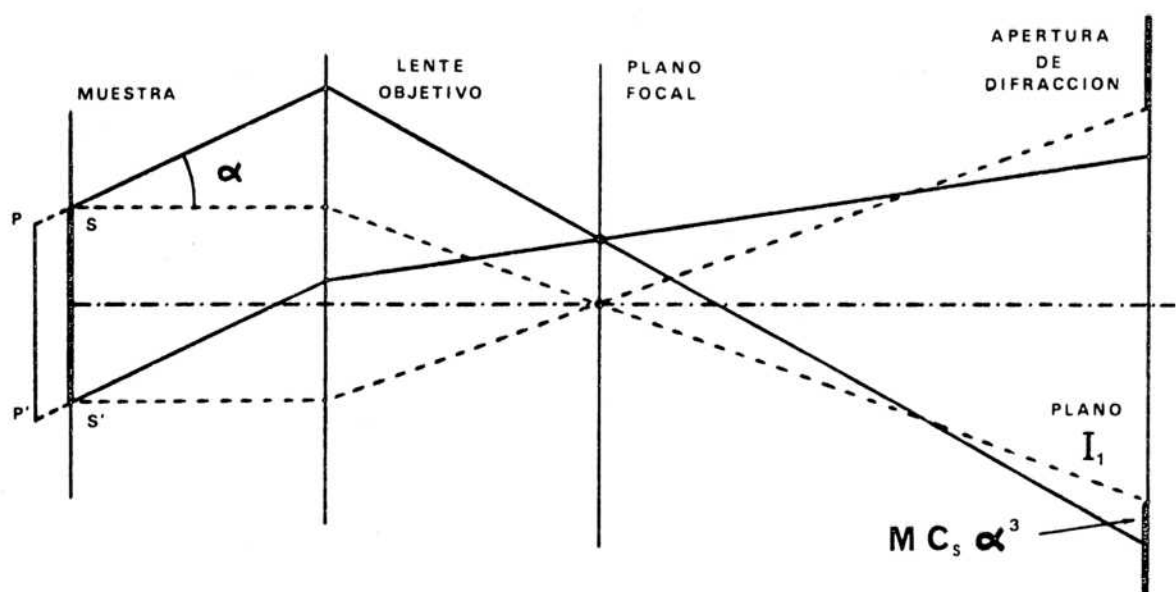


Fig.II.6 - Efecto de la aberración esférica de la lente objetivo sobre la precisión de un diagrama de difracción por un área selecta. La imagen de la zona SS' formada por el haz transmitido está comprendida dentro de la apertura de difracción, pero no sucedió lo mismo con la imagen formada por el haz 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.

La zona de la muestra que origina el haz (hkl) no es ya SS' sino que es otra zona PP' desplazada una distancia

$$y = C_s \alpha^3 \quad (II.1)$$

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.II.7, 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.II.7 se ve fácilmente que el desplazamiento y entre las dos zonas está dado por

$$y = D \alpha \quad \begin{array}{l} \text{No sobre focalización} \\ \text{No subfocalización} \end{array} \quad (II.2)$$

donde D es positivo para el caso de sobre focalización (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 $\approx 0.15 \mu$ para la reflexión (111) del aluminio. El error cometido por mala focalización del objetivo puede estimarse por lo tanto en $0.1 - 0.2 \mu$. Tiene sentido entonces observar diagramas de difracción de precipitados aislados del orden de 1μ , pero el método es dudoso cuando se analizan zonas menores que 0.5μ .

II.6 - Poder de Resolución de un Microscopio Electrónico

En la observación de sustancias amorfas la aberración cromática es la que limita el poder de resolución de un microscopio electrónico. Como ya se ha visto en la sección XX 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.

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.X). 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 los cuales un haz puede ser fácilmente transmitido a través de una lámina delgada.

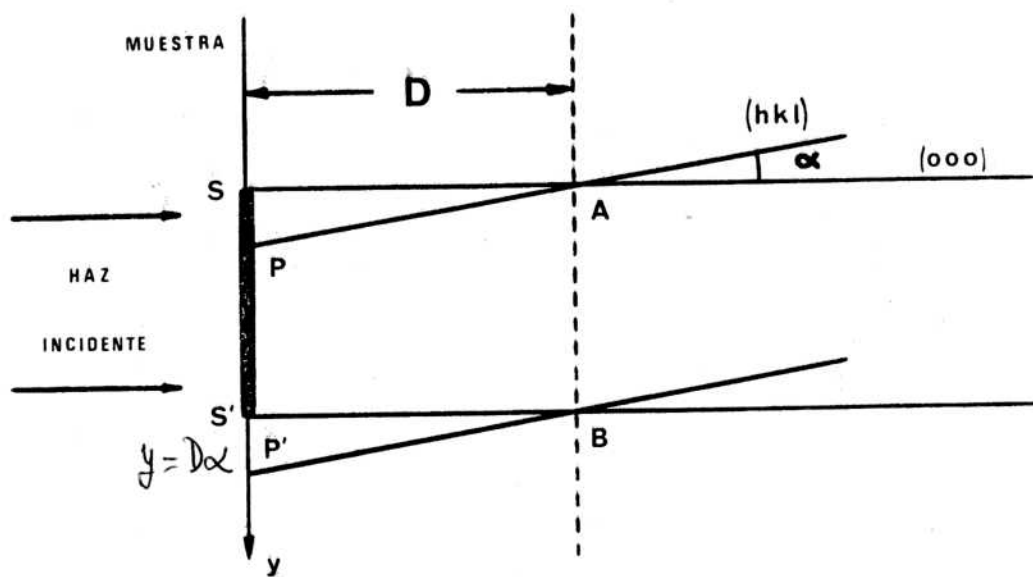


Fig.II.7 - Efecto de una focalización incorrecta de la lente objetivo sobre la precisión de un diagrama de difracción por un área selecta. Si la lente se focaliza incorrectamente sobre un cierto plano AB, a una distancia D de la muestra, el haz (000) proviene del área elegida SS' elegida en la muestra, pero el haz (hkl) que atraviesa AB proviene de otra zona PP', ligeramente desplazada de la anterior en un valor $y = D\alpha$.

De esta manera las pérdidas de energía son mucho menores y es posible alcanzar en este caso una resolución del orden de los 3 Å en la imagen final.

II.7 - Profundidad de Campo - 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 100 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 los pequeños ángulos de divergencia del haz electrónico en 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 sobre una placa fotográfica distante algunos centímetros de la misma. En particular el microscopio electrónico Philips EM 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.

II.8 - Columna del Microscopio Electrónico - Aperturas

La Fig.II.8 muestra la columna del microscopio electrónico Philips EM 300 instalado en el Departamento Materiales de la Gerencia Desarrollo de la CNEA. El cañón electrónico es del 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 en un factor ≈ 100 , 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 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), o por el contrario seleccionar uno de los haces difractados para obtener una imagen de campo oscuro. Actualmente se utilizan las aperturas de no contaminación. Estas están compuestas por una lámina muy delgada de oro que durante las observaciones se mantiene al rojo debido al calentamiento producido por el haz

electrónico, evitando prácticamente toda contaminación en sus bordes.

La apertura de difracción o de área selecta, desliza sobre el plano donde se forma la primer imagen de la muestra dada por la lente objetivo. El microscopio incluye una apertura cuyas dimensiones pueden variarse mediante una perilla situada en el exterior de la columna.

En la columna del microscopio pueden colocarse dos tipos de platinas con sus respectivas piezas polares. La platina de alta resolución permite alcanzar la máxima resolución del instrumento. Para la observación de muestras delgadas metálicas se prefiere utilizar la platina goniométrica. Aunque no es posible resolver detalles inferiores a unos $10 \text{ \AA}$, esta platina permite orientar la lámina delgada según distintas inclinaciones y observar así defectos cristalinos. Además 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 respecto de dicho eje.

II.9 - Portamuestras

El microscopio electrónico Philips EM 300 dispone de un conjunto de portamuestras para la observación de láminas delgadas en distintas condiciones. El portamuestras más simple permite una única inclinación según un solo eje, y la muestra se sujeta mediante un aro magnético y un resorte. Se utiliza para muestras más bien gruesas, o láminas de material magnético. El portamuestras de rotación permite rotar la muestra 360° en su propio plano, y una inclinación de $\pm 45^\circ$ alrededor del eje principal. En el portamuestras de doble inclinación la muestra se puede inclinar según dos ejes perpendiculares en $\pm 30^\circ$. En estos últimos portamuestras la lámina observada no puede superar los 0.3 mm de espesor.

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 puede ser enfriada hasta $\approx -150^\circ\text{C}$ por medio de un conductor de cobre en contacto con nitrógeno líquido. Una descripción más detallada de todos estos soportes puede encontrarse en una publicación del laboratorio [4].

II.10 - 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.

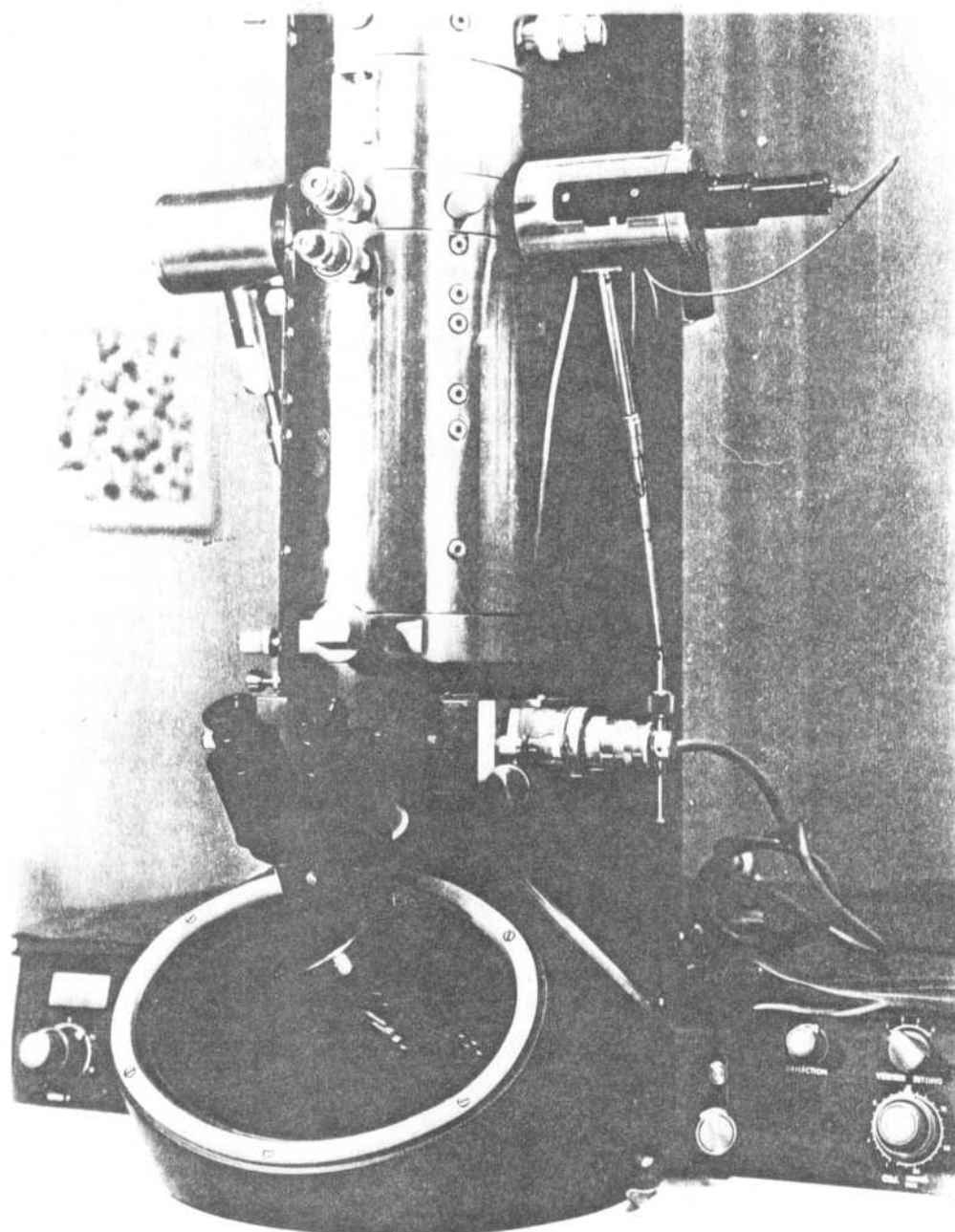


Fig.II.8 - Columna del microscopio electrónico Philips EM 300 equipado con platina goniométrica. Esta platina permite inclinar una lámina delgada según distintas orientaciones.

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. Las moléculas de hidrocarburos se condensan preferentemente sobre estas superficies frías minimizando la contaminación sobre 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 Å/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 más adelante Capítulo IV.

II.11 - Calibración de la Magnificación

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

Para la calibración de la magnificación se utilizan dos métodos

- Observando las imágenes de réplicas de carbono de redes de difracción óptica,
- Mediante la observación directa de imágenes de planos cristalinos de una sustancia cristalina.

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 [5]. En este instrumento los aumentos son independientes de la tensión puesto que la 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 28800 líneas/pulgada, siendo por lo tanto el espaciado igual a 0.88×10^{-3} mm/línea, Fig.II.9. La precisión del método está determinada por dos factores. Por un lado la réplica utilizada puede dilatarse debido a calentamientos locales producidos por el haz de electrones durante la observación.

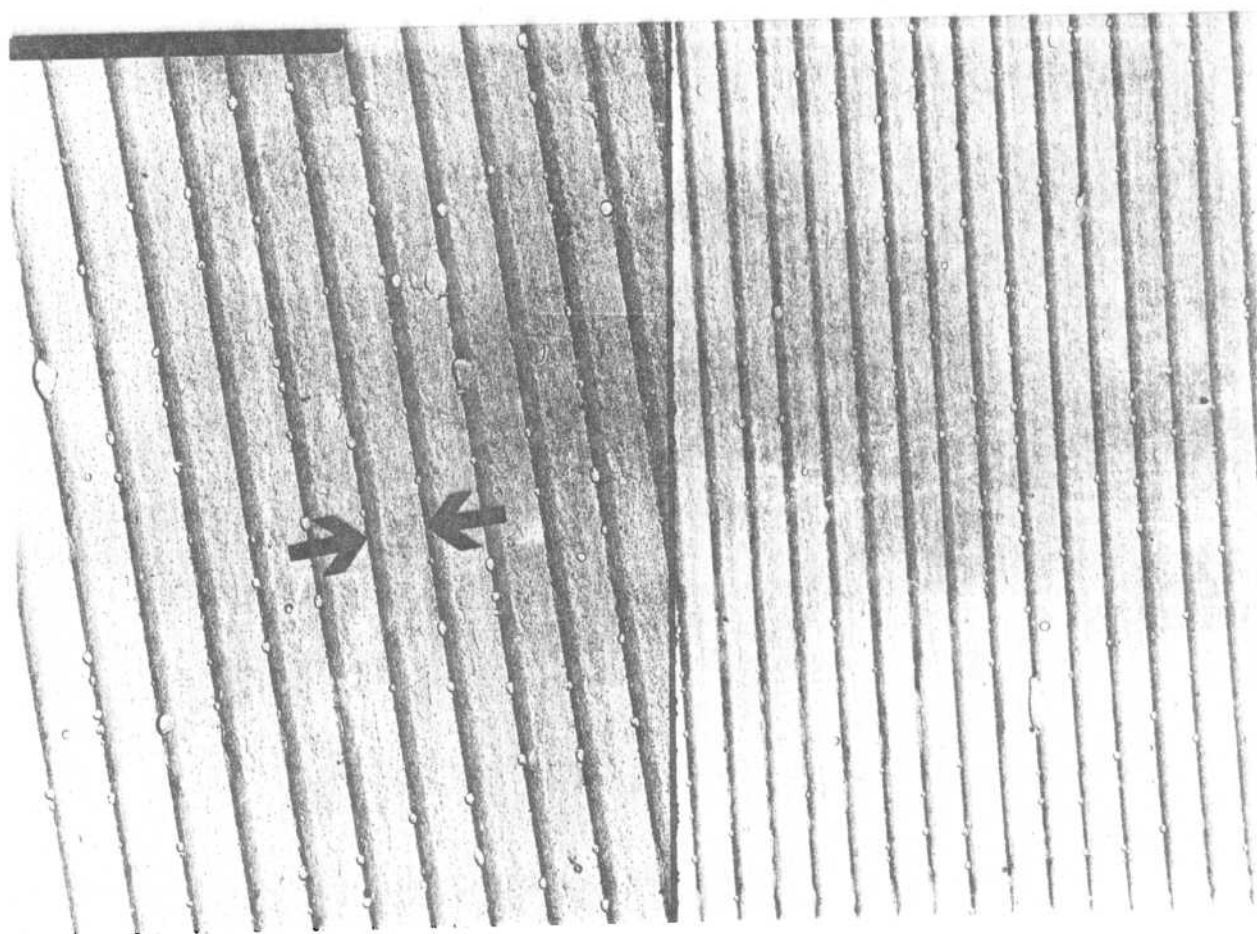


Fig.II.9 - Imagen de una réplica de carbono de una red de difracción óptica de espaciado igual a 0.88μ , utilizada para la calibración de los aumentos en un microscopio electrónico.

Por otra parte cada muestra en particular puede montarse en el soporte del microscopio en una posición ligeramente diferente. 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 $\pm 5 \%$ 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 [6] 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 $d = 84.4 \text{ \AA}$, ver Capítulo IV. Este método permite además calibrar distintas zonas de la pantalla de observación, 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 necesario volver a efectuar la calibración completa de aumentos y rotaciones.

II.12 - 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. Ya se ha visto que la primer imagen dada por la lente objetivo se forma sobre un plano denominado I_1 y que el diagrama de difracción está focalizado 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 finalmente en la pantalla de observación. Pero existe una rotación adicional que hay que tener en cuenta. En efecto, para pasar de difracción a imagen es necesario aumentar la corriente en la lente intermedia. Por lo tanto 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 las respectivas placas fotográficas, éstas deben colocarse de la manera indicada en la Fig.II.10.

El ángulo θ puede determinarse experimentalmente, para cada aumento del microscopio, mediante la observación de un cristal de estructura conocida. Normalmente se utilizan pequeños cristales de trioxido 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 colodión o de carbono amorfo.

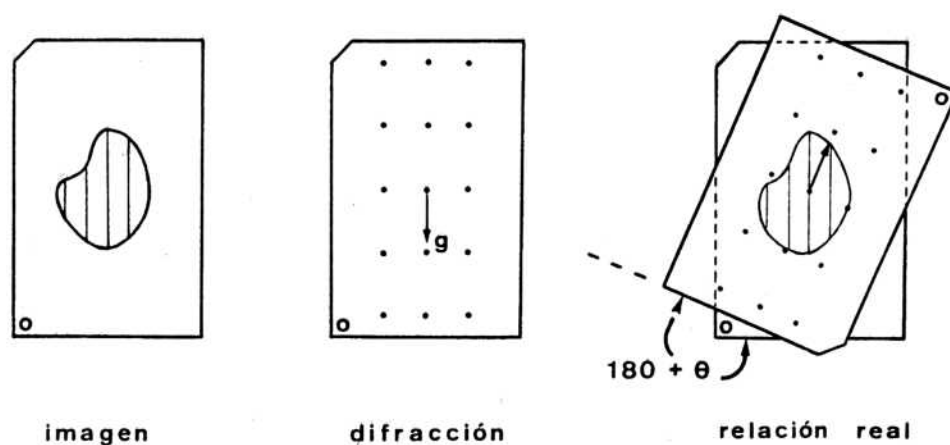


Fig.II.10 - La imagen electrónica y su respectivo diagrama de difracción están rotados en 180° más un ángulo adicional θ . Por lo tanto para obtener la correspondencia real entre difracción e imagen, es necesario girar el diagrama de difracción en $(180^\circ + \theta)$ en el sentido de las agujas del reloj.

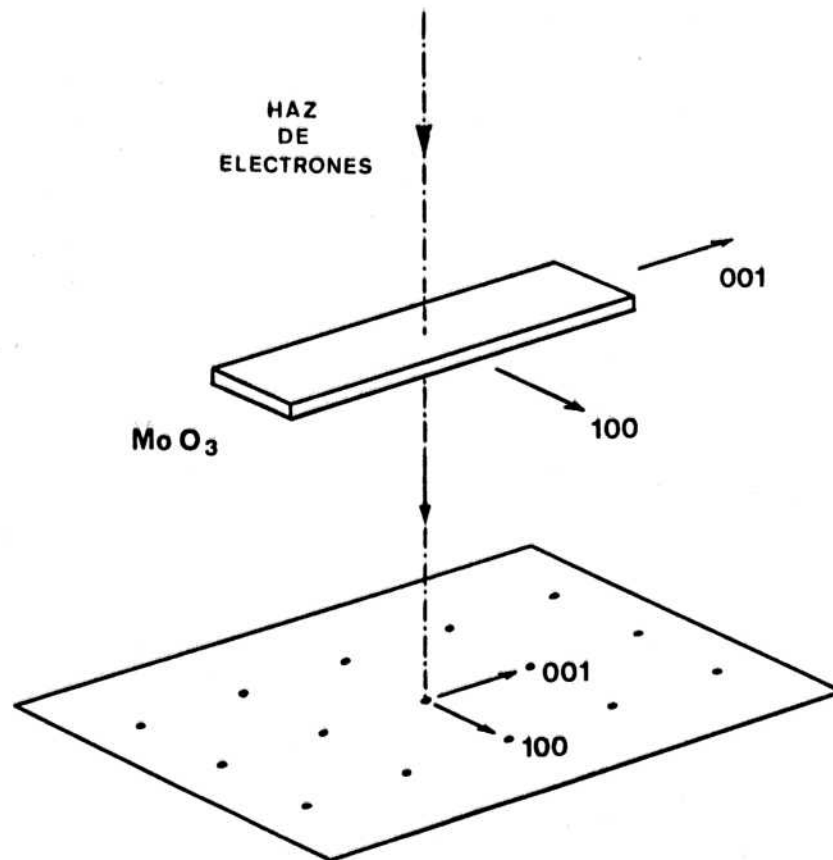


Fig.II.11 - Relación entre la forma de los cristales de trióxido de Molibdeno y su diagrama de difracción.

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 espaciados cristalinos correspondientes son

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

De acuerdo a la ley de Bragg, Capítulo III, 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 en la Fig.II.11. La medición del ángulo θ resulta entonces muy fácil. Conviene siempre registrar imagen y difracción en un mismo negativo, para evitar posibles errores de montaje en sus respectivos soportes. La calibración de las rotaciones relativas para el microscopio electrónico Philips EM 300 se detalla en la publicación mencionada anteriormente [5].

REFERENCIAS

- 1 - Electron Microscopy of Thin Crystals, A.Howie, P.B.Hirsch, R.B.Nicholson, D.W.Pashley, M.J.Whelan, Butterworths, 1965.
- 2 - R.D.Heidenreich, Fundamentals of Transmission Electron Microscopy, Interscience, John Wiley, 1964
- 3 - A.N.Broers, Electron Gun Using Long-Life Hexaboride Cathode, J.Appl.Physics, JAPIA, Vol.38, 1967, p.1991.
- 4 - Operación del Microscopio Electrónico Philips EM 300, PMM/A-155, X Curso Panamericano de Metalurgia, Departamento Metalurgia, CNEA, Buenos Aires, 1974.
- 5 - Calibración de los Aumentos y las Rotaciones Relativas en el Microscopio Electrónico Philips EM 300, PMM/A-63, Departamento Metalurgia, CNEA, Buenos Aires, 1971.
- 6 - R.T.Murray y R.P.Ferrier, J.Ultrastruct.Res. 21 (1968) 361.

III - TEORIA CINEMATICA

III.1 - Teoría Cinemática de la Difracción de Electrones

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. Esta suposición 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 considerado. En el caso de los rayos X las secciones eficaces de difusión son pequeñas, y la teoría cinemática es aplicable hasta 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 interaccionar con el cristal se reduce a unos pocos cientos de Å. Como el espesor de una lámina delgada está comprendido entre unos 1000 y 3000 Å es claro que la teoría cinemática no puede predecir correctamente las intensidades electrónicas difractadas.

Pero la aproximación es adecuada para describir las características generales del fenómeno de difracción, y en particular la distribución geométrica de los haces difractados [1]. Se verá 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 IV se verá luego que la teoría cinemática, a pesar de todas sus limitaciones, constituye también una buena aproximación para describir las imágenes de defectos cristalinos.

III.2 - Función de Onda Asociada a un Haz de Electrones

La naturaleza ondulatoria de un haz de electrones acelerados por un potencial, 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 de electrones 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

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

donde

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

$\mathbf{r}$ = vector posición

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

La ecuación (III.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 (III.1) se reduce a

$$\nabla^2 \Psi(\mathbf{r}) + \frac{8\pi^2m}{h^2} E \Psi(\mathbf{r}) = 0 \quad (\text{III.2})$$

Llamando

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

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

$$\Psi_k(\mathbf{r}) = C_k e^{2\pi i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} = C_k (\cos 2\pi \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + i \sin 2\pi \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \quad (\text{III.3})$$

donde los coeficientes C_k se ajustan de manera de satisfacer condiciones de contorno y normalización, y $\mathbf{k}$ es el vector de onda, paralelo a la dirección de

propagación, tal que

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

(III.4)

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

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{mv}$$

(III.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

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

(III.6)

$$m_0 = \text{masa en reposo del electrón} = 9.1083 \times 10^{-28} \text{ gr}$$

$$c = \text{velocidad de la luz} = 2.998 \times 10^{10} \text{ cm/seg}$$

X

Se obtiene finalmente

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

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

$$mc^2 - m_0c^2 = eV_0$$

(III.7)

donde

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

Escribiendo
Según (III.7)

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

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

$$(m + m_0)eV_0 = m^2 v^2$$

Sustituyendo en (III.5)

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{(m + m_0)eV_0}}$$

y como según (III.7)

$$m = \frac{eV_0}{c^2} + m_0$$

resulta finalmente

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{2m_0 eV_0 (1 + \frac{eV_0}{2m_0 c^2})}}$$

(III.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

$$\lambda \text{ (Å)} = \frac{12.26}{V_0^{1/2} (1 + 0.9788 \cdot 10^{-6} V_0)^{1/2}}$$

(III.9)

donde V_0 se expresa en volts. La corrección relativista

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

recién es apreciable para tensiones de aceleración superiores a 10^5 volts. En la Tabla III.1 se dan los valores de la longitud de onda λ , m/m_0 , y v/c para distintas tensiones de aceleración. Es interesante notar que para una tensión de 10^5 volts, valor común en un microscopio electrónico de transmisión, el haz de

electrones es acelerado hasta una velocidad del orden de la mitad de la velocidad de la luz.

TABLA III.1

V_0 (volts)	$\lambda = \frac{12.26}{V_0^{1/2} [1 + 0.9788 \times 10^{-6} V_0]^{1/2}}$ λ (Å)	$\frac{m}{m_0} = \frac{h^2}{\lambda^2 m_0 e V_0} - 1$ m / m_0	$\frac{v}{c} = \sqrt{1 - \frac{1}{(\frac{m}{m_0})^2}}$ v / c
1	12.26	(X) 1.000002 (1.016309)	0.0020
100	1.226	1.000106	0.0198
1000	0.3876	1.00196	0.0625
10000	0.1220	1.01957 - (1.036)	0.1950
10^5	0.037	1.1957	0.5482
10^6	0.0087	2.9569	0.9411

III.3 - Difusión de Electrones por un Atomo. Factor de Difusión.

La difusión de un haz de electrones por un átomo se plantea en términos de mecánica ondulatoria como la difusión de una onda plana del tipo (III.3) por un potencial de simetría central $V(r)$. Este potencial representa el grado de interacción entre la onda incidente (electrones) y el centro difusor (átomos). Es claro que cuanto mayor es $V(r)$ tanto mayor es la capacidad del átomo considerado para difundir un haz de electrones. La solución de la ecuación de Schroedinger es en este caso de la forma

$$\Psi(r) = \underbrace{\Psi_1(r)}_{\text{onda plana}} + \underbrace{\Psi_2(r)}_{\text{onda esférica}} = e^{2\pi i k \cdot r} + \frac{f(2\theta)}{r} e^{2\pi i k' \cdot r} \quad (\text{III.10})$$

haz incidente

donde el primer término describe una onda plana, correspondiente al haz incidente, mientras que el segundo es una onda esférica que corresponde al haz de partículas difundidas radialmente por el centro difusor. El módulo del vector de onda k' correspondiente a la onda difundida no varía, es decir

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

El ángulo que forma k con 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 $V(r)$.

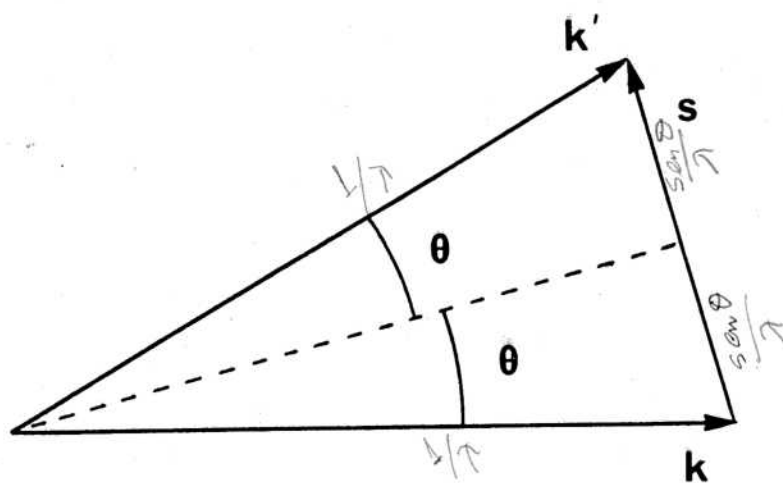


Fig.III.1 - Definición del Vector de Difusión $\vec{s}$. Este es igual al vector diferencia entre el vector de onda $\vec{k}'$ de la onda difundida, y el vector $\vec{k}$ correspondiente a la onda incidente. El ángulo 2θ se denomina ángulo de difusión.

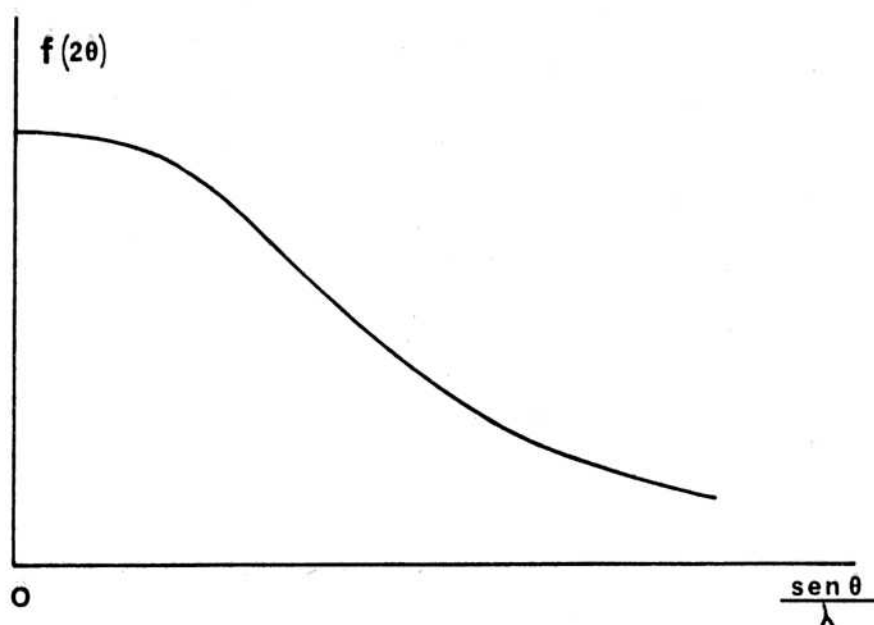


Fig.III.2 - Variación del Factor Atómico de Difusión $f(2\theta)$ con el ángulo de difusión 2θ a través del parámetro $\frac{\sin \theta}{\lambda}$.

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

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

Se puede demostrar [1] que la expresión del factor atómico de difusión para un haz de electrones es

$$f(2\theta) = \frac{m_0 c^2}{2h^2} \left(\frac{\lambda}{\sin \theta} \right)^2 (Z - f_x)$$

$$f(2\theta) = \text{dif de los } e^- \text{ x el núcleo} + \text{dif de los } e^- \text{ por la nube elect} \quad (\text{III.12})$$

donde

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

es el factor atómico de difusión para los rayos X, ver p.ej. referencia [4]. El vector $\mathbf{s}$ dado por

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

se denomina vector de difusión, o vector recíproco, Fig.III.1. Su módulo es igual a

$$|\mathbf{s}| = s = \frac{2 \sin \theta}{\lambda}$$

El primer término de (III.12) corresponde a la difusión de electrones por el núcleo atómico, y el segundo proviene 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.III.2.

Es fácil ver cual es la distribución de la intensidad difundida por un conjunto de átomos libres cuando incide sobre ellos un haz monoenergético de electrones. Como no existe ninguna relación de orden entre los átomos del conjunto, 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 el cuadrado del factor $f(2\theta)$. Una muestra de estas características, como sería el caso de una réplica de

carbono amorfo, observada en el microscopio electrónico operando en difracción, da origen a una mancha difusa alrededor del haz incidente, cuya intensidad decrece rápidamente con el ángulo 2θ .

El diagrama de difracción es distinto cuando el haz incide sobre una muestra constituida por átomos ordenados, como es el caso de un cristal.

III.4 - 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 primer paso hacia el caso real de un cristal, estudiaremos primero los fenómenos de difracción de una onda por una red puntual. Como se verá luego, los resultados fundamentales de este análisis son independientes del motivo atómico de repetición, y válidos para todo tipo de red.

III.4.1 - Cristalografía. Red Geométrica.

Un cuerpo cristalino está caracterizado por el ordenamiento de sus átomos en toda su extensión. Dado que este ordenamiento es periódico según las tres dimensiones del espacio, las estructuras cristalinas se describen en base a una abstracción geométrica: la red tridimensional de puntos. Luego, como se verá más adelante, un cristal real se construye asociando a cada punto de una red geométrica una cierta configuración de átomos o moléculas.

Una red geométrica tridimensional es un conjunto de puntos distribuidos regularmente en el espacio de tal manera que cada uno de ellos está rodeado por una distribución idéntica de puntos vecinos, [5]. Una red tridimensional se genera a partir de tres vectores no coplanarios $\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3$, denominados vectores base. Cada punto de la red queda definido por el extremo de un vector que es combinación lineal de los vectores base

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

(III.13)

donde u, v, w , son enteros positivos, negativos o nulos. El punto correspondiente se denomina **nodo** (uvw). Según las direcciones de $\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3$, los nodos de la red se distribuyen en intervalos regulares de longitudes a_1, a_2, 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 (III.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 el conjunto se denomina familia de filas reticulares $[uvw]$.

Tres familias de filas reticulares no coplanares entre si, 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.III.3, que contienen solamente nodos en sus vértices se denominan **primitivas**. Una celda como la **M** en la misma figura, contiene dos nodos propios

- 8 en los vértices, compartidos con 8 celdas vecinas
- 2 en las caras superior e inferior, compartidos a su vez con dos 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 existen solo 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 centro 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 III.2 y las celdas que las describen se muestran esquemáticamente en la Fig.III.4.

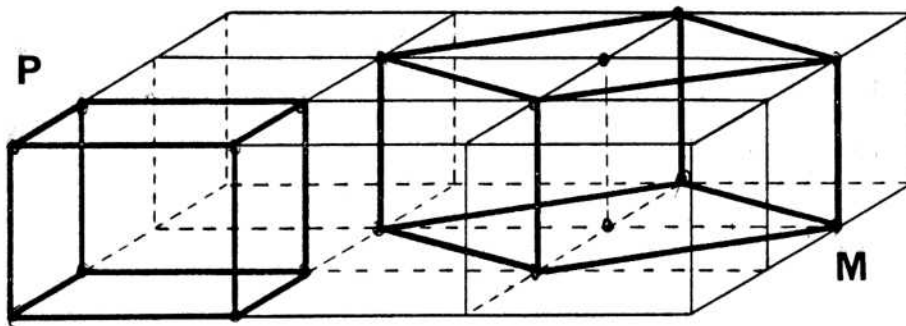


Fig.III.3 - Celdas en una Red Geométrica tridimensional.
P : Celda primitiva. **M** : Celda Múltiple

TABLA III.2

Sistema	Nº de Redes	Tipo de Celdas	Relación entre Longitudes a_1, a_2, a_3 , y áng. α, β, γ	
Triclínico	1	P	$a_1 = a_2 = a_3$	$\alpha = \beta = \gamma$
Monoclínico	2	P, B, C	$a_1 = a_2 = a_3$	$\alpha = \beta = 90^\circ = \gamma$
Ortorrómbico	4	P, C, I, F	$a_1 = a_2 = a_3$	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$
Tetragonal	2	P, I	$a_1 = a_2 = a_3$	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$
Trigonal	1	P	$a_1 = a_2 = a_3$	$\alpha = \beta = \gamma < 120^\circ = 90^\circ$
Hexagonal	1	P	$a_1 = a_2 = a_3$	$\alpha = \beta = 90^\circ, \gamma = 120^\circ$
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 conveniente utilizar una celda primitiva dada su simplicidad, pero también es común elegir alguna celda múltiple que por tener aristas iguales o ángulos rectos entre las mismas resalta más claramente alguna de las simetrías de la red que se quiere describir. Un ejemplo ilustrativo es el de la red cúbica F, Fig.III.5. La celda primitiva es trigonal de tipo P, caracterizada por

$$a_1 = a_2 = a_3 \quad \alpha = \beta = \gamma$$

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, dos filas reticulares paralelas, 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 misma familia se denomina **espaciado**. Una familia de planos dada contiene todos los nodos de la red incluyendo el nodo origen.

Un conjunto de planos de distintas familias que se cortan según una misma fila reticular, define una **zona**. Si $[uvw]$ son los índices de esta fila, ésta constituye

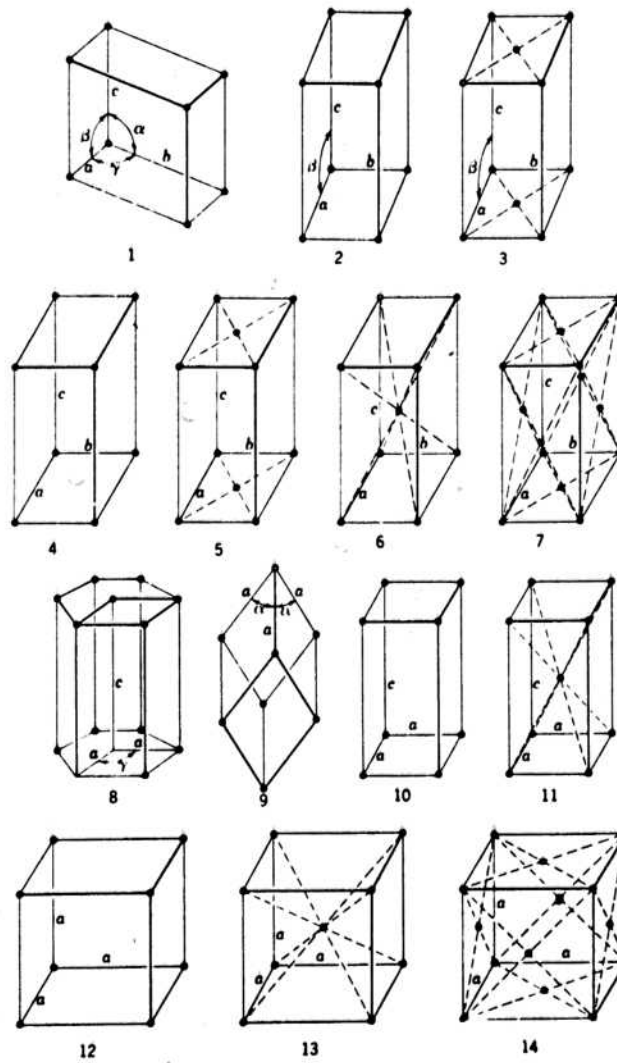


Fig.III.4 - Esquema de las 14 redes de Bravais.

1 : Triclínico. 2,3 : Monoclínico. 4,5,6,7 : Ortorrómbico.
 8 : Hexagonal. 9 : Trigonal. 10,11 : Tetragonal.
 12,13,14 : Cúbico.

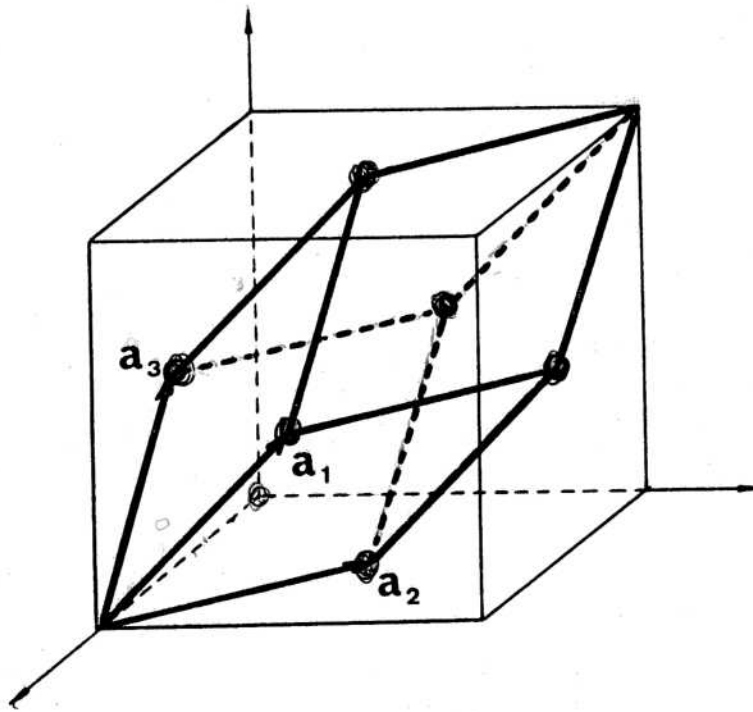


Fig.III.5 - Elección de la celda en una red cúbica de caras centradas. Esta se puede describir por medio de una celda cúbica múltiple que contiene 4 nodos, o también por una celda trigonal primitiva.

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 , γ , que forma la normal a los mismos con los tres vectores base a_1 , a_2 , 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 se usan normalmente, los llamados **índices de Miller**.

Consideremos una red definida por tres vectores base a_1 , a_2 , a_3 , y una familia de planos reticulares, Fig.III.6. Un plano de la familia pasa por el origen O y otro por el nodo situado en el extremo del vector a_1 . El conjunto de los planos intermedios corta al eje a_1 en segmentos iguales, de una cierta longitud a_1/h . De la misma manera el vector a_2 es cortado en segmentos de longitud a_2/k , y el eje 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 normalmente en cristalografía. Si un plano de una familia cualquiera corta a los ejes a_1 , a_2 , a_3 , en segmentos distantes del origen a , b , c , los índices de Miller de la familia de planos están dados por

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

donde M es el mínimo común múltiplo de a , b , 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 red original mediante una transformación adecuada. En esta nueva red, denominada **red recíproca**, cada nodo representa una familia de planos (hkl) de la red original, o directa. El formulismo de la red recíproca introducido inicialmente como una representación geométrica, es de fundamental importancia en la teoría de la difracción. 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 puede visualizar fácilmente en el caso simple de la red bidimensional de la Fig.III.7 (a). El punto O es el origen de los vectores $\vec{r}_{uv}$, ec.(III.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.III.7 (a) y (b) se representan algunas familias de planos de la red directa y los vectores recíprocos correspondientes.

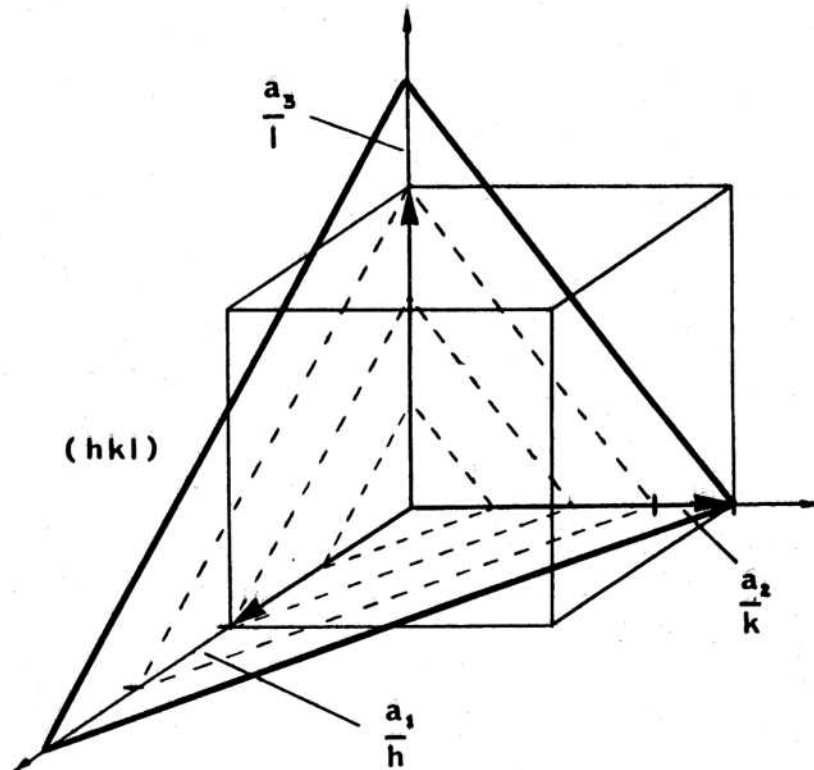


Fig.III.6 - Indices de Miller (hkl) correspondientes a una familia de planos reticulares.

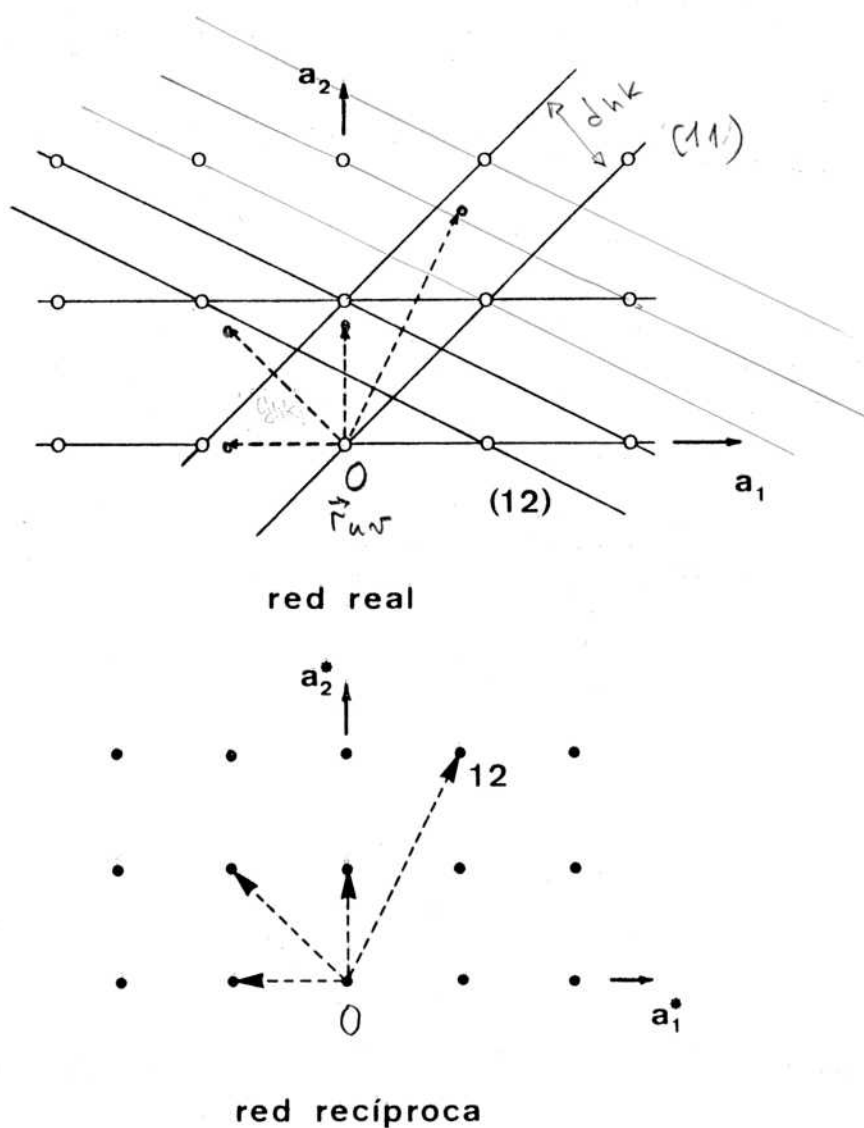


Fig.III.7 - Esquema de construcción de la red recíproca de una red geométrica bidimensional. A cada familia de planos reticulares (hk) de la red directa de espaciado d_{hk} se le asigna un vector perpendicular $\vec{g}_{hk}$ tal que $g_{hk} = 1 / d_{hk}$. Los extremos de los vectores $\vec{g}_{hk}$ describen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

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

$$\mathbf{a}_1^* = \frac{\mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3}{V_c}, \quad \mathbf{a}_2^* = \frac{\mathbf{a}_3 \times \mathbf{a}_1}{V_c}, \quad \mathbf{a}_3^* = \frac{\mathbf{a}_1 \times \mathbf{a}_2}{V_c}$$

(III.14)

donde

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

describe la red recíproca de la red dada. A partir de la definición (III.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 la red recíproca se verifican las relaciones

$$\mathbf{a}_1^* \cdot \mathbf{a}_1 = \mathbf{a}_2^* \cdot \mathbf{a}_2 = \mathbf{a}_3^* \cdot \mathbf{a}_3 = 1$$

$$\mathbf{a}_1^* \cdot \mathbf{a}_2 = \mathbf{a}_2^* \cdot \mathbf{a}_3 = \mathbf{a}_1^* \cdot \mathbf{a}_3 = \dots = 0$$

- Todo vector de la red recíproca del tipo

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

(III.16)

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

- Propiedad fundamental de la red recíproca : el módulo de $\mathbf{r}_{hkl}^*$ es igual a la inversa del espaciado d_{hkl}

$$|\mathbf{r}_{hkl}^*| = \frac{1}{d_{hkl}}$$

de plano
(III.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.

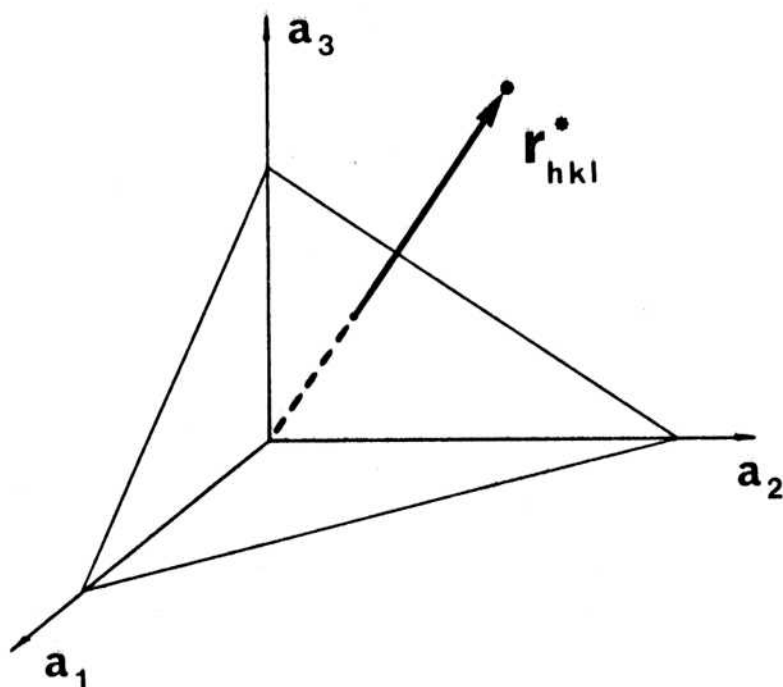


Fig.III.8 - Propiedad fundamental de la red recíproca. Todo vector r^*_{hkl} es perpendicular a la familia de planos reticulares (hkl) de la red directa, y su módulo es igual a $1/d_{hkl}$.

- Si los vectores base de la red directa $\mathbf{a}_1$, $\mathbf{a}_2$, $\mathbf{a}_3$, son ortogonales entre si, entonces

$$\mathbf{a}_1^* \parallel \mathbf{a}_1 \quad \mathbf{a}_2^* \parallel \mathbf{a}_2 \quad \mathbf{a}_3^* \parallel \mathbf{a}_3$$

(III.18)

y además

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

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

$$|\mathbf{r}_{2h,2k,2l}^*| = \frac{2}{d_{hkl}}$$

(III.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.III.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 definición de red recíproca y se utilizan continuamente en la interpretación de diagramas de difracción de electrones.

- La red recíproca de una 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 asociando a cada nodo de una red de Bravais un motivo o configuración de átomos o moléculas

Una estructura cristalina queda entonces determinada por dos elementos diferentes

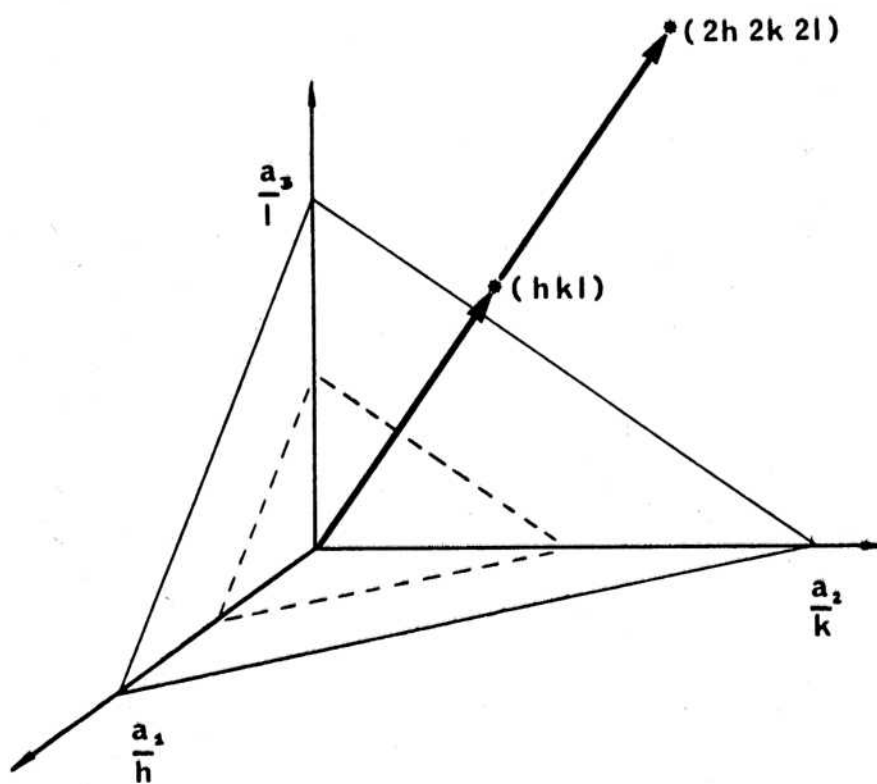


Fig.III.9 - Un nodo $(2h, 2k, 2l)$ de la red recíproca representa una familia de planos reticulares de espaciado $d_{hkl}/2$.

- la red de Bravais definida por traslaciones del tipo $\vec{r}_{uvw}$ a partir de un cierto origen O
- una configuración atómica distribuida 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 todos los átomos que componen el motivo de repetición. Estas coordenadas atómicas se expresan en fracciones (xyz) de las longitudes de las aristas a_1 , a_2 , 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 es igual a la geometría de los planos cristalinos. Este es el caso de numerosos metales: el Cu, Al, Ag, cristalizan según una red cúbica F, mientras que el Fe, Mo, W, son cúbicos de tipo I. En cambio, el Mg, Zn, Be, Co, cristalizan según la estructura hexagonal compacta, que se describe por medio de una red hexagonal P. A cada nodo de esta red se le asocia un motivo compuesto por dos átomos.

III.4.2 - Difracción por una Red Geométrica Tridimensional

De acuerdo al breve resumen de la sección anterior, 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 los fenómenos de difracción de una onda por una red, considerando simplemente que cada nodo se convierte en un centro emisor de ondas esféricas, ec.III.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 son independientes del motivo atómico de repetición.

Consideraremos 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.III.10. Las ondas difundidas por los dos centros 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.III.10 el centro difusor A_0 , de factor de difusión f , es coincidente con el origen O . El vector $\vec{S}_0$ es un vector unitario en la dirección y sentido del haz incidente, y $\vec{S}$ es el vector unitario en la dirección de interés. El ángulo entre $\vec{S}$ y $\vec{S}_0$ se denomina 2θ .

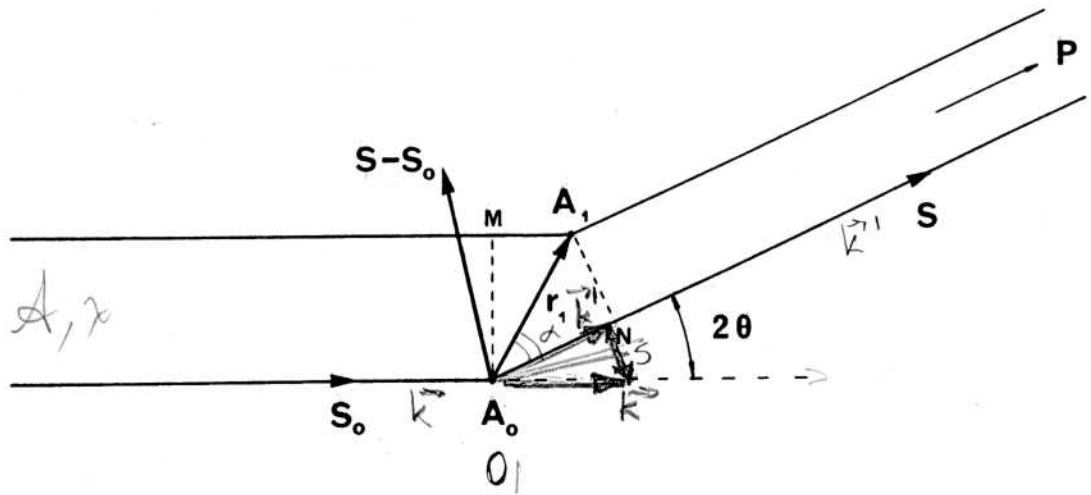


Fig.III.10 - Difusión de una onda por dos nodos de una red geométrica (átomos) separados por una distancia r_1 .

La onda difundida por A_0 es de la forma, según la ec.III.10,

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

donde

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

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

$$\begin{aligned}\Delta &= NA_0 - MA_1 \\ &= \vec{S} \cdot \vec{r}_1 - \vec{S}_0 \cdot \vec{r}_1 \\ &= (\vec{S} - \vec{S}_0) \cdot \vec{r}_1\end{aligned}$$

y por lo tanto la diferencia de fase está dada por

$$\phi = \frac{2\pi}{\lambda} \Delta = 2\pi \frac{\vec{S} - \vec{S}_0}{\lambda} \cdot \vec{r}_1 = 2\pi \underbrace{(\vec{k} - \vec{k}')}_{\vec{s}} \cdot \vec{r}_1$$

(III.20)

Llamando

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

(III.21)

resulta

$$\phi = 2\pi \vec{s} \cdot \vec{r}_1$$

(III.22)

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

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

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

$$\begin{aligned} u &: \text{entre } 0 \text{ y } N_1-1 \\ v &: \text{entre } 0 \text{ y } N_2-1 \\ w &: \text{entre } 0 \text{ y } N_3-1 \end{aligned}$$

La expresión (III.25) puede escribirse entonces

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

Cada uno de los factores de (III.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

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

y las respectivas sumas son de la forma

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

y expresiones similares para las sumas sobre los índices v y w . Por otro lado, 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

$$\psi_1 = \frac{1}{2} (2\pi \vec{a}_1 \cdot \vec{s}), \quad \psi_2 = \frac{1}{2} (2\pi \vec{a}_2 \cdot \vec{s}), \quad \psi_3 = \frac{1}{2} (2\pi \vec{a}_3 \cdot \vec{s}) \quad \text{III.28}$$

(III.28)

y teniendo en cuenta que

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

y la relación trigonométrica

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

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

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

(III.29)

o en forma más abreviada

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

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

Cada una de las funciones del tipo

$$\frac{\text{sen}^2 N_1 \psi_1}{\text{sen}^2 \psi_1}$$

tiene una forma muy particular, Fig.III.11. En efecto, presenta máximos muy acentuados iguales a N_1^2 para valores del argumento $\psi_1 = h\pi$ y ceros para $\psi = (h + 1/N_1)\pi$, siendo h un entero cualquiera. Los máximos son más pronunciados y angostos cuanto mayor es el valor de N_1 . (III.30)

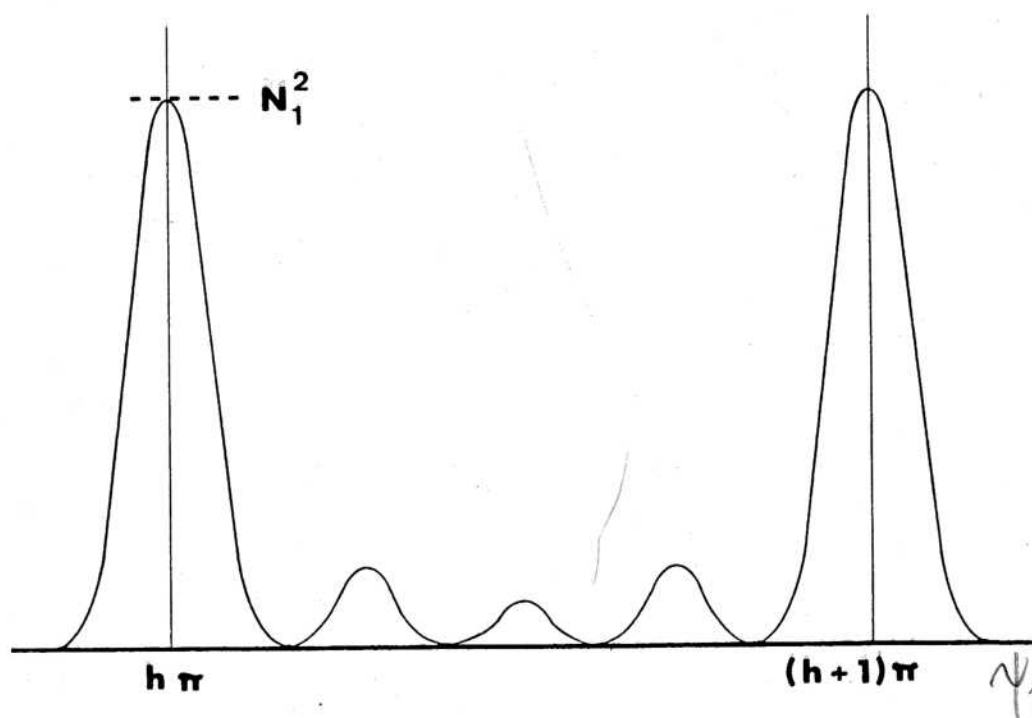


Fig.III.11 - Intensidad difractada por una red geométrica. Presenta máximos muy marcados cuando el argumento ψ_1 es un múltiplo entero de π . La forma particular de esta función indica que solamente en ciertas y bien determinadas direcciones existirá un haz difractado.

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 valores mínimos cuando N_1 es muy grande. De esta manera la función (III.30) tiene valores apreciables solo en los puntos de abscisa $\psi_1 = h\pi$ que corresponden a los máximos principales.

La función $I(s)$ dada por (III.29) es por lo tanto despreciable, salvo cuando los tres argumentos (III.28) son múltiplos enteros de π . En este caso

$$I(s) = \frac{f^2}{r^2} N_1^2 N_2^2 N_3^2 = \frac{f^2}{r^2} N^2$$

(III.31)

y se verifican las llamadas condiciones de Laue

$$\psi_1 = \frac{1}{2} (2\pi \vec{a}_1 \cdot \vec{s}) = h\pi$$

$$\psi_2 = \frac{1}{2} (2\pi \vec{a}_2 \cdot \vec{s}) = k\pi$$

$$\psi_3 = \frac{1}{2} (2\pi \vec{a}_3 \cdot \vec{s}) = l\pi$$

(III.32)

siendo h, k, l , enteros cualesquiera, positivos negativos o nulos. Llamando α, β, γ , a los ángulos que forma el vector recíproco $\vec{s}$ con los ejes $\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3$, respectivamente, los productos escalares de (III.32) pueden desarrollarse teniendo en cuenta (III.23)

$$a_1 \frac{2 \sin \theta}{\lambda} \cos \alpha = h$$

$$a_2 \frac{2 \sin \theta}{\lambda} \cos \beta = k$$

$$a_3 \frac{2 \sin \theta}{\lambda} \cos \gamma = l$$

(III.33)

Las expresiones (III.32) o (III.33) expresan las condiciones generales para que exista un haz difractado 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 $\vec{s}$ en la terna $\vec{a}_1$, $\vec{a}_2$, $\vec{a}_3$. Las condiciones de Laue (III.33) expresan que dichos cosenos son proporcionales a

(III.34)

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

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.III.12 puede verse que los cosenos directores de la normal $\vec{n}$ están dados por

$$\cos\alpha = \frac{d_{hkl}}{a_1/h}, \cos\beta = \frac{d_{hkl}}{a_2/k}, \cos\gamma = \frac{d_{hkl}}{a_3/l}$$

(III.35)

Dividiendo por el factor común d_{hkl} estas últimas ecuaciones se reducen a las dadas por (III.34). Por lo tanto la condición necesaria para que en una cierta dirección exista intensidad difractada, es que el vector $\vec{s}$ dado por (III.21) sea normal a una familia de planos reticulares (hkl). Si se cumple esta condición, entonces es fácil ver que las direcciones de los posibles haces difractados ($\vec{S}$) y del haz incidente ($\vec{S}_0$) están relacionadas entre si como en una reflexión óptica. Por ello se suele hablar indistintamente de haces difractados, haces reflejados, o de una reflexión (hkl).

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

$$2 d_{hkl} \sin \theta = \lambda$$

(III.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 toda radiación de longitud de onda λ (sea ésta un haz de Rayos X, un haz de electrones, neutrones) por una red geométrica de puntos.

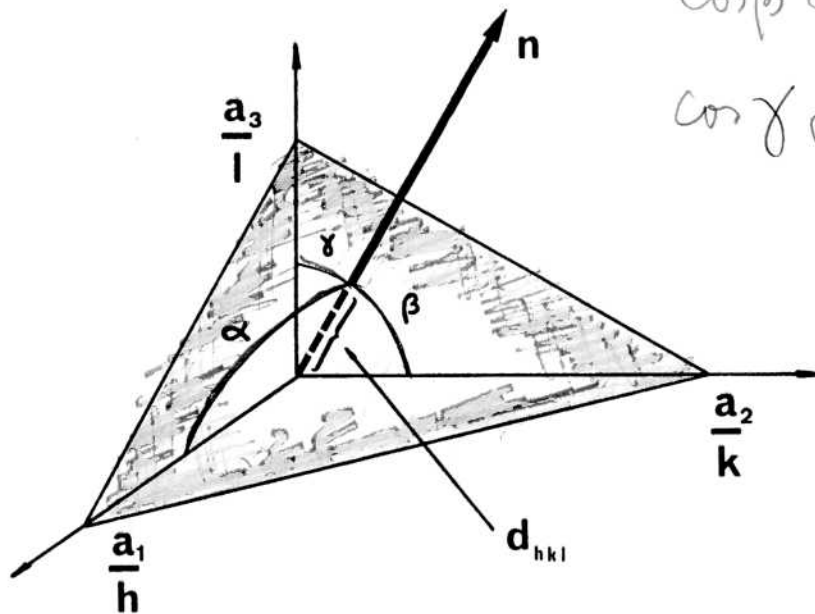
La ecuación (III.36) fue deducida inicialmente por Bragg en 1913 para el caso particular de los Rayos X, suponiendo que una familia de planos reticulares reflejaba la radiación incidente de acuerdo a las leyes de la reflexión óptica. Según el formulismo de Bragg, si un haz de radiación de longitud de onda λ incide sobre una familia de planos (hkl) formando un ángulo θ , Fig.III.13, la diferencia de los caminos recorridos por los haces (1) y (2) es

$$\begin{cases} \psi_1 = \frac{1}{2} (2\pi \vec{a}_1 \cdot \vec{S}) = \pi h \\ \psi_1 = \frac{a_1 2 \sin \theta}{\lambda} \cos \alpha = \pi h \end{cases} \quad 81$$

$$\begin{cases} \psi_2 = \frac{1}{2} (2\pi \vec{a}_2 \cdot \vec{S}) = \pi k \\ \psi_2 = \frac{a_2 2 \sin \theta}{\lambda} \cos \beta = \pi k \end{cases}$$

$$32 \quad \vec{S} = \vec{k}' - \vec{k}$$

$$\begin{aligned} \cos \alpha &\propto \frac{h}{a_1} \\ \cos \beta &\propto \frac{k}{a_2} \\ \cos \gamma &\propto \frac{l}{a_3} \end{aligned}$$



$$\begin{aligned} \frac{a_1 2 \sin \theta}{\lambda} \cos \alpha &= h \\ \frac{a_2 2 \sin \theta}{\lambda} \cos \beta &= k \\ \frac{a_3 2 \sin \theta}{\lambda} \cos \gamma &= l \end{aligned}$$

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

Fig.III.12 - Cosenos directores de la normal a una familia (hkl) de planos reticulares.

$$\frac{a_1 2 \sin \theta}{\lambda} \frac{d_{hkl}}{a_1/h} = h$$

$$\frac{a_2 2 \sin \theta}{\lambda} \frac{d_{hkl}}{a_2/k} = k$$

$$\frac{a_3 2 \sin \theta}{\lambda} \frac{d_{hkl}}{a_3/l} = l$$

$$2 \sin \theta d_{hkl} = \lambda$$

$$2 \sin \theta d_{hkl} = \lambda$$

$$2 \sin \theta d_{hkl} = \lambda$$

$$\Delta = AO' + O'B = 2 d_{hkl} \sin \theta$$

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

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

siendo $n = 1, 2, 3$, un número entero que indica el **orden** del haz difractado. Aunque la ec.(III.37) predice correctamente la dirección de los haces difractados por un cristal, actualmente se prefiere el formulismo de Laue pues esta teoría es mucho más general. En efecto, además de determinar la orientación de los haces difractados, permite calcular el valor de las respectivas intensidades. También preve el efecto del tamaño del cristal, a través de las cantidades N_1, N_2, N_3 , sobre el ancho angular de los máximos de difracción. Actualmente tampoco se habla del orden de un haz difractado, pues escribiendo (III.37) de la forma

$$2 \frac{d_{hkl}}{n} \sin \theta = \lambda \quad (\text{III.38})$$

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

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

III.4.3 - Esfera de Ewald

Las condiciones de difracción de una radiación de longitud de onda λ por una red geométrica tridimensional, ec.(III.32), Condiciones de Laue, o su equivalente la ec.(III.36), Ley de Bragg, pueden visualizarse fácilmente mediante la Construcción de **Ewald**, Fig.III.14. Ya se ha visto que si se cumplen las condiciones de difracción, el vector s es normal a la familia de planos (hkl) , y su módulo es

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

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

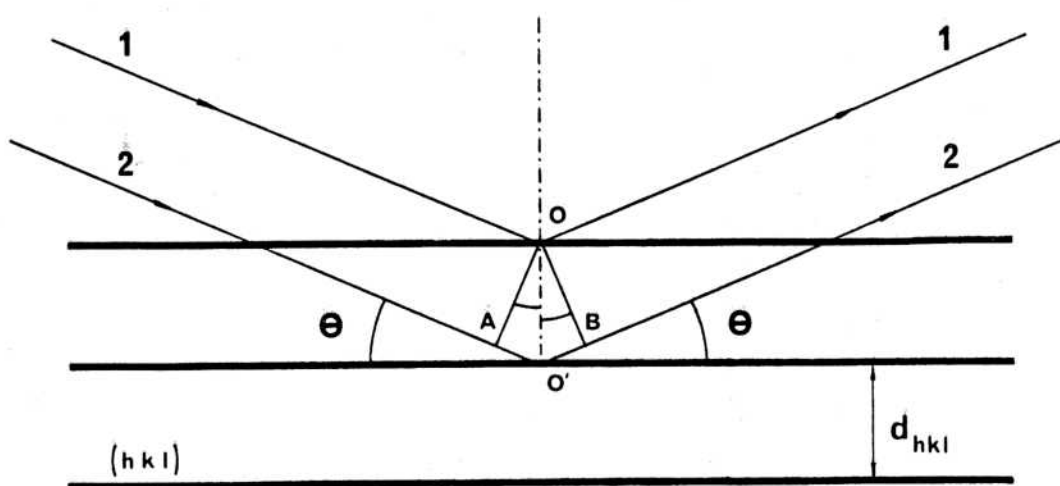


Fig.III.13 - Esquema para la deducción de la ley de Bragg, suponiendo que una familia (hkl) de planos reticulares refleja la radiación incidente según las leyes de la reflexión óptica.

$$\mathbf{s} = \mathbf{r}_{hkl}^* = \mathbf{g}_{hkl}$$

(III.39)

De ahora en adelante, y de acuerdo a la nomenclatura usual en microscopía electrónica, utilizaremos la notación $\mathbf{g}_{hkl}$ para denominar todo vector de la red recíproca que une el origen (000) con un nodo (hkl). Esta forma vectorial de la ley de Bragg permite visualizar rápidamente las direcciones en las cuales puede existir un haz difractado.

Consideremos entonces la red recíproca de una red geométrica de puntos, y un haz de radiación de longitud de onda λ que incide según una dirección $\mathbf{S}_0$, Fig.III.14. Con centro en un punto P, origen de un vector

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

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

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

que es precisamente la ley de Bragg. Las condiciones de difracción pueden entonces 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 para la familia de planos reticulares (hkl). Como por definición el nodo origen (000) de la red recíproca está contenido en la esfera de Ewald, siempre existe un máximo de difracción en la dirección del haz incidente ($s = 0$).

El caso de la Fig.III.14 corresponde en realidad a una experiencia de difracción de rayos X. La longitud de onda λ ($\approx 1.5 \text{ \AA}$) es del mismo orden de los espaciados atómicos a ($\approx 2 \text{ \AA}$) y por lo tanto el radio de la esfera de Ewald ($1/\lambda$) es también del mismo orden que la distancia entre nodos vecinos de la red recíproca ($1/a$). En una orientación arbitraria del cristal, es muy baja la probabilidad de que un nodo recíproco esté contenido en la esfera. Por ello en difracción de Rayos X se utilizan muestras policristalinas, o la muestra monocristalina se hace oscilar de alguna manera conveniente.

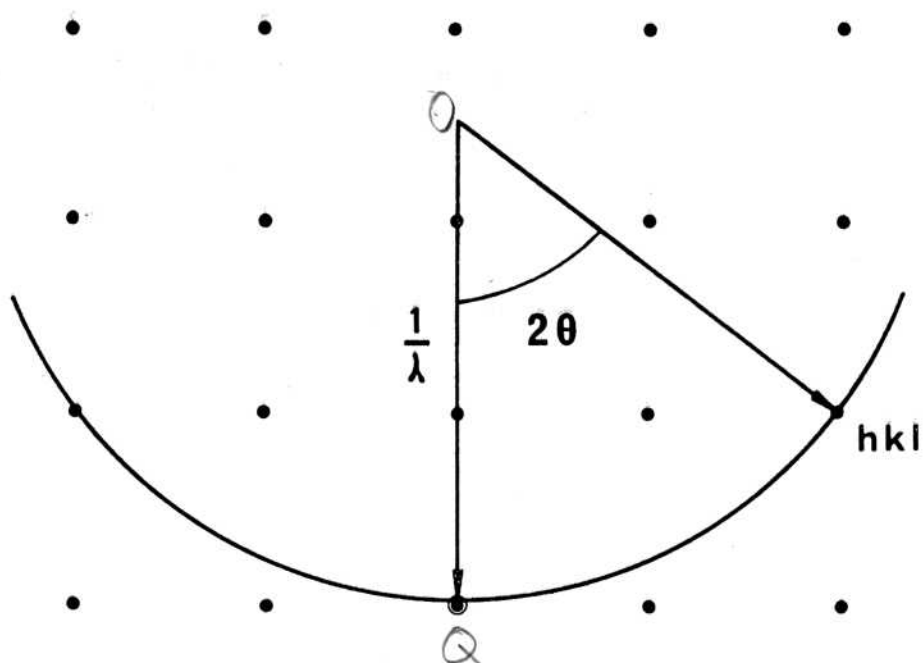


Fig.III.14 - Construcción de la Esfera de Ewald. Siempre que un nodo (hkl) de la red recíproca está ubicado sobre la superficie de la esfera de Ewald, existirá un haz difractado en la dirección que une el centro de la esfera con dicho nodo.

La situación es distinta en una experiencia de difracción de electrones en un microscopio electrónico. La longitud de onda de un haz acelerado 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.III.15, y entonces

La distribución de haces difractados en un microscopio electrónico corresponde 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 otras orientaciones, existen criterios para el indexado del diagrama y la determinación de la dirección del haz incidente en el cristal.

III.4.4 - Difracción por una Estructura Cristalina

En la sección anterior se ha tratado el fenómeno de difracción de un haz por una red geométrica tridimensional, a partir de la 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 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 (uvw). La posición de los átomos que componen el motivo, Fig.III.16, referida al nodo origen de la red, está dada por los vectores

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

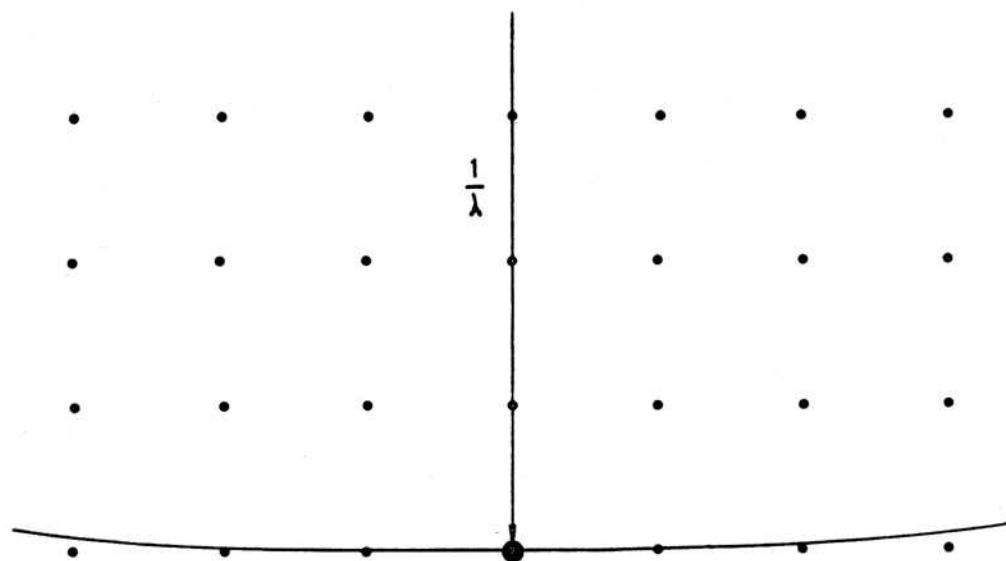


Fig.III.15 - Construcción de la Esfera de Ewald para el caso de un haz de electrones. El radio de la esfera es mucho mayor que la distancia entre nodos recíprocos. La esfera puede considerarse plana y por lo tanto los diagramas de difracción obtenidos en un microscopio electrónico representan planos enteros de la red recíproca del cristal.

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

$$A_j = \frac{1}{r} [f_1 e^{2\pi i s \cdot (r_j + R_1)} + \dots + f_n e^{2\pi i s \cdot (r_j + R_n)}]$$

$$= \frac{1}{r} e^{2\pi i s \cdot r_j} \sum_v f_v e^{2\pi i s \cdot R_v}$$

(III.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

~~X~~

$$A = \sum A_j = \frac{1}{r} \sum_j e^{2\pi i s \cdot r_j} \sum_v f_v e^{2\pi i s \cdot R_v}$$

(III.41)

La suma sobre los nodos de la red, índice j , es la expresión correspondiente a una red geométrica puntual, ec.(III.25). Por lo tanto la intensidad $|A|^2$ obtenida a partir de (III.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 s coincide con un vector de la red recíproca g_{hkl} . Entonces la expresión (III.41) toma la forma

$$A = \frac{1}{r} N \sum_{v=1}^n f_v e^{2\pi i g_{hkl} \cdot R_v}$$

$$= \frac{N}{r} F_{hkl}$$

(III.42)

donde F_{hkl} es en general un número complejo que se denomina **Factor de Estructura** de la difracción (hkl) . Expresando los vectores $\vec{R}_v$ en la terna $\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3$ que define la red

$$\vec{R}_v = x_v \vec{a}_1 + y_v \vec{a}_2 + z_v \vec{a}_3$$

(III.43)

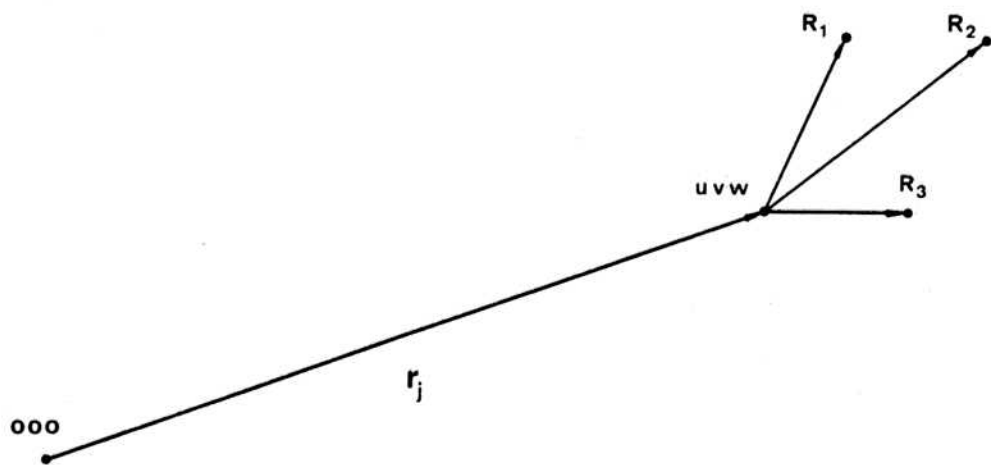


Fig.III.16 - Esquema de construcción de una estructura cristalina. Esta se obtiene asociando un motivo compuesto por n átomos a cada nodo (uvw) de una red geométrica.

y como

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

entonces recordando las expresiones (III.15) el **Factor de Estructura** se expresa finalmente de la forma

$$F_{hkl} = \sum_{v=1}^n f_v e^{2\pi i(hx_v + ky_v + lz_v)} \quad (\text{III.45})$$

donde la suma sobre el índice v se extiende a los n átomos que componen el motivo de repetición alrededor de cada nodo.

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.(III.32) o (III.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 queda afectada la geometría de los diagramas de difracción por el efecto del factor de estructura.

III.4.5 - Factor de Estructura. Ejemplos.

La estructura **cúbica de caras centradas** (Al, Cu, Ag, Au....) puede describirse por medio de una celda primitiva rombohédrica, Fig.III.5, o también por una celda cúbica que contiene un motivo compuesto por cuatro átomos idénticos. En este último caso las coordenadas fraccionarias (x_v, y_v, z_v) de los átomos de 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 (III.45) el factor de estructura resulta

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

donde f es el factor atómico de difusión. Si los índices (hkl) son de distinta paridad, según (III.46), es

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

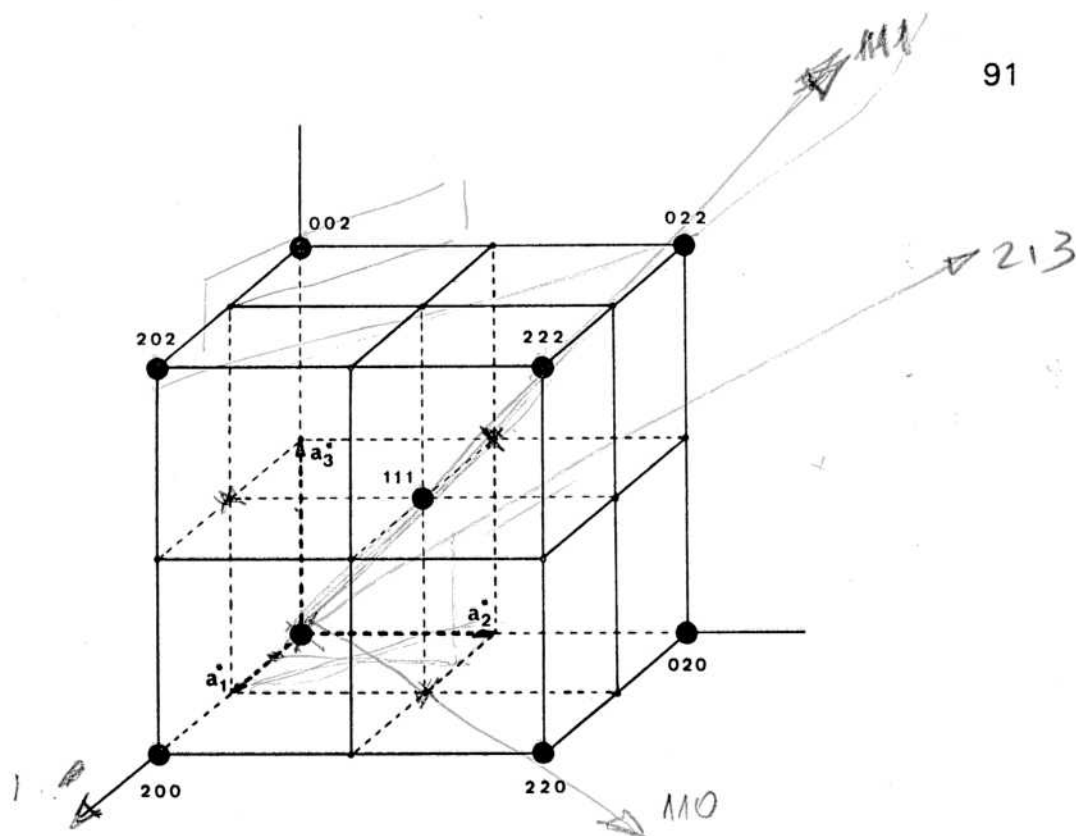


Fig.III.17 - Red recíproca de una estructura cúbica de caras centradas.
bcc de arista $2a^$*

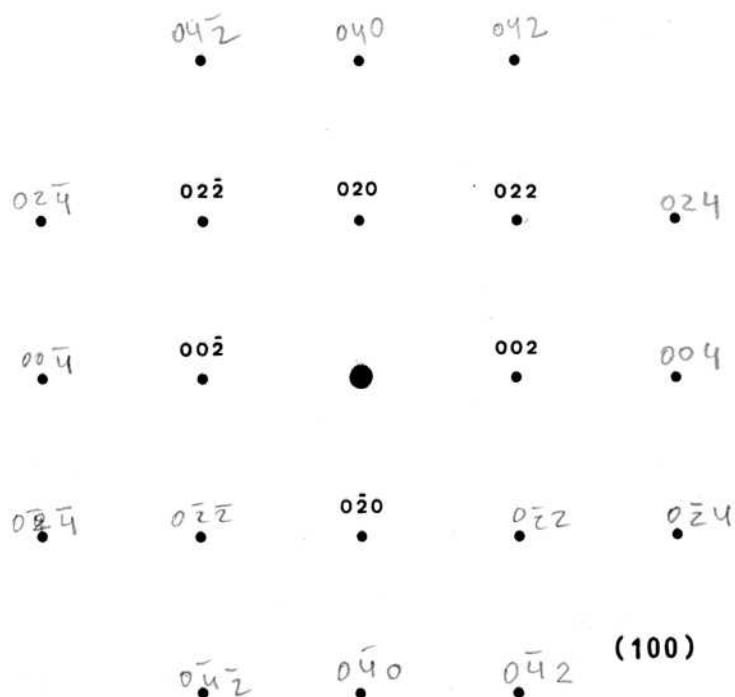


Fig.III.18 - Plano (100) de la red recíproca de una estructura cúbica de caras centradas.

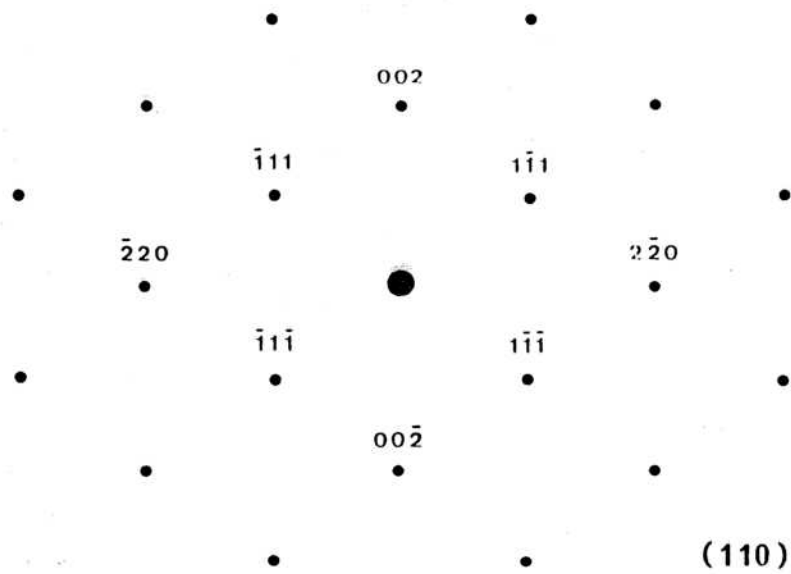


Fig.III.19 - Plano (110) de la red recíproca de una estructura cúbica de caras centradas.

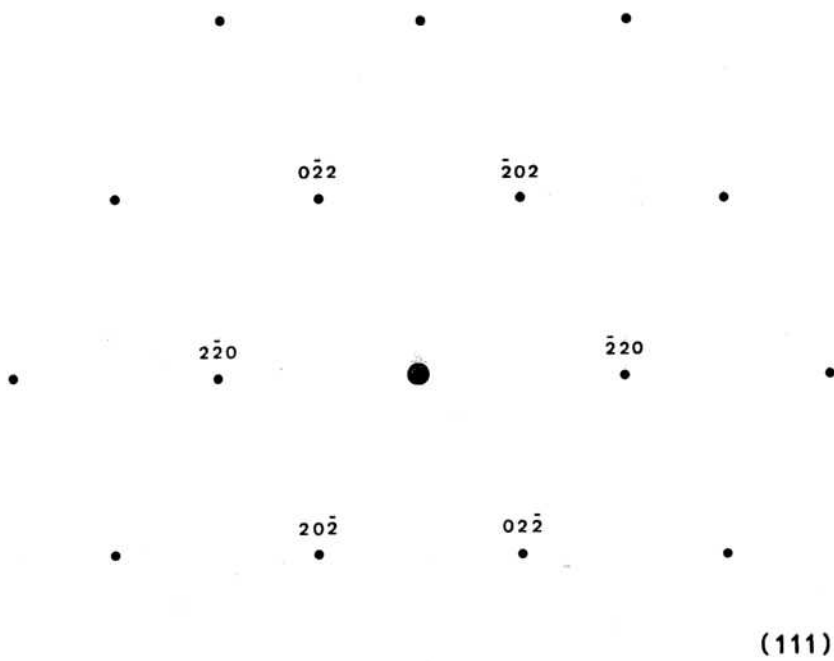


Fig.III.20 - Plano (111) de la red recíproca de una estructura cúbica de caras centradas.

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

$$F_{hkl} = 4f$$

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

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

Entonces la geometría de los diagramas de difracción corresponde a planos de una red cúbica bcc de arista $2a^*$, Fig.III.17. El plano particular que se pone en evidencia en cada caso es aquel perpendicular al haz incidente, de acuerdo a la construcción de Ewald de la Fig.III.15.

Entonces, si una lámina delgada está orientada en el microscopio electrónico de tal manera que el haz de electrones 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.III.18. En la Fig.III.19 se puede ver cual es el diagrama de difracción correspondiente a la orientación (110) cuando el haz incide según la dirección $[110]$ del cristal. Si el haz incide sobre la lámina delgada según una dirección $[111]$ el diagrama de difracción es un plano recíproco (111) , Fig.III.20. 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.III.21, 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 identificable fácilmente, ver p.ej. el capítulo 6 del libro de Hirsch y col.[1].

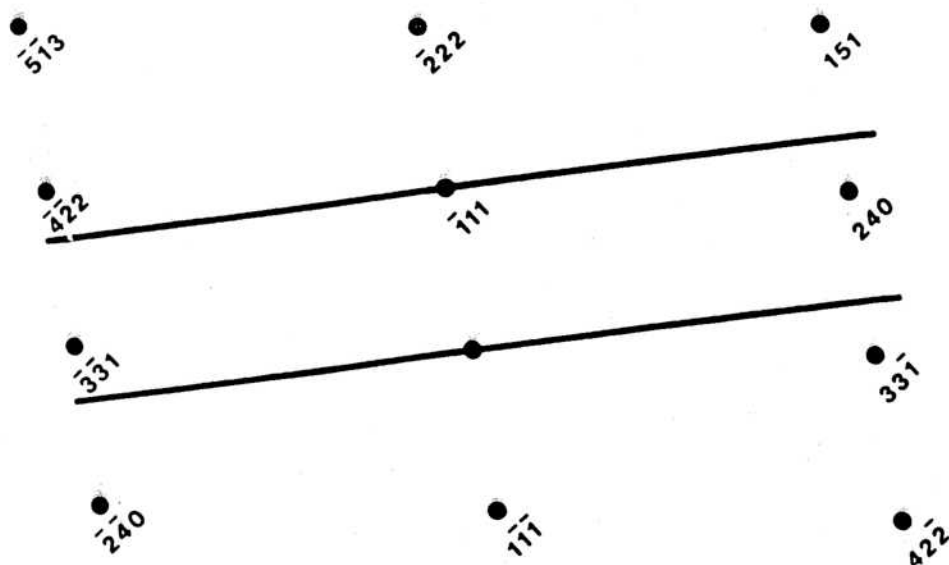


Fig.III.21 - Plano (213) de la red recíproca de una estructura cúbica de caras centradas.

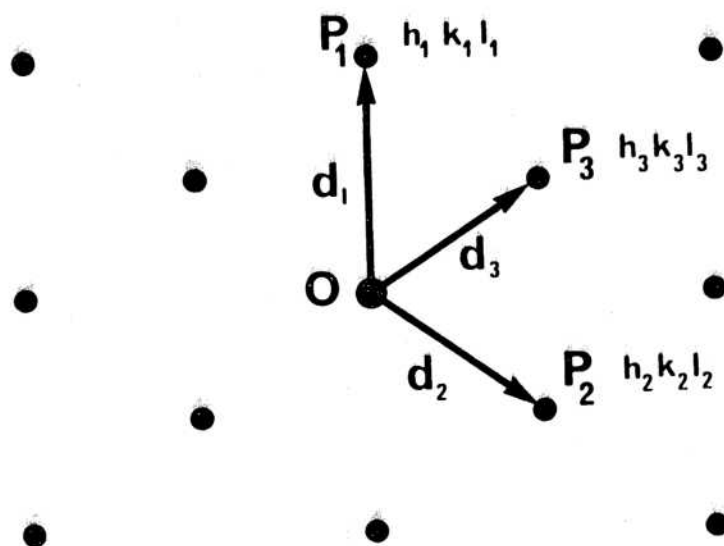


Fig.III.22 - Indexado de un diagrama de difracción.

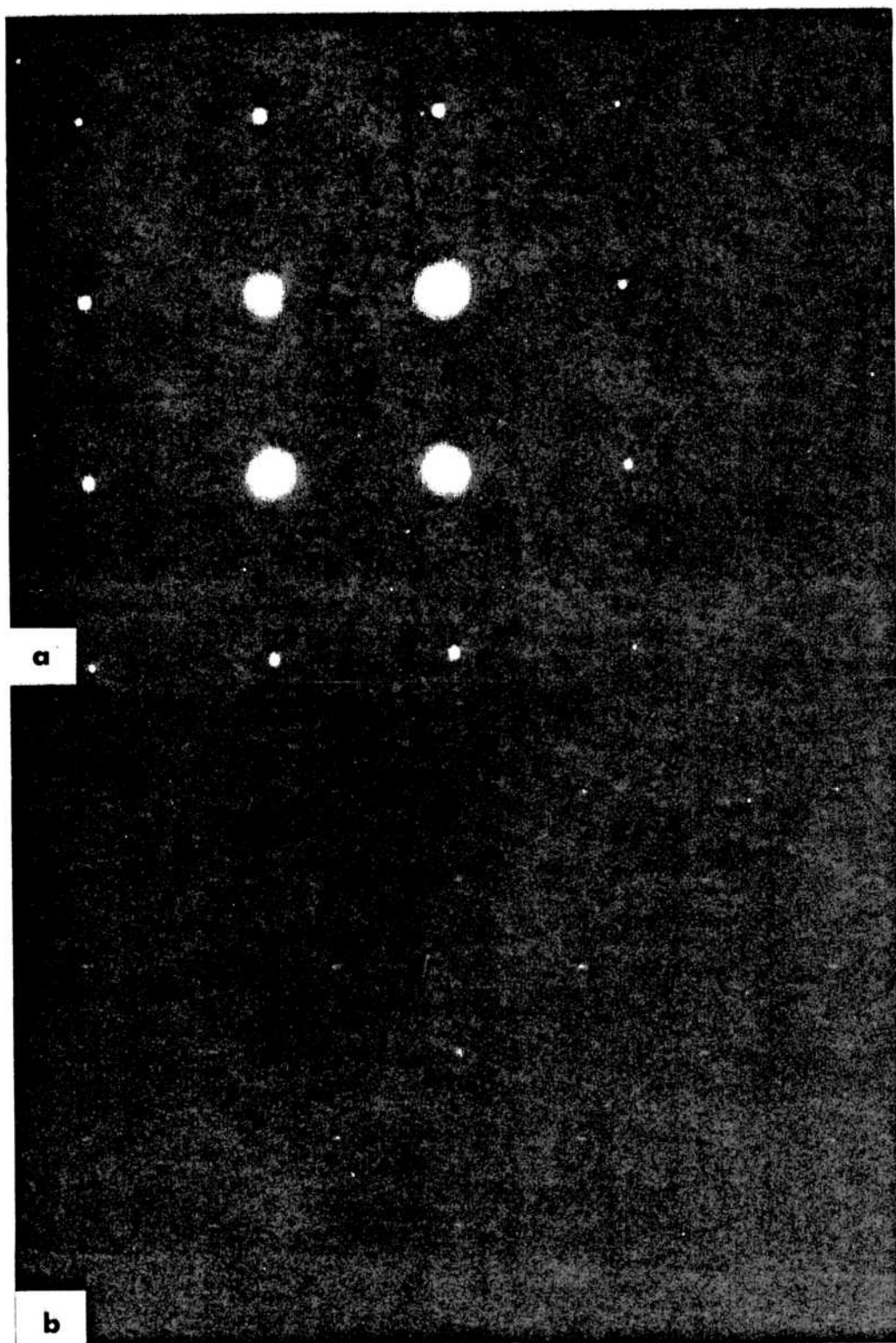


Fig.III.23 - Diagramas de difracción de una lámina delgada de cobre, en dos orientaciones distintas : a) (100) b) (110)

Por ejemplo 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 desea 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 el P_3 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 [6] o en la referencia [7] se pueden encontrar ejemplos ilustrativos de indexado de diagramas. En la Fig.III.23 se muestran dos ejemplos de diagramas de difracción obtenidos en el microscopio electrónico.

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**. El factor de estructura resulta, según (III.45)

$$F_{hkl} = f [1 + e^{i(h+k+l)\pi}]$$

(III.48)

Entonces para

$$\begin{aligned} h+k+l = 2n \text{ (número par)} & \text{ es } F_{hkl} = 2f & \text{Con } 0^\circ = 1 \\ h+k+l = 2n+1 \text{ (número impar)} & \text{ es } F_{hkl} = 0 & \text{Con } \pi = -1 \end{aligned}$$

(III.49)

Las reflexiones permitidas son por lo tanto del tipo

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

Se puede ver fácilmente que eliminando las reflexiones prohibidas por (III.49) de los nodos una red recíproca cúbica de arista $a^* = 1/a$ los nodos 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 determinar fácilmente como en el caso anterior.

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

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

en la celda definida por los tres vectores , Fig.III.24 (a)

$$a_1, a_2, c \quad \text{con} \quad |a_1| = |a_2| = a$$

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

$$|a_1^*| = |a_2^*| = a^* = \frac{2}{\sqrt{3}} \frac{1}{a}$$

$$c^* \parallel c \quad |c^*| = \frac{1}{c}$$

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^* . El factor de estructura resulta de acuerdo a (III.45)

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

y el cuadrado de su módulo

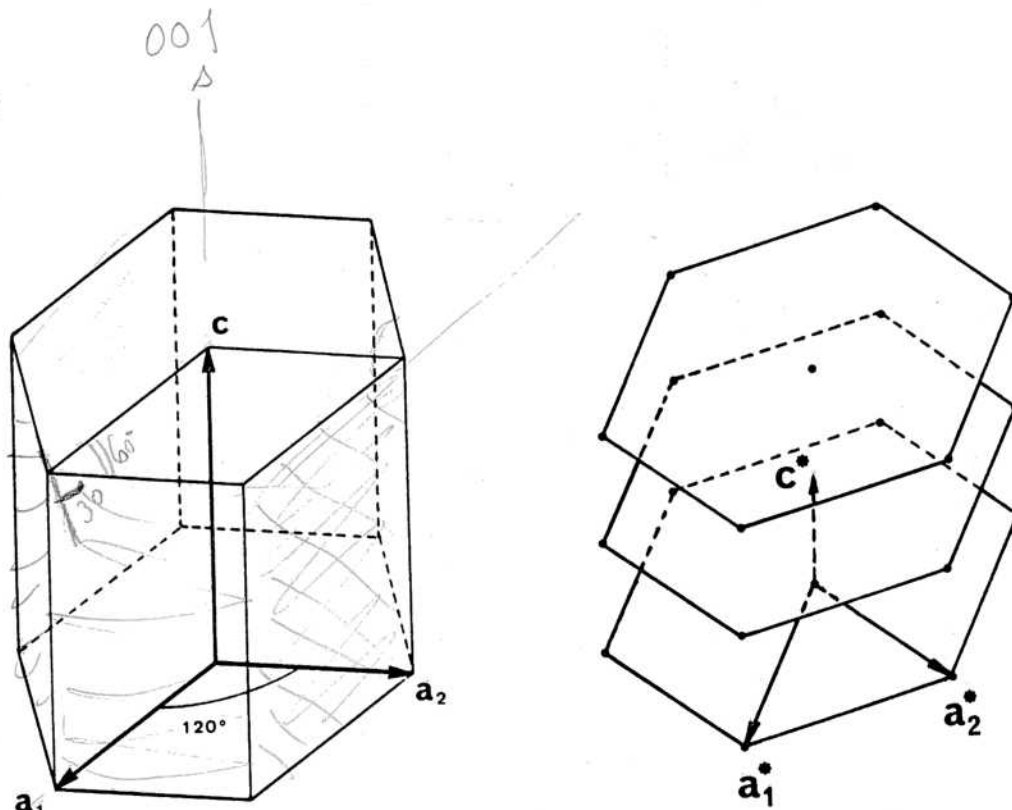


Fig.III.24 - a) Estructura hexagonal. b) Red recíproca

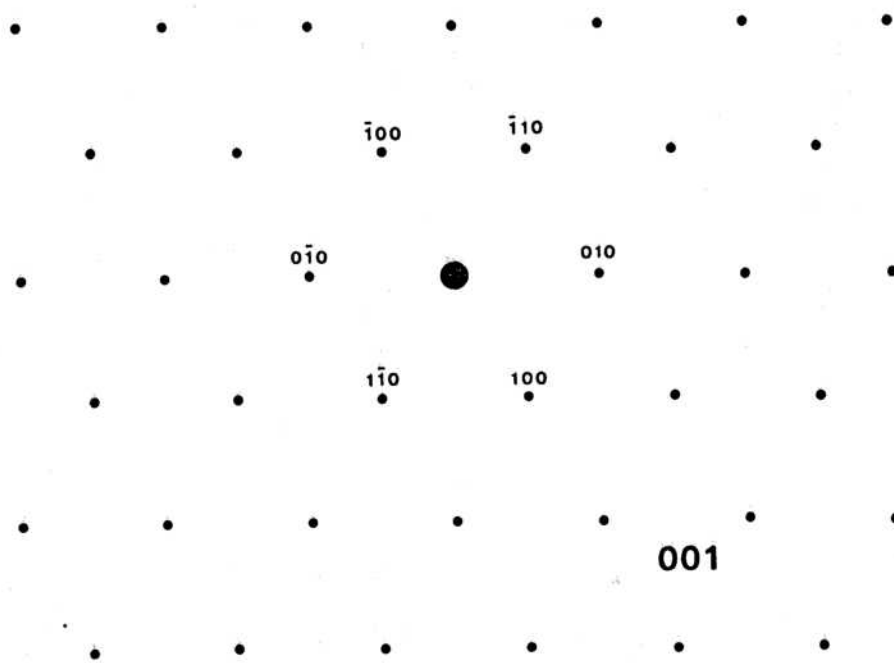


Fig.III.25 - Plano (001) de la red recíproca de una estructura hexagonal compacta

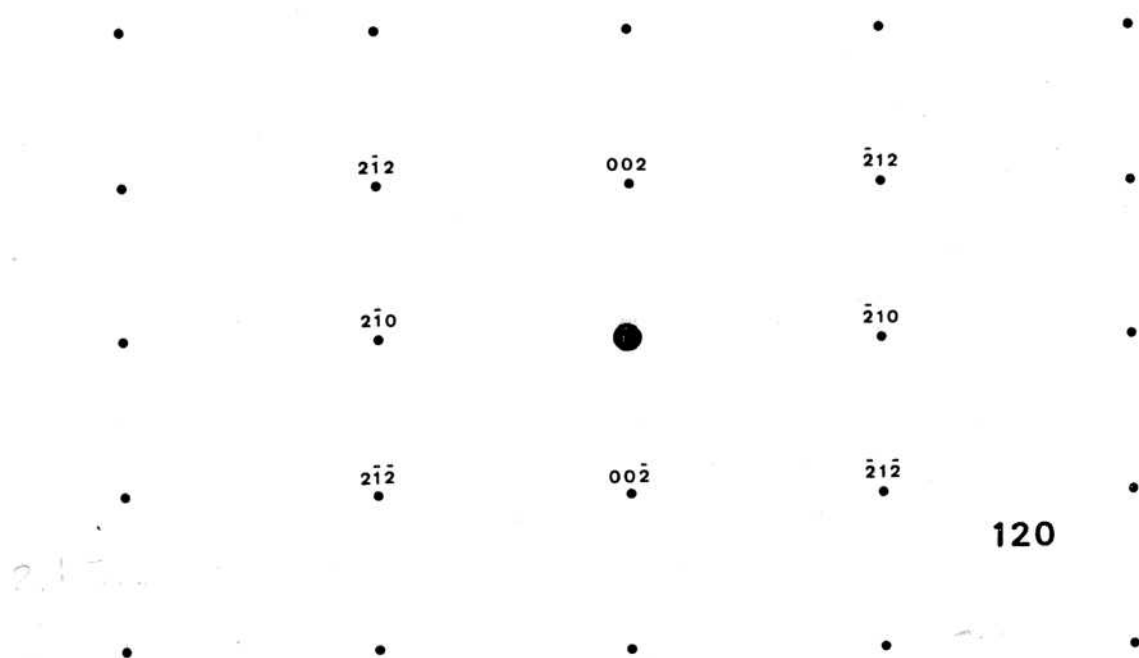


Fig.III.26 - Plano (120) de la red recíproca de una estructura hexagonal compacta.

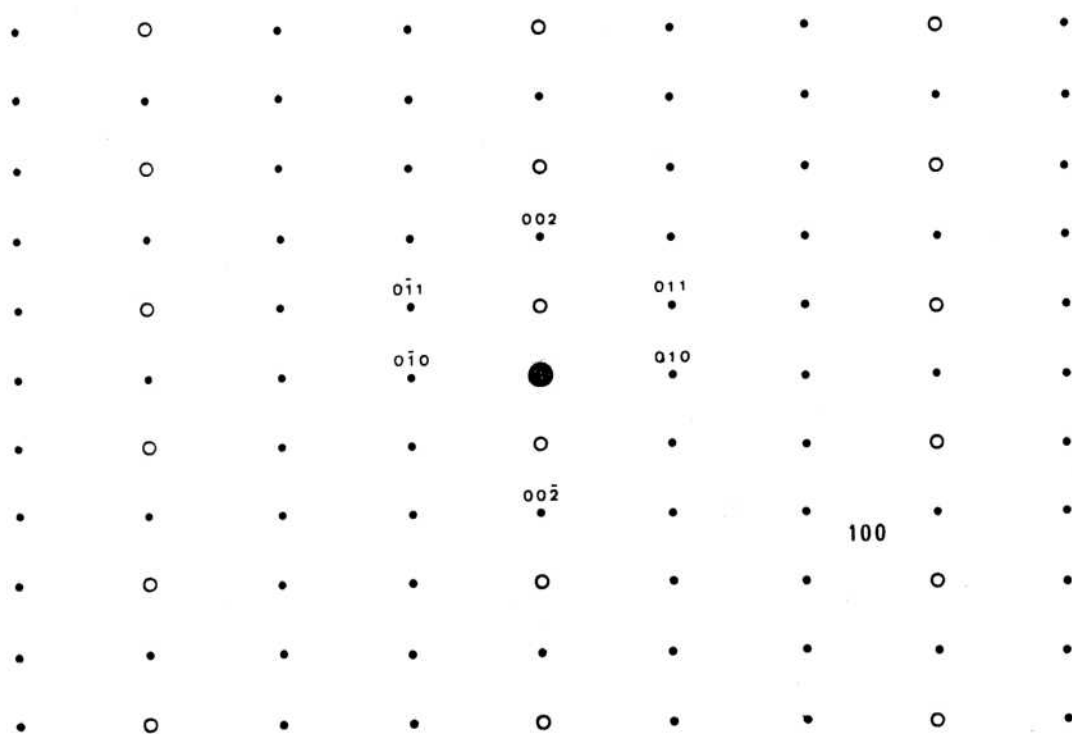


Fig.III.27 - Plano (100) de la red recíproca de una estructura hexagonal compacta. Las reflexiones indicadas con círculos no están permitidas, pero pueden aparecer en un diagrama por efecto de doble difracción.

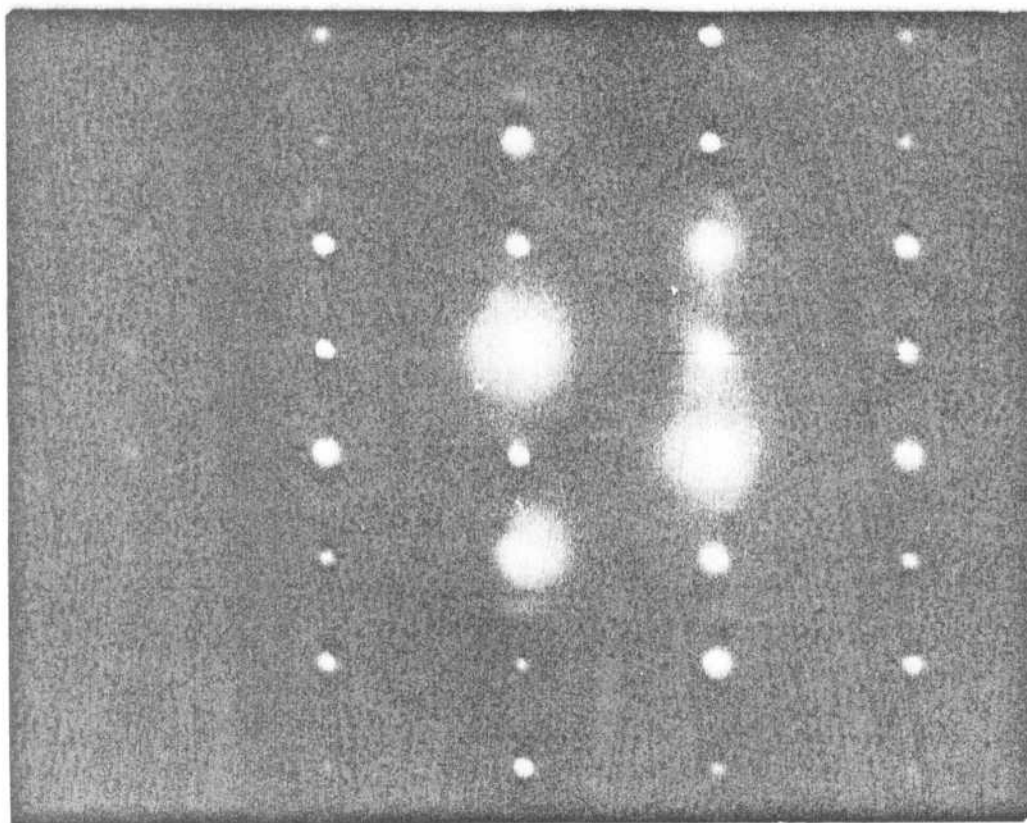


Fig.III.28 - Diagrama de difracción de una lámina delgada de zirconio, plano (100).

$$|F_{hkl}|^2 = 4f^2 \cos^2 \pi \left(\frac{h+2k}{3} + \frac{l}{2} \right)$$

(III.50)

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

$h + 2k$	l	$ F_{hkl} ^2$
$3n$	impar	0
$3n$	par	$4f^2$
$3n + 1$	impar	$3f^2$
$3n + 1$	par	f^2

(III.51)

y por lo tanto las reflexiones permitidas son del tipo

(100) (002) (101) (102) (110) (103) (200) (112)....

En cambio los índices

(111) (113) (221) (223)

no aparecen. Estas reflexiones no permitidas por las reglas de selección (III.51) deben tenerse en cuenta al efectuar cortes del espacio recíproco de la Fig.III.24 (b).

En la Fig.III.25 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 del 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.III.26. 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.III.27. En la Fig.III.28 se muestra el diagrama (001) obtenido a partir de una lámina delgada de zirconio.

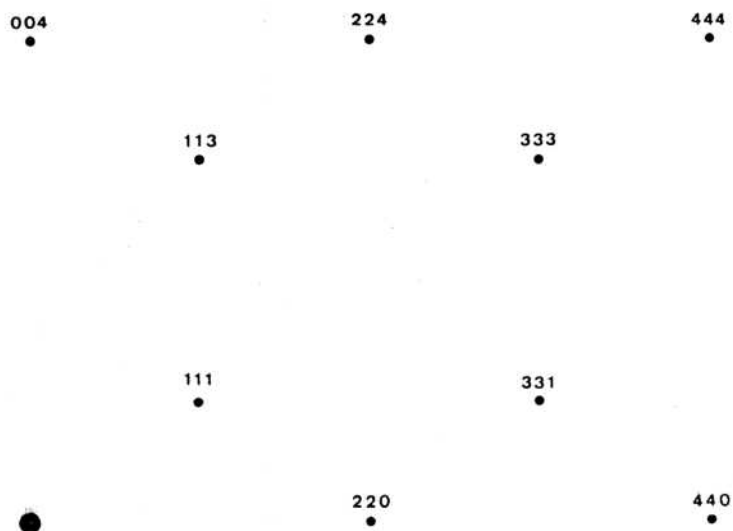
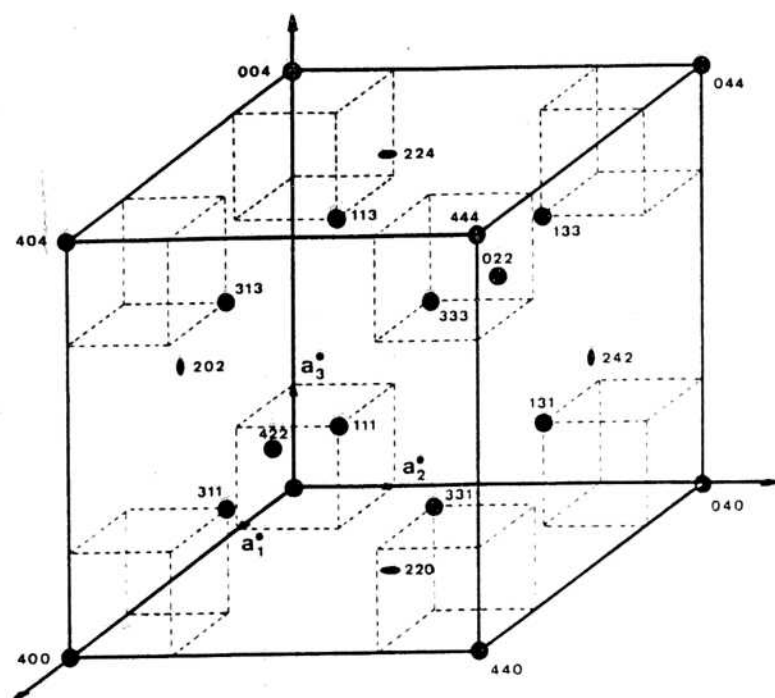
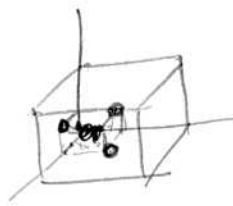


Fig.III.29 - a) Espacio recíproco de la estructura cúbica tipo diamante. b) Diagrama de difracción (110).



La **estructura diamante**, también característica 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

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

$$Zn : \left(\frac{1}{4} \frac{1}{4} \frac{1}{4}\right) \quad \left(\frac{3}{4} \frac{3}{4} \frac{1}{4}\right) \quad \left(\frac{3}{4} \frac{1}{4} \frac{3}{4}\right) \quad \left(\frac{1}{4} \frac{3}{4} \frac{3}{4}\right)$$

(III.52)

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

$$|F_{hkl}|^2 = K^2 16 [f_s^2 + f_{zn}^2 + 2f_s f_{zn} \cos \frac{\pi}{2}(h+k+l)]$$

(III.53)

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

$16 (f_s^2 + f_{zn}^2)$	para $(h+k+l) = \text{impar}$	a)
$16 (f_s - f_{zn})^2$	para $(h+k+l) = (2n+1) \times 2$	b)
$16 (f_s + f_{zn})^2$	para $(h+k+l) = 2n \times 2$	c)

(III.54)

La estructura diamante se describe por una celda cúbica que contiene 8 átomos idénticos (C, Si o Ge) ubicados en las posiciones dadas por (III.52). En este caso, además de las posiciones no permitidas por la estructura **fcc**, ec.(III.47), también desaparecen aquellas cuyos índices (**hkl**) verifican la condición (III.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.III.29 a). De esta manera si el haz electrónico incide según una dirección [110] de una lámina delgada de Si o Ge, el diagrama de difracción tiene la geometría indicada en la Fig.III.29 b). Más detalles sobre esta estructura pueden consultarse en el libro de Andrews y col.[].

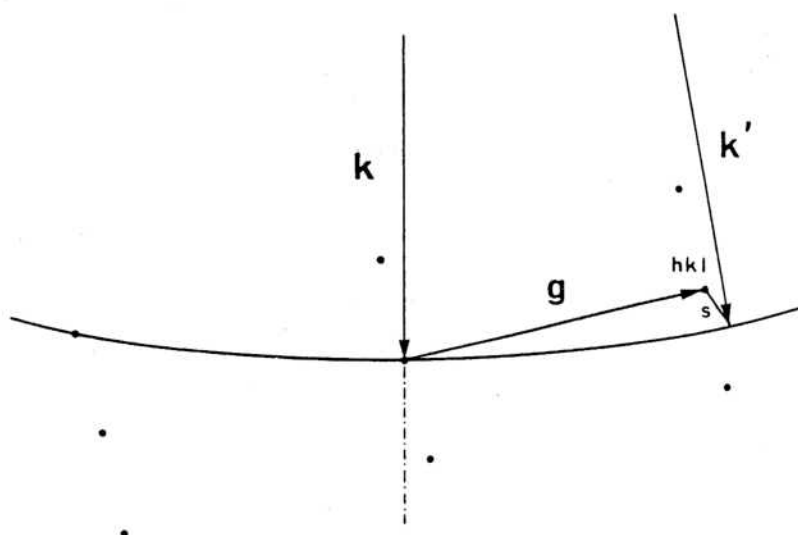


Fig.III.30 - Definición del parámetro de desviación s , que indica el apartamiento del cristal respecto de la orientación exacta de Bragg.

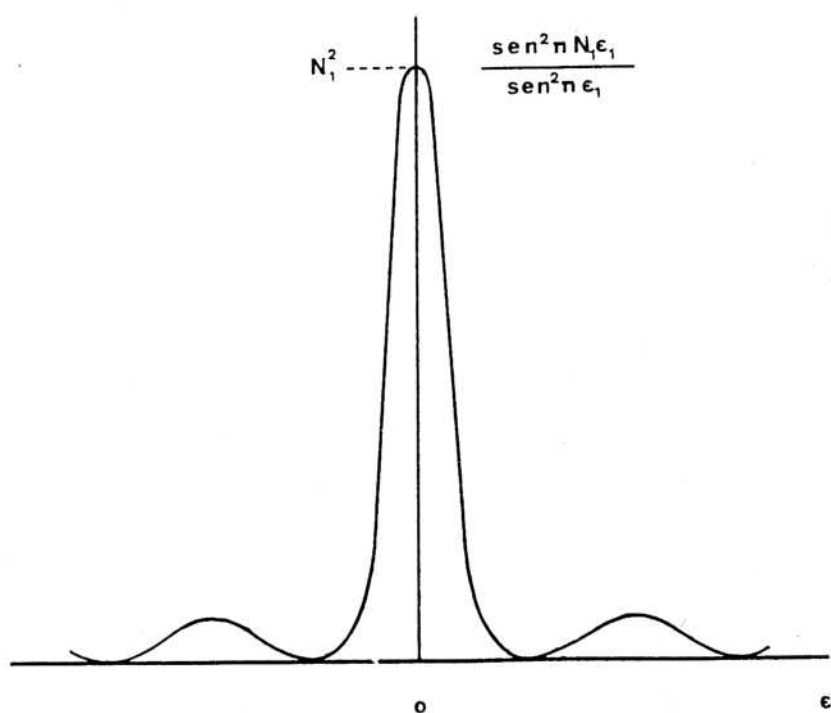


Fig.III.31 - Variación de la intensidad difractada fuera de la orientación exacta de Bragg en función del parámetro de desviación ϵ_1 .

III.4.6 - 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.III.30. 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 ($\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_2 \mathbf{e}_3$)

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

y como

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

entonces la cantidad ψ_1 dada por III.29 toma la forma

$$\psi_1 = \pi \vec{a}_1 \cdot (\vec{k}' - \vec{k}) = \pi \vec{a}_1 \cdot (\vec{g} + \vec{s}) = \pi (h + e_1)$$

(III.56)

Para obtener la función G^2 , ec.(III.29) calculamos previamente

$$\sin^2 N_1 \psi_1 = \sin^2 \pi N_1 (h + e_1) = \sin^2 \pi N_1 e_1$$

$$\sin^2 \psi_1 = \sin^2 \pi (h + e_1) = \sin^2 \pi e_1$$

Expresiones similares son válidas para ψ_1 y ψ_3 , ec.III.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

$$G^2 = \frac{\sin^2 \pi N_1 e_1}{\sin^2 \pi e_1} \frac{\sin^2 \pi N_2 e_2}{\sin^2 \pi e_2} \frac{\sin^2 \pi N_3 e_3}{\sin^2 \pi e_3}$$

(III.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.III.31 se representa uno de los tres factores de (III.57) en función de su

correspondiente parámetro de desviación e . Para s próximo a cero, es $e_1 = e_2 = e_3 \approx 0$, es decir que cerca de la orientación de Bragg

$$\frac{\sin^2 \pi N_1 e_1}{\sin^2 \pi e_1} \approx N_1^2 \frac{\sin^2 \pi N_1 e_1}{(\pi N_1 e_1)^2}$$

(III.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.(III.31). Vemos que la función G^2 se anula para

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

y para expresiones análogas de e_1 y e_2 . Entonces, tal como se puede ver en la Fig.III.31 la función G^2 presenta un pico central igual a N^2 rodeado de máximos secundarios muy pequeños, iguales a

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

Por lo tanto la intensidad difractada toma valores apreciables solamente cuando las tres funciones de (III.57) son diferentes de cero, para lo cual

$$|e_1| < \frac{1}{N_1}, \quad |e_2| < \frac{1}{N_2}, \quad |e_3| < \frac{1}{N_3}$$

(III.59)

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

$$e_1 a_1^* \quad e_2 a_2^* \quad e_3 a_3^*$$

(III.60)

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

$$\frac{1}{N_1 a_1}, \quad \frac{1}{N_2 a_2}, \quad \frac{1}{N_3 a_3}$$

(III.61)

Estas últimas corresponden a las inversas de las dimensiones L_1, L_2, L_3 , del cristal

considerado, en las direcciones de los ejes $\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3$, 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 a la esfera de Ewald fuera del pequeño dominio que rodea a cada nodo de la red recíproca. En la sección siguiente se verá en qué casos pueden extenderse apreciablemente estos dominios de difracción.

III.4.7 - Ensanchamiento de los Nodos en el Espacio Recíproco.

Según las expresiones (III.61) cada nodo de la red recíproca de un cristal real está rodeado por un pequeño dominio de reflexión cuyas dimensiones según los tres ejes recíprocos $\vec{a}_1^*, \vec{a}_2^*, \vec{a}_3^*$ 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 reducidas 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.III.32 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, c , paralelas a los ejes $\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3$, respectivamente, cada nodo del espacio recíproco se ensancha de la manera indicada en la Fig.III.32 (a). Para una placa 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.III.32 (b), ver también Fig.III.33. Un conjunto de precipitados esféricos de diámetro d da origen a un ensanchamiento como el indicado en la Fig.III.32 (c). Para cristales en forma de cilindros o agujas extendidas según el eje $\vec{a}_3$ los dominios toman la forma de discos perpendiculares al eje recíproco $\vec{a}_3^*$, Fig.III.32 (d).

La Fig.III.32 (e) corresponde a precipitados delgados de espesor t y diámetro d , y también es el caso general de una lámina delgada metálica observada en el microscopio electrónico 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 $\Delta\phi$ alrededor de la posición exacta de Bragg para las cuales sigue existiendo intensidad difractada.

En la Fig.III.34 se puede ver que

$$\Delta\phi \approx \frac{1/t}{g_{hkl}} = \frac{1}{g_{hkl} t} = \frac{d_{hkl}}{t}$$

Por ejemplo para

$$t = 300 \text{ \AA}, \quad d_{hkl} = 1 \text{ \AA}, \quad \text{es } \Delta\phi = 0.3 \times 10^{-2} \text{ rad}$$

(III.62)

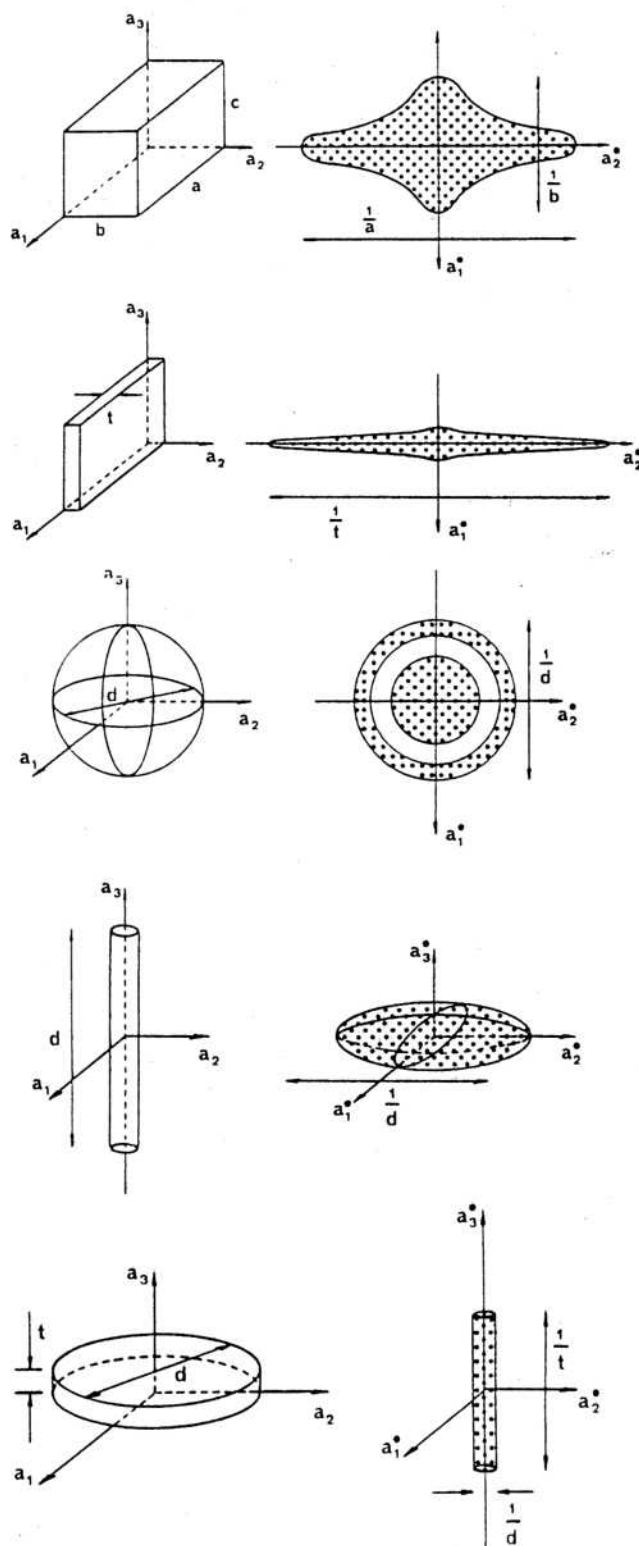


Fig.III.32 - Ensanchamiento de los nodos en el espacio recíproco, según la geometría de la muestra.

a) paralelepípedo, b) placa, c) esfera, d) aguja, e) lámina delgada.

que es del mismo orden de magnitud de los ángulos θ de Bragg. Por lo tanto la observación de un diagrama de difracción dado no es un indicio exacto de la orientación de una lámina delgada, puesto que el mismo diagrama aparece aún cuando se haya rotado la muestra en un ángulo $\Delta\phi$ alrededor de la posición exacta de Bragg. La orientación precisa de una lámina delgada en un microscopio electrónico se determina por medio de las Líneas de Kikuchi, ver sección siguiente.

III.4.8 - 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 monocristalina, que es el caso que interesa en microscopía electrónica, 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 formulismo 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 esta 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 que originan el fondo difuso que aparece en todo diagrama de difracción de electrones, y las líneas de Kikuchi son variaciones locales en la intensidad de este fondo.

Se puede ver en una construcción geométrica sencilla como se originan, Fig.III.35. 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 a su vez 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**.

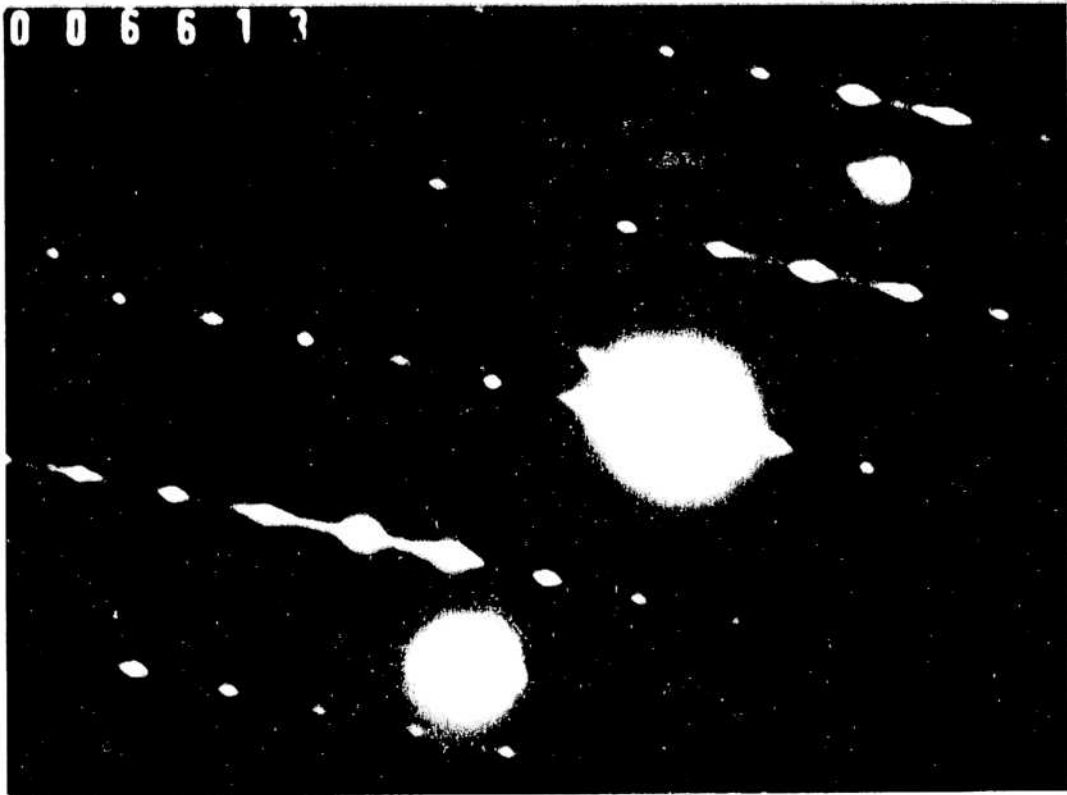


Fig.III.33 - Ensanchamiento de los nodos en el espacio recíproco, debido a la presencia de precipitados laminares en una solución sobresaturada de Al-Cu.

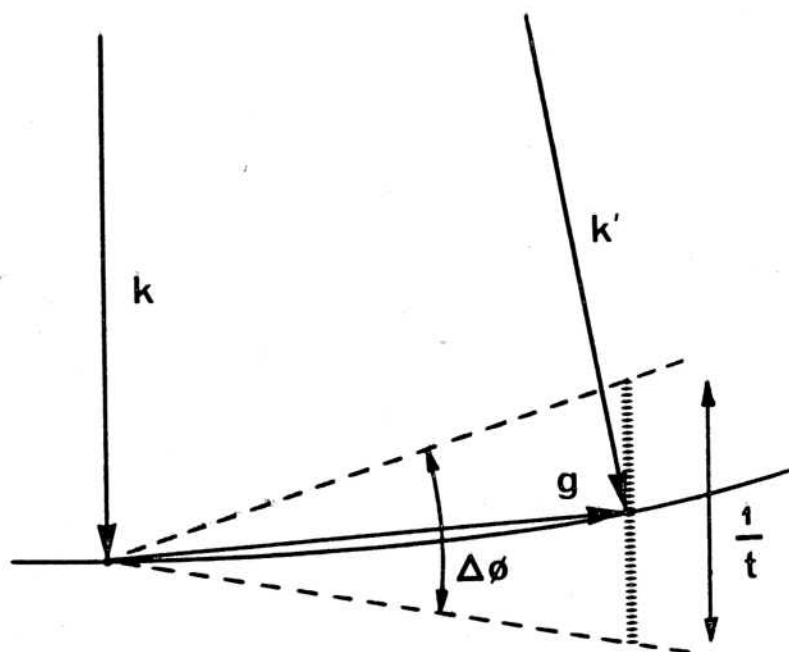


Fig.III.34 - Efecto del ensanchamiento de los nodos en el espacio recíproco de una lámina delgada de espesor t . cada nodo se extiende en una longitud recíproca igual a $1/t$ en la dirección perpendicular a la lámina. Existe un rango de orientaciones $\Delta\phi$ alrededor de la posición exacta de Bragg, para las cuales sigue existiendo intensidad difractada.

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**. Pero 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 entonces 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 a 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 si. 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. Entonces, 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.III.35.

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 ya se ha visto, el diagrama de difracción puede aparecer aún cuando se rota la lámina delgada en un ángulo $\Delta\phi$ 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 si estuvieran rígidamente adheridas al cristal, y su posición respecto del diagrama de difracción es por lo tanto un índice muy preciso de la orientación de la lámina delgada respecto del haz incidente.

A título de ejemplo veremos cual 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.III.36. 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**).

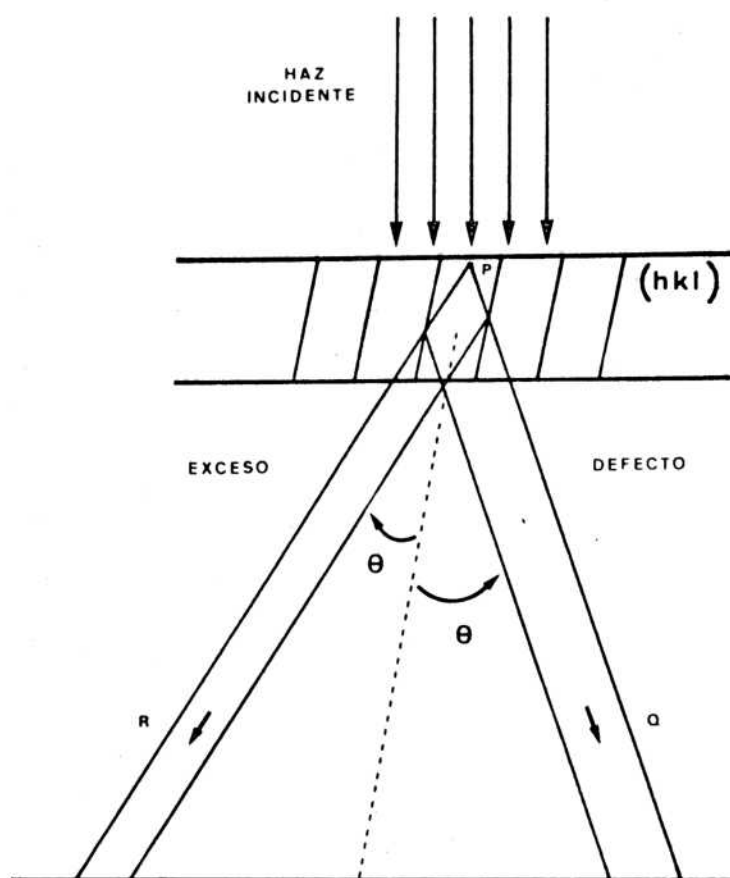


Fig.III.35 - Formación de un par de líneas de Kikuchi. El fondo continuo del diagrama de difracción se ve alterado de tal manera que existe un aumento de la intensidad según la dirección **PR** (línea por exceso) y una disminución en la dirección **PQ** (línea por defecto).

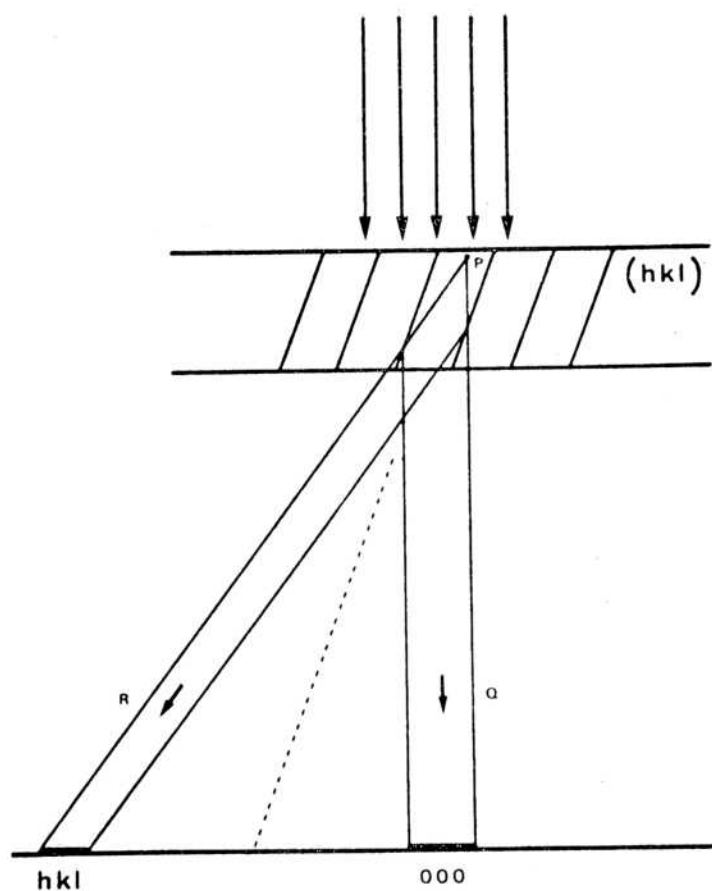


Fig.III.36 - Orientación relativa entre un par de líneas de Kikuchi (hkl) y las manchas de difracción correspondientes, cuando el cristal está orientado en la posición exacta de Bragg. La línea **por exceso** pasa exactamente por el haz (hkl) mientras que la línea **por defecto** es coincidente con el haz transmitido (000).

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 mencionadas. 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 a la izquierda de la posición indicada en la Fig.III.36. En la Fig.III.37 se muestra un diagrama de difracción de una lámina delgada de cobre, en el que aparecen varios pares de líneas de Kikuchi.

III.4.9 - 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 familia bien determinada de planos cristalinos. Las principales líneas que aparecen en una orientación dada pueden obtenerse mediante una sencilla construcción geométrica a partir del diagrama de difracción correspondiente.

Supongamos por ejemplo una lámina delgada de estructura fcc y que el haz electrónico incide según una dirección $[100]$. El diagrama de difracción es un plano (100) de la red recíproca, Fig.III.38. La construcción de las líneas asociadas se realiza de la siguiente manera. Se une el nodo origen (000) con los diferentes 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 (hkl) 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 de Bragg $2\theta_{hkl}$ y solamente varía la relación del conjunto respecto del diagrama de difracción. En las Figs.III.39 y III.40 se muestra esquemáticamente la geometría de las líneas de Kikuchi asociadas a las orientaciones $[100]$ y $[111]$ de una muestra cúbica de caras centradas.

III.4.9 - 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 exacta de difracción, la línea por exceso pasa por el nodo (hkl) y la línea por defecto pasa por el nodo origen.

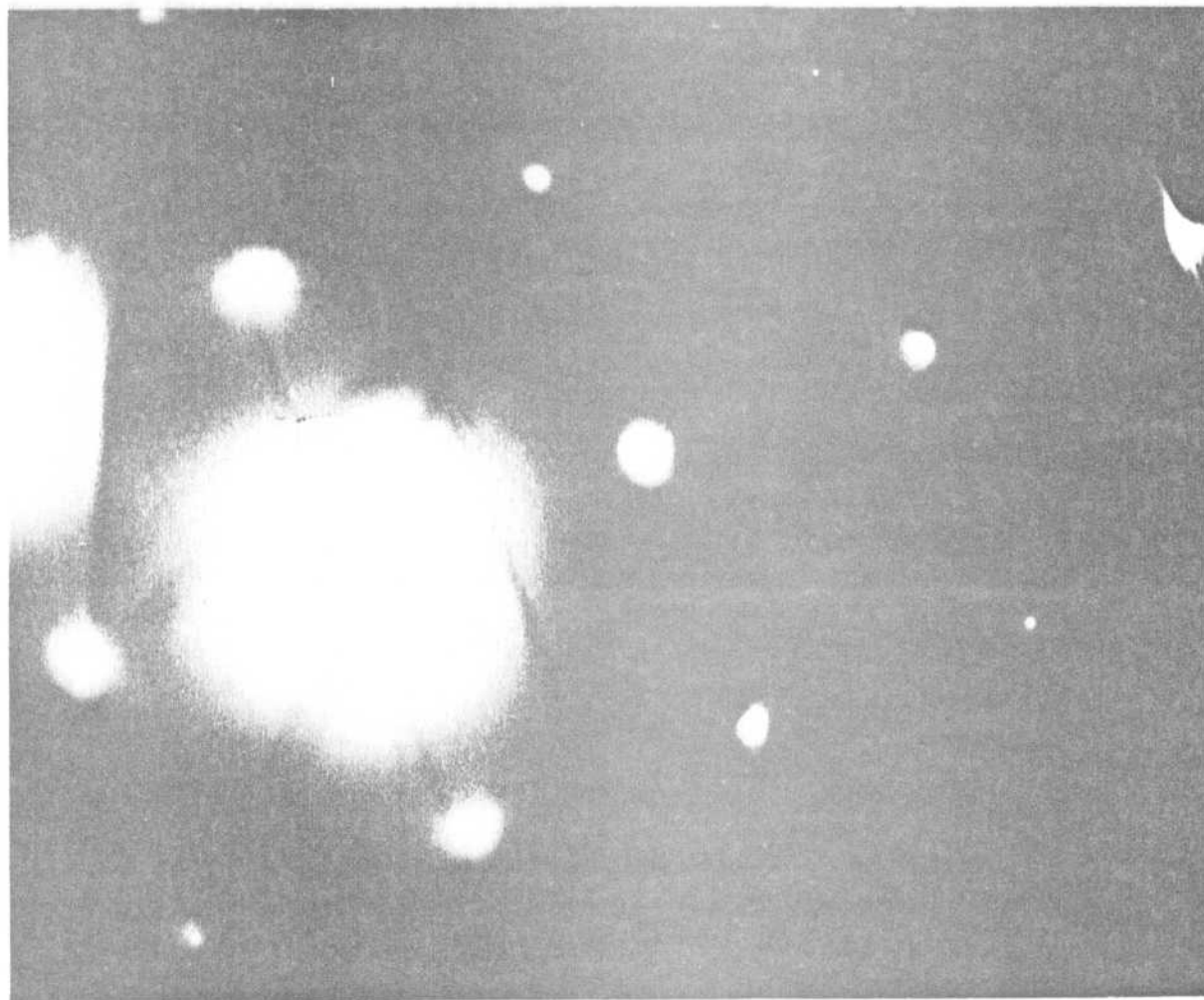


Fig.III.37 - Líneas de Kikuchi correspondientes a una lámina delgada de Cu.

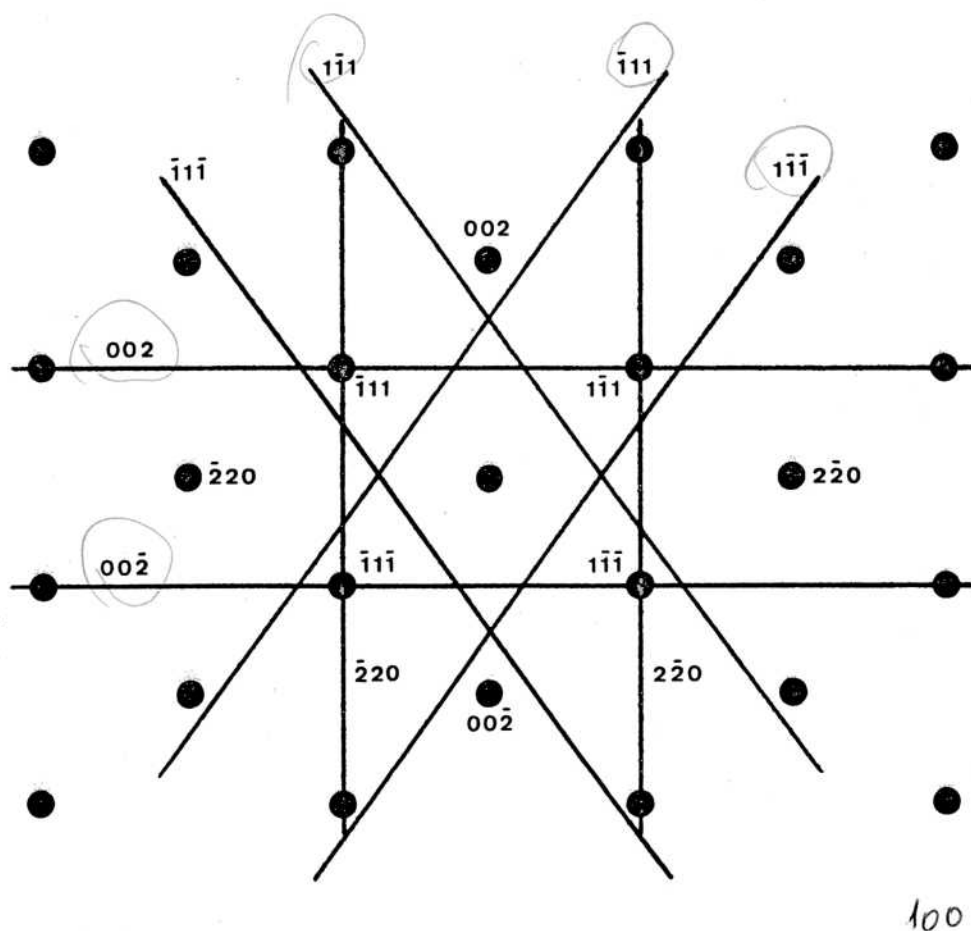


Fig.III.38 - Esquema de construcción de las líneas de Kikuchi asociadas a una orientación dada de un cristal. Se une el nodo origen (000) con cada uno de los nodos (hkl) del diagrama de difracción correspondiente, y se traza una línea perpendicular por el punto medio de cada uno de estos segmentos.

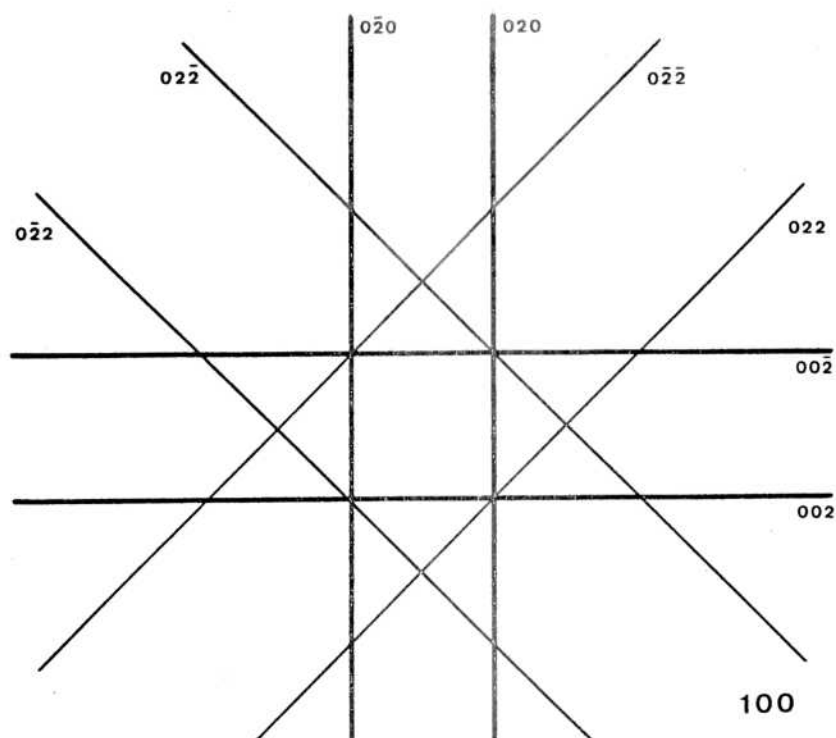


Fig.III.39 - Líneas de Kikuchi asociadas a la orientación (100) de una lámina delgada de una muestra de estructura cúbica de caras centradas.

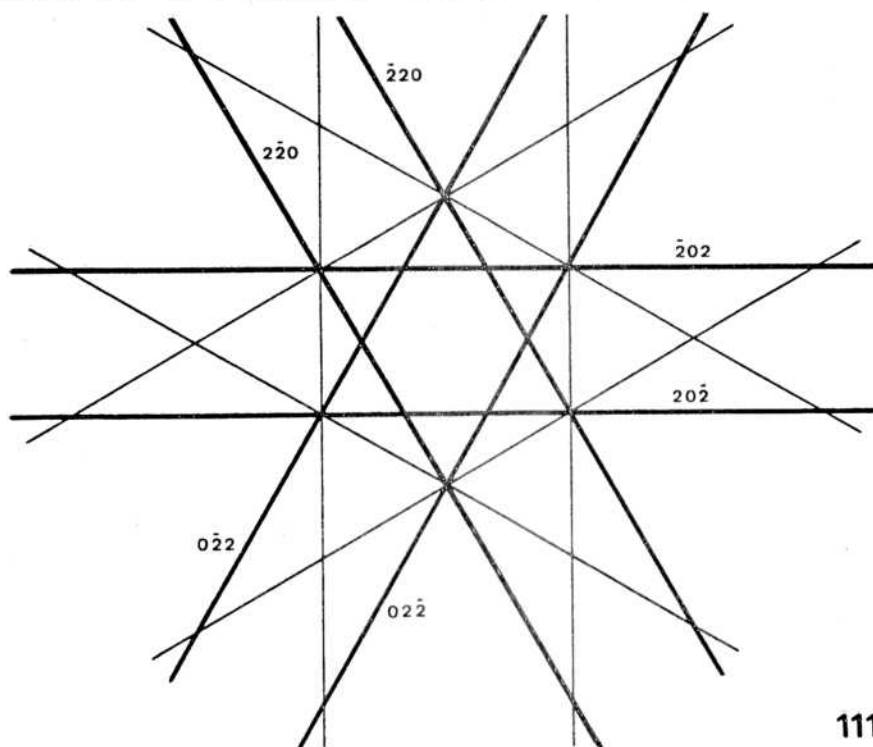


Fig.III.40 - Líneas de Kikuchi asociadas a la orientación (111) de una lámina delgada de una muestra de estructura cúbica de caras centradas.

Si la lámina se aparta en un cierto ángulo $d(2\theta)$ respecto de la posición de Bragg, Fig.III.30, entonces

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

y el par de líneas de Kikuchi se desplaza sobre la pantalla de observación una cierta distancia dx que depende de la magnitud de s , Fig.III.41. Por convención el signo de s se considera positivo si el vector $\vec{s}$ está dentro de la esfera de Ewald. En el caso de la Fig.III.41 el par de líneas se aleja del nodo origen (000) y dx se considera también positivo. Si es L la longitud de la cámara de difracción (distancia entre la muestra y la pantalla de observación)

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

Según la Fig.III.41

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

Reemplazando

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

$$d(2\theta) = \frac{dx}{L}$$

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

Según la ley de Bragg

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

y finalmente

$$s = \frac{1}{d_{hkl}} \frac{dx}{L} = \frac{1}{d_{hkl}} \frac{dx}{x \frac{\lambda}{d_{hkl}}} = \frac{\lambda}{d_{hkl}^2} \frac{dx}{x}$$

$$s = \frac{\lambda}{d_{hkl}^2} \frac{dx}{x}$$

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

$$s = \frac{\lambda}{xL} \frac{dx}{L} = \frac{\lambda}{L^2} \frac{dx}{x} \quad (\text{III.64})$$

Por ejemplo, suponiendo que el diagrama de la Fig.III.41 fue obtenido a 100 kV a partir de una lámina delgada de cobre

$$\lambda = 0.037 \text{ \AA}$$

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

$$x = 35 \text{ mm}$$

$$dx = 10 \text{ mm}$$

entonces

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

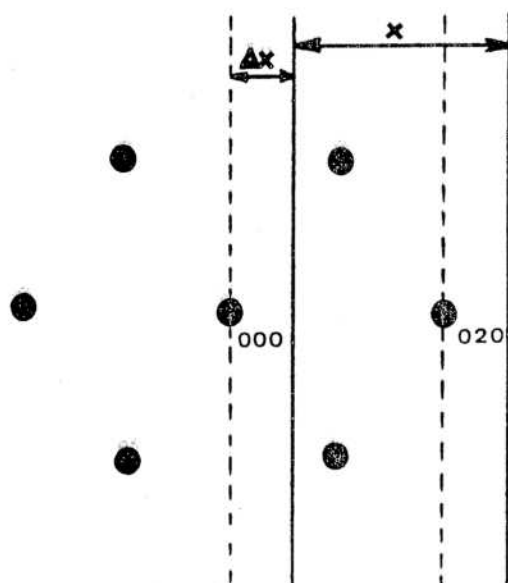


Fig.III.41 - Medición del parámetro de desviación s a partir de la posición relativa de las líneas de Kikuchi respecto del diagrama de difracción.

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

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

$$\frac{10}{35} 1.03^\circ =$$

III.4.10 - 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 nuevamente difractado por los cristales de la otra.

Consideremos el caso particular de una lámina de la aleación **Al-Mg-Si** orientada de tal manera que el haz incide según la dirección [001] de la matriz de **Al**. Los precipitados de la segunda fase **Mg₂Si** son en esta orientación placas delgadas paralelas a las superficies de la lámina. En la Fig.III.42 se muestra esquemáticamente el diagrama de difracción de la matriz y el correspondiente a las placas de la fase **Mg₂Si**. Un haz difractado por la matriz, **P** en la Fig.III.42 (b), puede incidir sobre la segunda fase y dar origen a su vez a varios haces nuevamente difractados. 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.III.42 (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.III.43 se muestra el efecto de doble difracción en una lámina delgada de la fase β bcc de una aleación Mg-Li-Al en la orientación (001) que contiene precipitados laminares de la fase θ MgLi₂Al.

El fenómeno de doble difracción también puede ocurrir en una muestra compuesta por dos cristales idénticos superpuestos y rotados en un pequeño ángulo. En la Fig.III.44 se muestra el diagrama de difracción de dos láminas delgadas 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 primera lámina, se observa finalmente un diagrama compuesto como el de la Fig.III.44.

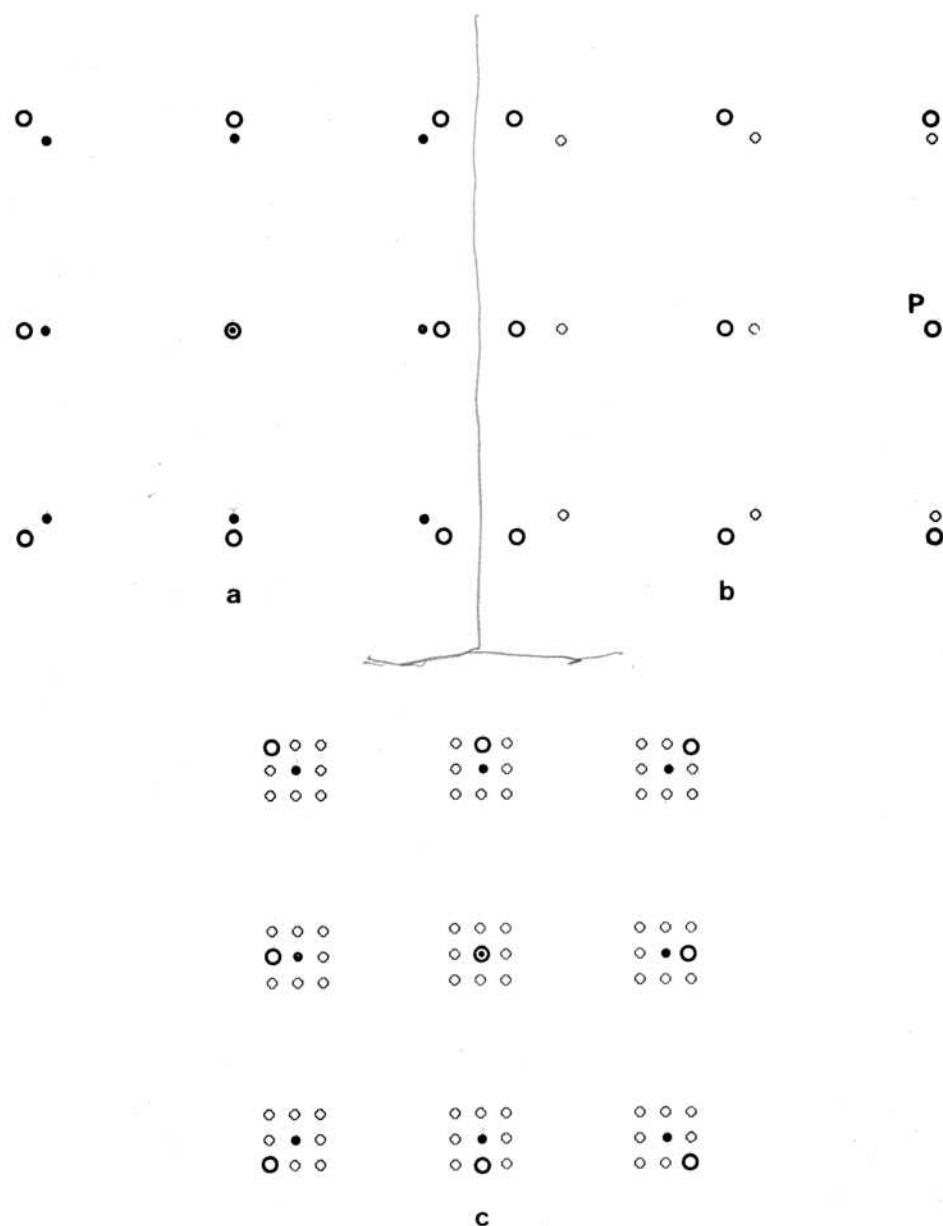


Fig.III.42 - Doble Difracción de Bragg a través de una lámina delgada de la aleación Al-Mg-Si.

- a) Diagrama de la matriz ○. Diagrama de los Precipitados ●
 b) Haces doblemente difractados, originados por el haz difractado P ○
 c) Diagrama completo, considerando todas las posibilidades de doble difracción.

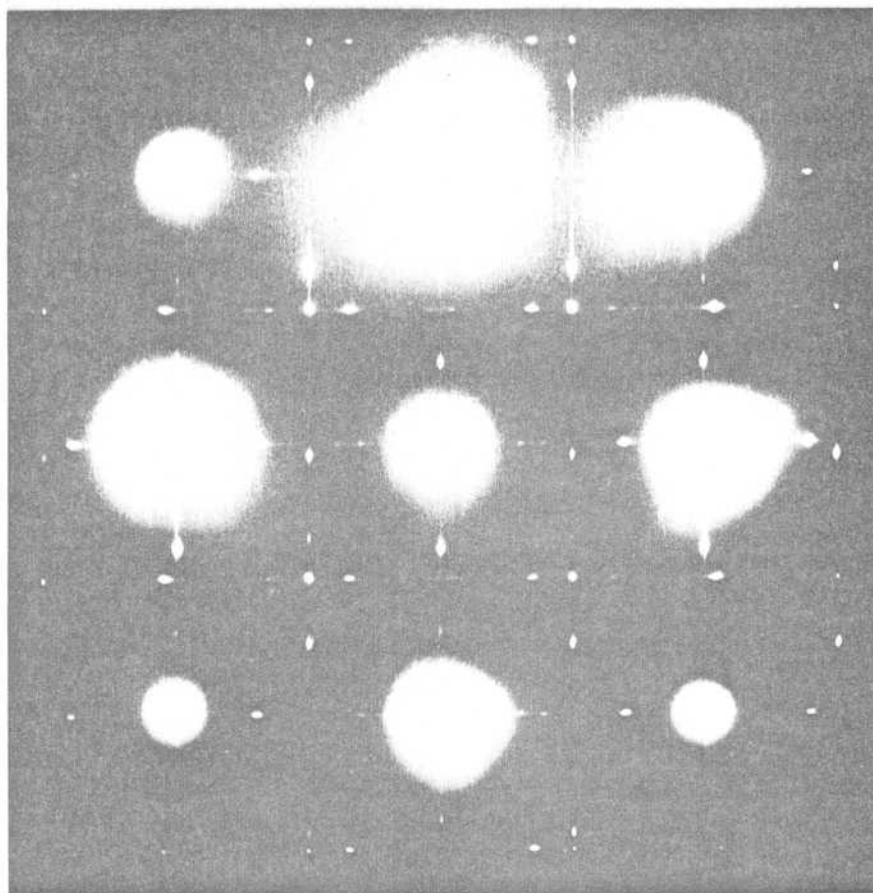


Fig.III.43 - Doble difracción a través de una lámina delgada de aleación Mg-Li-Al, fase β bcc, con precipitados laminares de la fase θ MgLi_2Al , orientación (100).

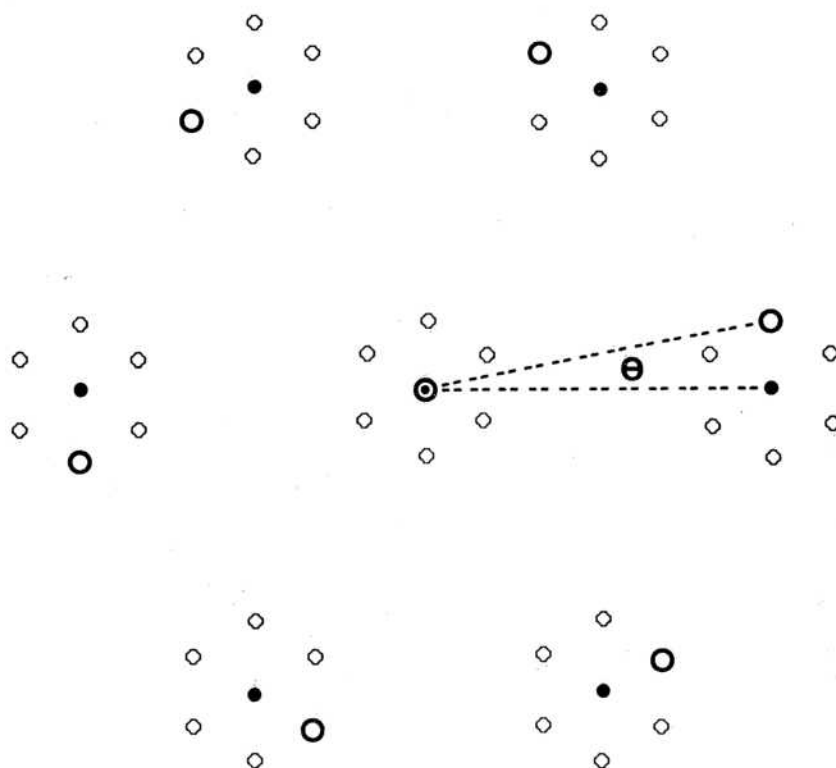


Fig.III.44 - Doble difracción de Bragg a través de dos láminas de cristales idénticos, rotadas entre si en un ángulo θ .

(*) Cristal superior. (o) Cristal inferior.

(○) Haces originados por la doble difracción.

REFERENCIAS

- 1 - A.Howie, P.B.Hirsch, R.B.Nicholson, D.W.Pashley, M.J.Whelan, *Electron Microscopy of Thin Crystals*, Butterworths, 1965.
- 2 - C.J.Davisson y L.H.Germer, *Nature* 119 (1927) 558.
- 3 - G.P.Thomson y A.Reid, *Nature* 119 (1927) 890.
- 4 - A.Guinier, *Theorie et Technique de la Radiocristallographie*, Dunod, 1956.
- 5 - A.F.Bonfiglioli, M.Ipohorski, R.J.Acuña, *Elementos de Cristalografía y Difracción de Rayos X*, PMM/A-221 y PMM/A-246, Buenos Aires, 1974.
- 6 - A.A.Pochettino y M.Ipohorski, *Problemas Típicos de Microscopía Electrónica*, PMM/A-157, CNEA, Buenos Aires 1974.
- 7 - K.W.Andrews, D.J.Dyson y S.R.Keown, *Interpretation of Electron Diffraction Patterns*, Adam Hilger Ltd., London 1971.

IV - CONTRASTE DE DEFECTOS CRISTALINOS

IV.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, existía un fuerte haz difractado (hkl) formando un ángulo $2\theta_{hkl} \approx 10^{-2}$ rad con el haz incidente. Como las muestras observadas en microscopía electrónica son láminas muy delgadas, la separación entre el haz incidente y el haz difractado en la superficie inferior de la lámina es de unos pocos Å, valor comparable con las distancias interatómicas, Fig.IV.1. Además como la aproximación cinemática supone que el haz difractado no interacciona con el cristal ni con el haz transmitido, entonces es justificable considerar la lámina como un agregado de **Columnas Monoatómicas** paralelas entre si. En esta aproximación los procesos de difracción en una columna son independientes de las columnas vecinas, y la imagen final se puede obtener calculando 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 en la sección IV.3.

La llamada **Aproximación de Dos Haces** supone además que cada columna de la lámina es atravesada solamente por dos haces

- Haz Transmitido de Intensidad I_T
- Haz Difractado de Intensidad I_g

verificándose siempre que

$$I_T + I_g = 1 \quad (IV.1)$$

La intensidad transmitida (imagen de campo claro) resulta entonces complementaria de la imagen de campo oscuro en esta aproximación. Es conveniente aclarar que aunque la probabilidad de excitar simultáneamente varias reflexiones es muy alta, siempre es posible inclinar la lámina 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 del presente capítulo siempre suponen que se cumple la aproximación de dos haces.

IV.2 - Imagen de una Lámina Delgada Perfecta

Calcularemos a continuación el valor de la intensidad difractada por una columna de una lámina monocristalina 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. Si el haz electrónico incide según la dirección del eje a_3 , de acuerdo al esquema de la Fig.III.30 se puede suponer que

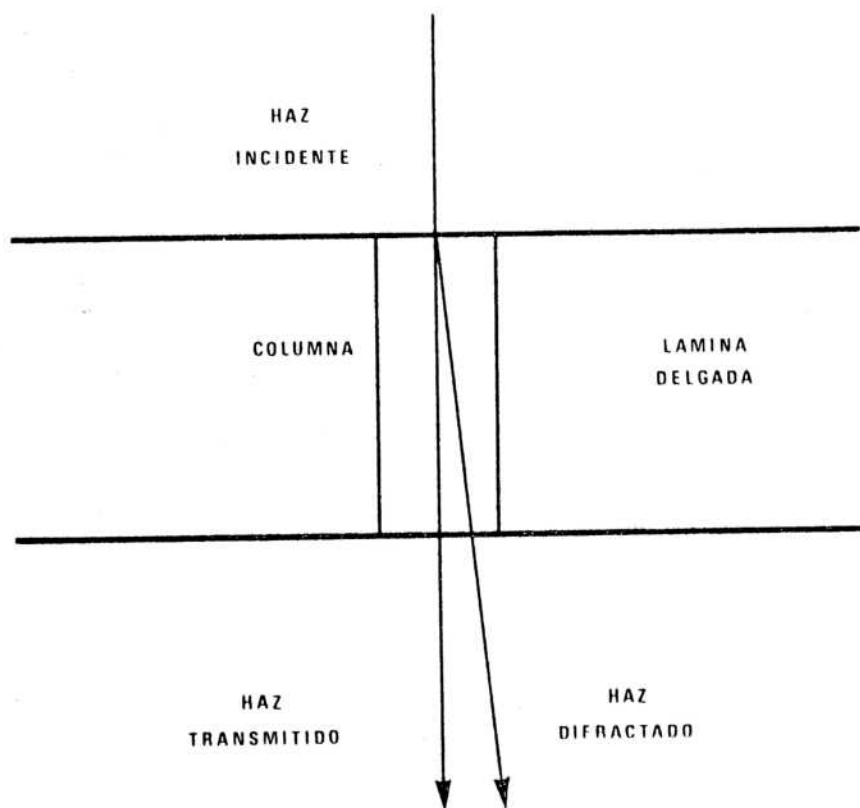


Fig.IV.1 - Aproximación de la columna y de dos haces. Se considera la lámina delgada como un agregado de columnas monoatómicas paralelas entre sí. La imagen electrónica se obtiene superponiendo las contribuciones individuales de cada columna de la muestra.

$$s = e_3 a_3^* \quad e_1 \approx e_2 \approx 0 \quad (IV.2)$$

De acuerdo a (III.58) y (IV.2) la intensidad difractada por la columna está dada por

$$I_g = \frac{f^2}{r^2} N_1^2 N_2^2 \frac{\sin^2 \pi N_3 e_3}{\sin^2 \pi e_3} \quad (IV.3)$$

Como

$$|s| = s = e_3 \frac{1}{a_3} \quad \therefore e_3 = s a_3$$

y además

$$\sin^2 \pi e_3 \approx (\pi e_3)^2$$

$$N = N_1 N_2 N_3 \quad , \quad t = N_3 a_3 = \text{espesor de la lámina}$$

resulta finalmente

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

IV.2.1 - Franjas de Igual Espesor y de Igual Inclinación

De acuerdo a la expresión (IV.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 $\Delta t = 1/s$. En una muestra de espesor constante, I_g es una función periódica del parámetro de desviación s .

En el primer caso, espesor t variable, la imagen de campo oscuro de la lámina consiste en una serie de franjas claras y oscuras, Fig.IV.2. El espesor de la lámina es constante a lo largo de cada una de estas franjas, denominadas **Franjas de Igual Espesor**. El espaciado entre franjas depende de la desviación s de la posición de Bragg, y la diferencia de espesores entre dos franjas contiguas es igual a

$$(IV.5)$$

$$\xi_g = \frac{1}{s}$$

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, pues la intensidad del haz difractado es comparable a la del haz incidente. Si $s \rightarrow 0$ la distancia de extinción tiende a valores cada vez más grandes, hecho que no es confirmado por las experiencias. La teoría dinámica de la difracción de electrones [1] predice que una lámina orientada en la posición de Bragg ($s = 0$) presenta franjas de igual espesor que corresponden a una distancia de extinción dada por

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

donde

V_c = volumen de la celda primitiva

θ_{hkl} = ángulo de Bragg

λ = longitud de onda del haz electrónico

F_{hkl} = 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.

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

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.



Fig.IV.2 - Franjas de igual espesor en una lámina delgada de cobre. El espesor de la lámina es constante a lo largo de cada una de las franjas. M : 5000x.

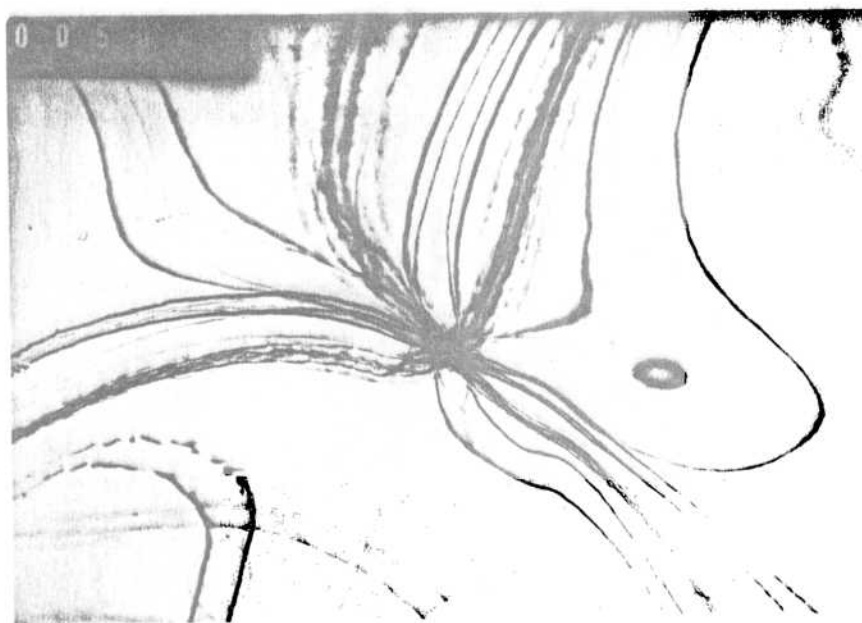


Fig.IV.3 - Franjas de igual inclinación, o contornos de extinción, en una lámina delgada de cobre. M : 5000x.

Las imágenes de campo claro (haz transmitido) presentan las mismas características que las de campo oscuro (haz difractado) si la lámina está orientada de tal manera que se verifica la aproximación de dos haces. De acuerdo a las predicciones de la teoría cinemática, ec.(IV.1), en campo claro las franjas de igual espesor y las de igual inclinación son complementarias de las correspondientes a campo oscuro : a máximos de intensidad corresponden mínimos, y viceversa. Pero un análisis más detallado, que requiere del formulismo de la teoría dinámica de la difracción de electrones [1] muestra algunas diferencias en la distribución de intensidades.

IV.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 claro como en campo oscuro. Pero la aproximación resulta realmente útil para calcular el contraste de columnas que contienen 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.(III.25), es

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

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

$$A = \frac{f}{r} \sum_i e^{2\pi i \vec{s} \cdot \vec{r}_i} = \frac{f}{r} \sum_i e^{2\pi i s z_i} \quad (IV.7)$$

donde z_i es la coordenada que describe la profundidad de las celdas a lo largo de la columna, Fig.IV.4 (a). También puede considerarse cada columna como una sucesión continua de celdas difractantes, y la ec.(IV.7) resulta entonces

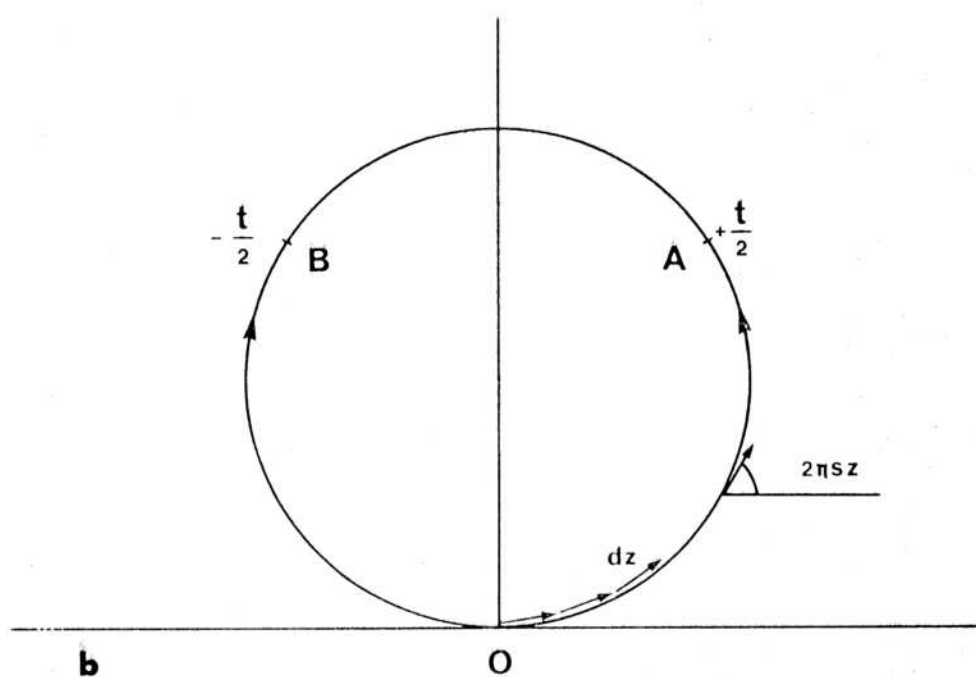
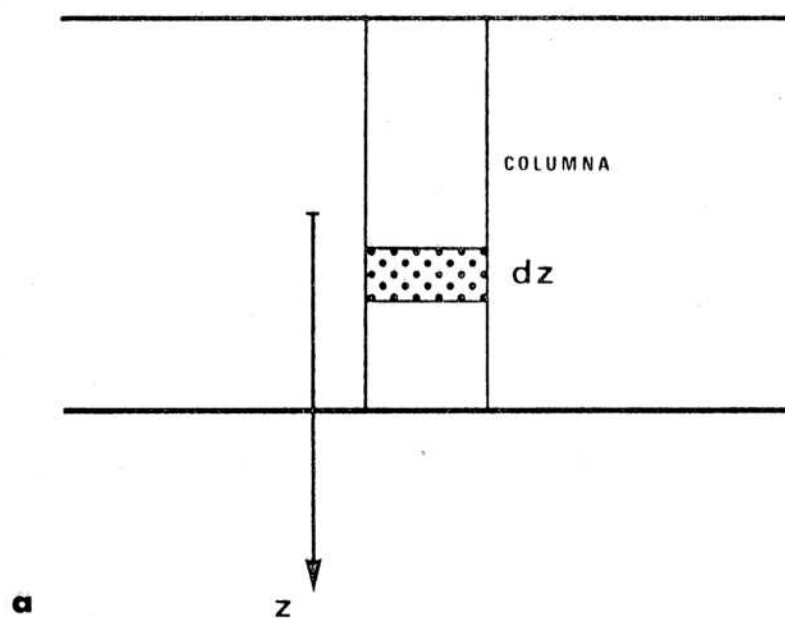


Fig.IV.4 - a) Esquema utilizado para calcular el contraste de una columna dada en una lámina delgada. b) Esquema de Fresnel para calcular la intensidad difractada por una columna de un cristal perfecto.

$$A = \frac{F}{r} \frac{1}{t} \int_{-\frac{t}{2}}^{\frac{t}{2}} e^{2\pi i s z} dz$$

(IV.8)

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

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

y la intensidad difractada es por lo tanto

$$I_g = |A|^2 = \frac{F^2}{r^2} \frac{\text{sen}^2 \pi s t}{(\pi s t)^2}$$

(IV.9)

que es similar a la expresión (IV.4) obtenida anteriormente. El caso de un cristal perfecto tiene entonces una solución analítica simple. Pero si s es función de z , caso de una columna distorsionada por un defecto cristalino, es necesario resolver la integral (IV.7) y normalmente no existen soluciones analíticas sencillas.

La **Construcción de Fresnel** es un formulismo gráfico que permite resolver el problema en el caso de defectos cristalinos simples, considerando a dicha integral como una suma de vectores del tipo

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

en el campo complejo, donde el módulo es dz , y el factor de fase es $\theta = 2\pi s z$. En el caso del cristal perfecto, la construcción de Fresnel se realiza a partir del origen O del plano complejo, trazando los sucesivos vectores de módulo dz y argumento creciente $2\pi s z$ hacia la derecha, y decreciente $-2\pi s z$ hacia la izquierda, Fig.IV.4 (a). Se obtiene así un polígono regular que para $dz \rightarrow 0$ tiende a una circunferencia de longitud igual a $1/s$, puesto que éste es el valor de z para el cual el argumento alcanza el valor 2π . El radio de la circunferencia es por lo tanto $1/2\pi s$.

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. En efecto, la longitud del vector **AB** no cambia si el valor de z se incrementa en una longitud de circunferencia, es decir $1/s$ (franjas de igual espesor). De la misma manera se puede demostrar la variación de la intensidad difractada con el parámetro s .

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

IV.3 - Imágenes de Defectos Cristalinos. Criterios de Visibilidad

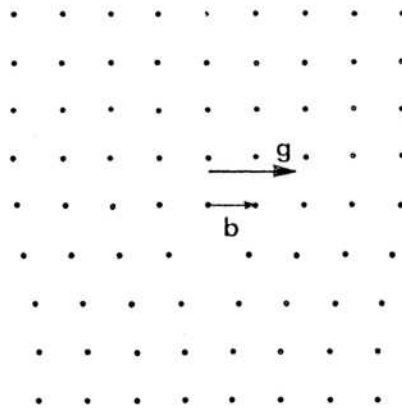
Los defectos cristalinos son visibles en una micrografía electrónica al distorsionar en sus vecindades una familia de planos (hkl) orientados cerca de la posición de Bragg. Para una mejor visualización del origen del contraste, volveremos a considerar el ejemplo simple de la dislocación de borde en dos orientaciones distintas, Fig.IV.5 (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.IV.4 (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 locales de difracción. La imagen de la dislocación puede estar a uno u otro lado de la misma, según la orientación de la lámina, según que sea $s > 0$ o $s < 0$. En cambio en una orientación como la de la Fig.IV.5 (b) los planos difractantes no son mayormente distorsionados por la presencia de la dislocación, y esta es entonces invisible (no hay contraste).

Si **b** es el vector de Burger de la dislocación, la condición de invisibilidad se puede expresar

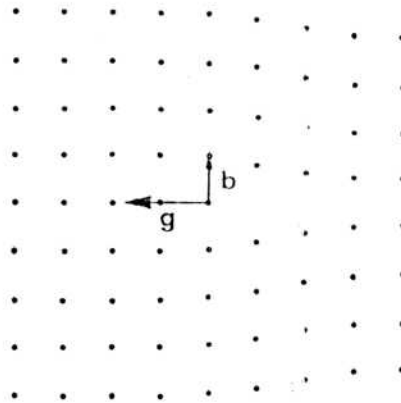
$$\mathbf{g}_{hkl} \cdot \mathbf{b} = 0 \quad (IV.10)$$

donde $\mathbf{g}_{hkl}$ 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 $\frac{1}{2}[1\bar{1}0]$ no es visible en la reflexión (224). De manera más general, el contraste de una dislocación depende de tres parámetros

$$\mathbf{g}_{hkl}, \mathbf{b}, s$$



(a)



(b)

Fig.IV.5 - Contraste de una dislocación de borde en dos orientaciones distintas. a) La dislocación es visible pues altera los planos difractantes (hkl). b) La dislocación es invisible pues en esta orientación los planos difractantes no son mayormente distorsionados por la dislocación, y es $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$.

y de su respectivo signo. El estudio sistemático de esta dependencia es el que permite determinar $\mathbf{b}$ 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.IV.6. 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 (IV.10).

En general, si un defecto cristalino produce un desplazamiento $\vec{\mathbf{R}}(r_i)$ en la celda descrita por el vector $\vec{\mathbf{r}}_i$ en una columna dada, la amplitud difractada será de acuerdo a (IV.5)

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

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

$$A = \frac{F}{r} \sum_i e^{2\pi i(\mathbf{g} \cdot \mathbf{R} + \mathbf{s} \cdot \mathbf{r}_i)} = \frac{F}{r} \sum_i e^{2\pi i\alpha(r_i)} e^{2\pi i\mathbf{s} \cdot \mathbf{r}_i}$$

o también, reemplazando la suma por una integral

$$A = \frac{F}{r} \int_{-\frac{t}{2}}^{\frac{t}{2}} e^{i\alpha(z)} e^{2\pi i\mathbf{s}z} dz$$

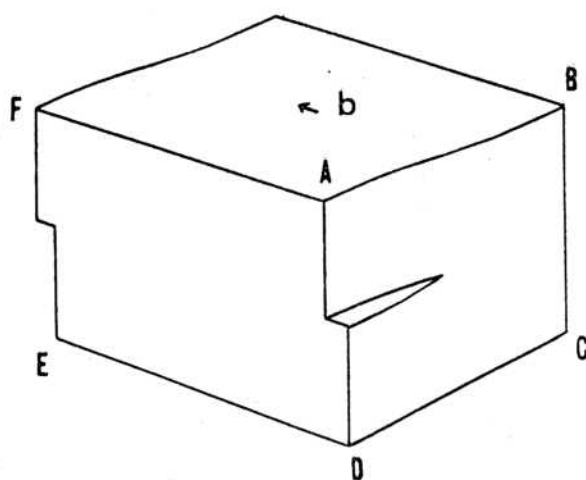
(IV.11)

donde

$$\alpha(z) = 2\pi \mathbf{g} \cdot \vec{\mathbf{R}}(z)$$

(IV.12)

es el ángulo de desfase que introduce el defecto en la amplitud difractada por la celda de coordenada z dentro de la columna considerada. Por lo tanto si se conoce el desplazamiento $\vec{\mathbf{R}}$ 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 $\vec{\mathbf{g}} \cdot \vec{\mathbf{R}}$ sea diferente de cero, y distinta de un número entero. En las secciones siguientes se analizarán las características principales del contraste de algunos defectos comunes en metales.



DISLOCACION DE HELICE

Fig.IV.6 - Visibilidad de una dislocación de hélice. La dislocación es visible si el cristal se orienta cerca de la posición de Bragg correspondiente a los planos ABCD.

IV.3.1 - Contraste de Fallas de Apilamiento

Las estructuras metálicas compactas (fcc, hcp) se caracterizan por apilamientos de átomos, supuestos esferas rígidas e impenetrables, ver p.ej. la publicación del laboratorio [2]. Consideremos una primer capa de estas esferas sobre un plano. 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.IV.7 es posible ubicar una segunda capa sobre los intersticios de tipo **B**. 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 **hcp**, mientras que el apilamiento

...ABCABCABC...

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

Aún 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 **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 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 **R**.

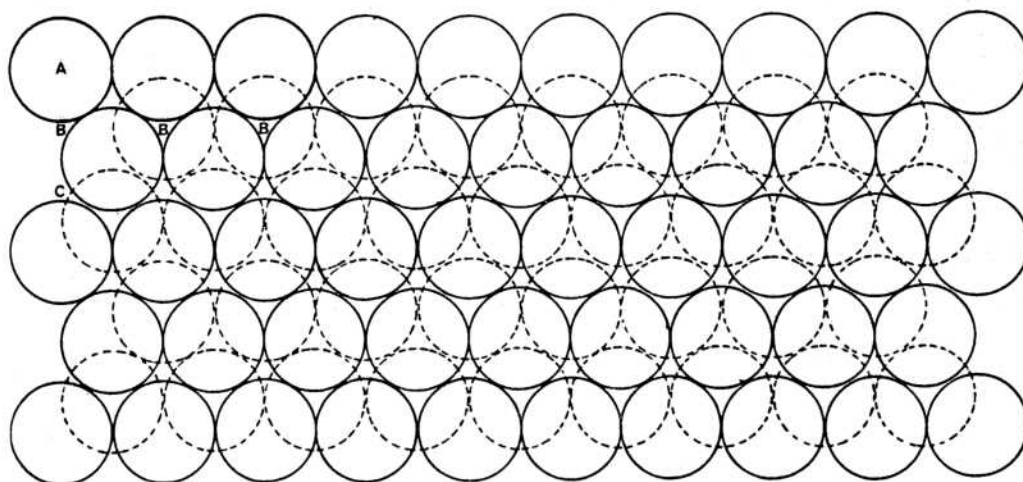


Fig.IV.7 - Apilamiento compacto de átomos de acuerdo al modelo de esferas rígidas. El apilamiento en un plano deja dos tipos de intersticios de tipo triangular, unos con su "base" hacia arriba, tipo B, y los de orientación opuesta, tipo C.

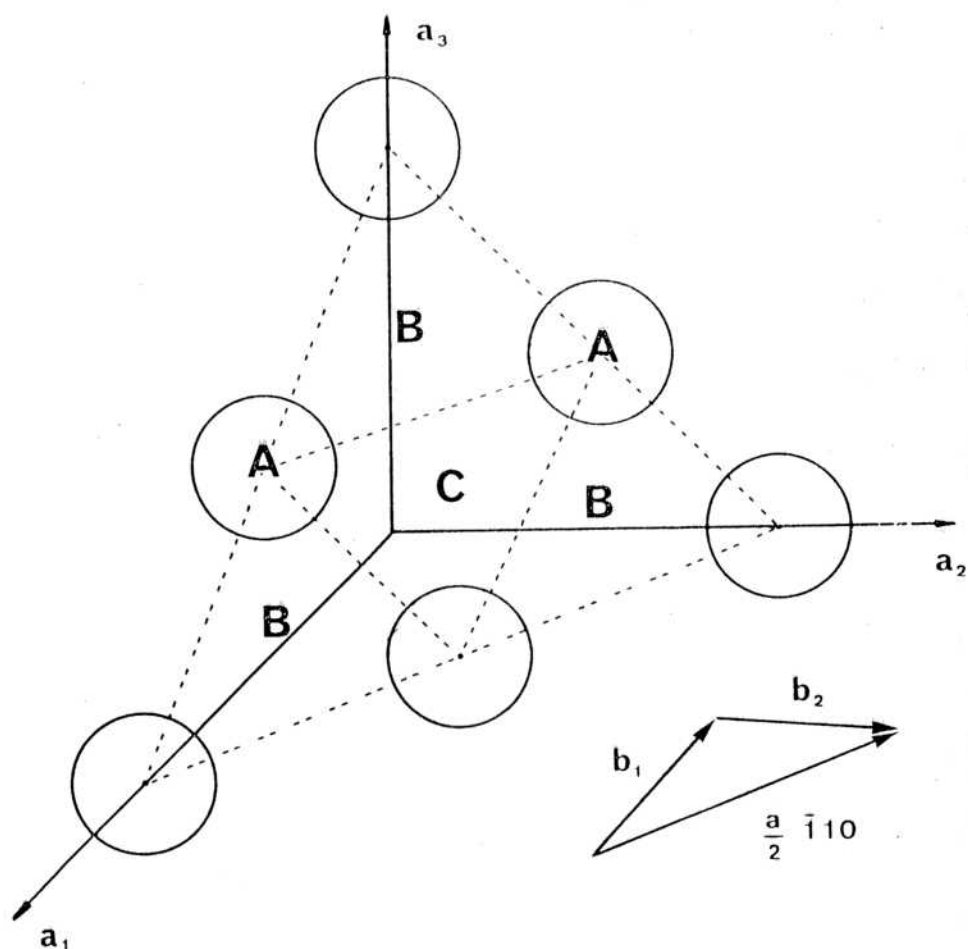


Fig.IV.8 - Esquema del plano compacto (111) de una estructura cúbica de caras centradas. Los vectores $\vec{b}_1$ y $\vec{b}_2$ son los que desplazan un átomo de un intersticio B a uno de tipo C, y de uno C a uno de tipo B, respectivamente.

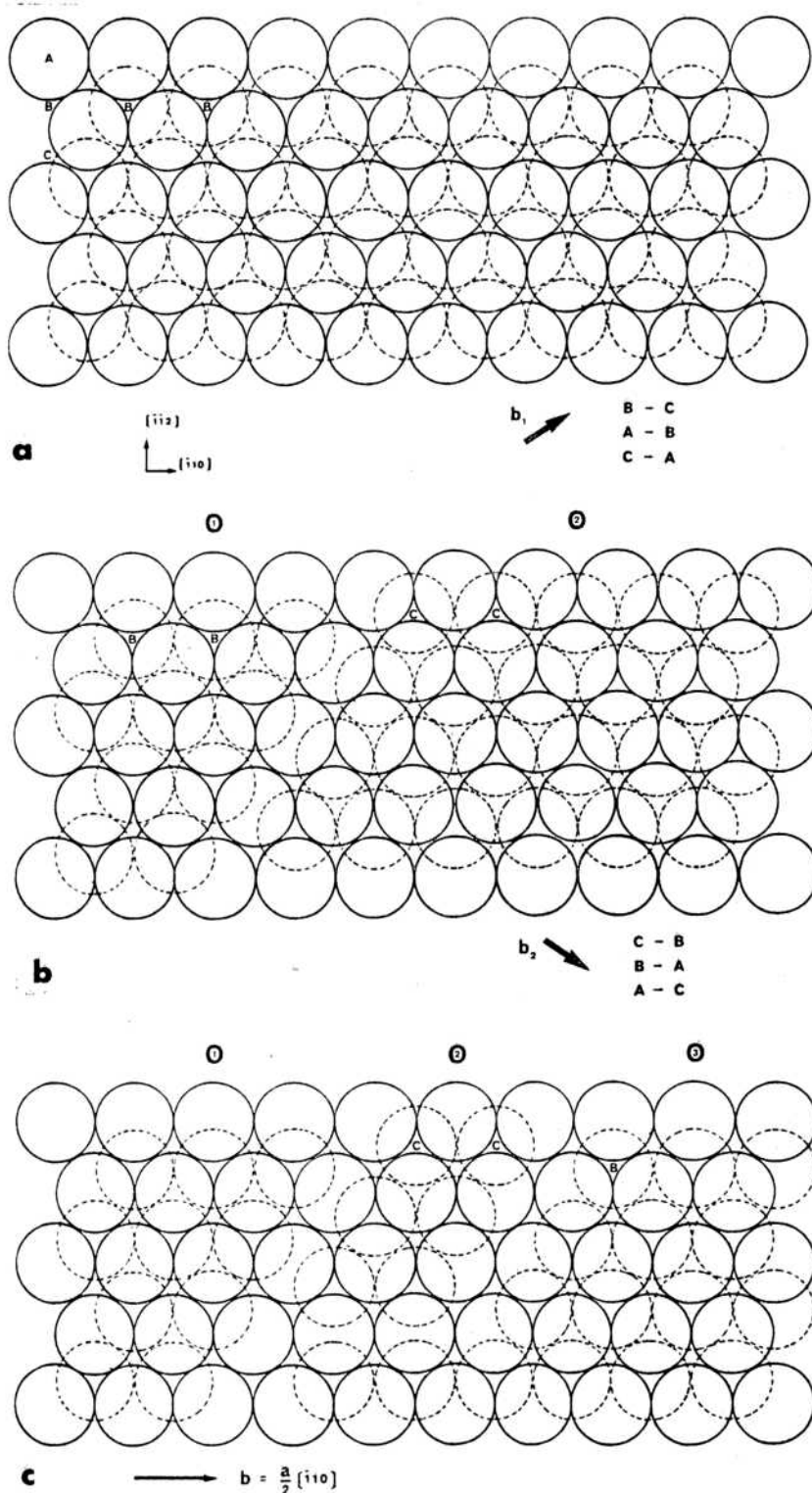


Fig.IV.9 - a) Apilamiento compacto de átomos en una estructura fcc. b) Si una parte "2" del cristal desliza respecto de un plano compacto en un vector $\vec{b}_1$, se origina una falla de apilamiento intrínseca. c) Si a su vez una parte "3" se desplaza en un vector $\vec{b}_2$, desaparece la falla, pero entre "1" y "3" se crea una dislocación de borde perfecta.

Demostraremos a continuación que $\vec{R}$ siempre se puede reducir a un vector del tipo $\pm a/3[111]$. En la Fig.IV.8 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 uno de tipo **C** a uno de tipo **B**, dados por

$$\vec{b}_1 = \frac{a}{6} [211] \quad , \quad \vec{b}_2 = \frac{a}{6} [\bar{1}21]$$

(IV.13)

De esta manera, si una porción "2" de la parte superior del cristal desliza respecto de parte inferior en un vector $\vec{b}_1$, Fig.IV.9 (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

...ABCACABC...

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.IV.9 (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

$$\frac{a}{6} [211] + \frac{a}{6} [121] = \frac{a}{2} [110]$$

(IV.14)

que es un vector de la red y por lo tanto es una dislocación de borde perfecta, Fig.IV.9 (c). 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 perfecta. 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.IV.9 (c).

Si la falla de apilamiento fue originada en cambio por la supresión de una capa compacta, por ejemplo de tipo **B**, entonces el vector de Burger que bordea la falla, Fig.IV.8, es de la forma

$$\vec{b} = \frac{a}{3} [111]$$

(IV.15)

que tampoco es un vector traslación de la red. La dislocación 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 apilamiento 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 un plano del tipo $\{111\}$ de la falla, y la dislocación, que puede ser de borde, hélice o mixta, es móvil y 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

$$\vec{R} = \pm \frac{a}{3} [111]$$

(IV.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 b_2 , ec.IV.13, siempre se puede efectuar la descomposición siguiente

$$\vec{b} = \frac{a}{6} [121] = \frac{a}{3} [111] + \frac{a}{2} [101]$$

(IV.17)

Siendo $\vec{a}/2[101]$ 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 (IV.12) solamente agrega un término igual a $2\pi n$. Entonces (IV.17) puede considerarse equivalente a un vector del tipo (IV.16). Por convención el signo (+) de IV.16 caracteriza una falla de apilamiento extrínseca y el signo (-) a una falla intrínseca.

Consideraremos ahora el caso de una falla de apilamiento paralela a las caras de la lámina delgada, situada a una cierta profundidad t_1 en una lámina delgada de espesor $t = t_1 + t_2$. Ambas partes de la lámina son cristales perfectos desplazados en una cantidad $\vec{R}$ dada por IV.16. De acuerdo a (IV.12) el desfasaje entre las ondas difractadas por las dos partes de la muestra está dado por

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

Por ejemplo en las reflexiones

$$\mathbf{g} = 220 \rightarrow \alpha = \frac{2\pi}{3} 4 \equiv \frac{2\pi}{3}$$

$$\mathbf{g} = \bar{2}20 \rightarrow \alpha = -\frac{2\pi}{3}$$

y la falla es entonces visible. En cambio para

$$\mathbf{g} = \bar{2}\bar{2}0 \rightarrow \alpha = 0$$

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

El diagrama fase-amplitud, por ejemplo para $\alpha = -2\pi/3$, puede construirse fácilmente. Para la porción superior del 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.IV.10. 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.IV.10, 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 (IV.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

$$I_g = |\mathbf{A}|^2 = \frac{1}{\pi^2 s^2} \{1 - \cos(\alpha + \pi s t) \cos \pi s t + [\cos(\alpha + \pi s t) - \cos \pi s t] \cos 2\pi s u\} \quad (\text{IV.18})$$

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

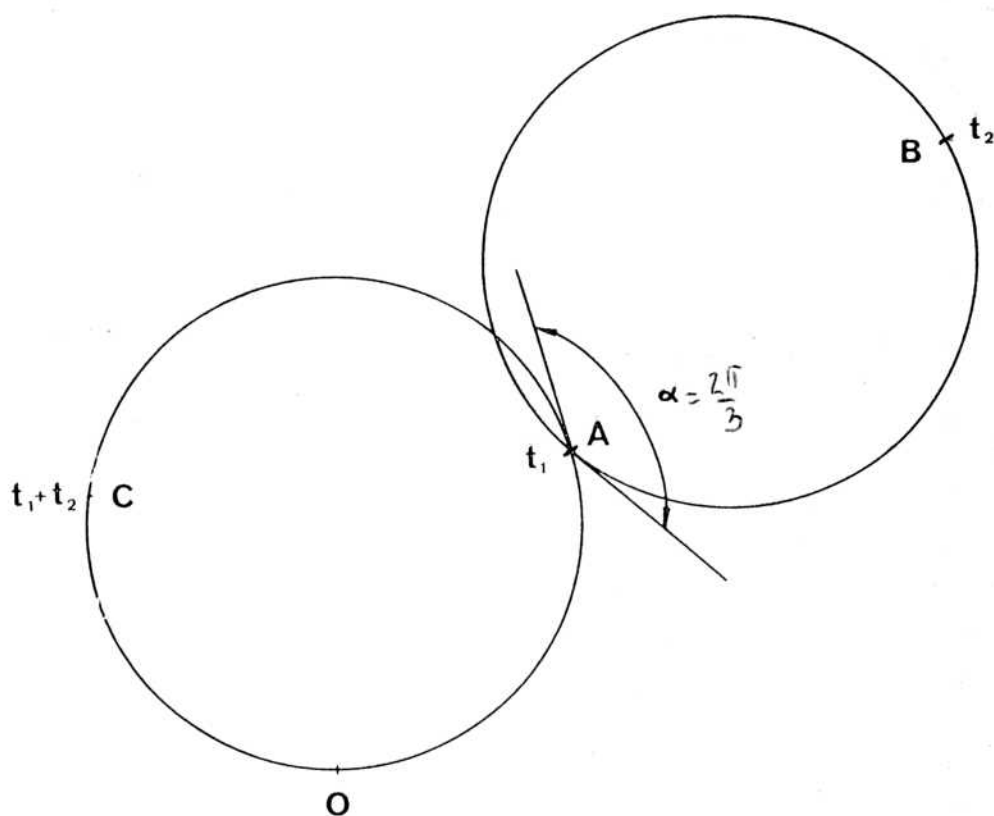


Fig.IV.10 - Diagrama fase-amplitud correspondiente a una falla de apilamiento paralela a las superficies de la lámina. La falla presenta un contraste uniforme claro u oscuro según el valor de la profundidad t_1 .

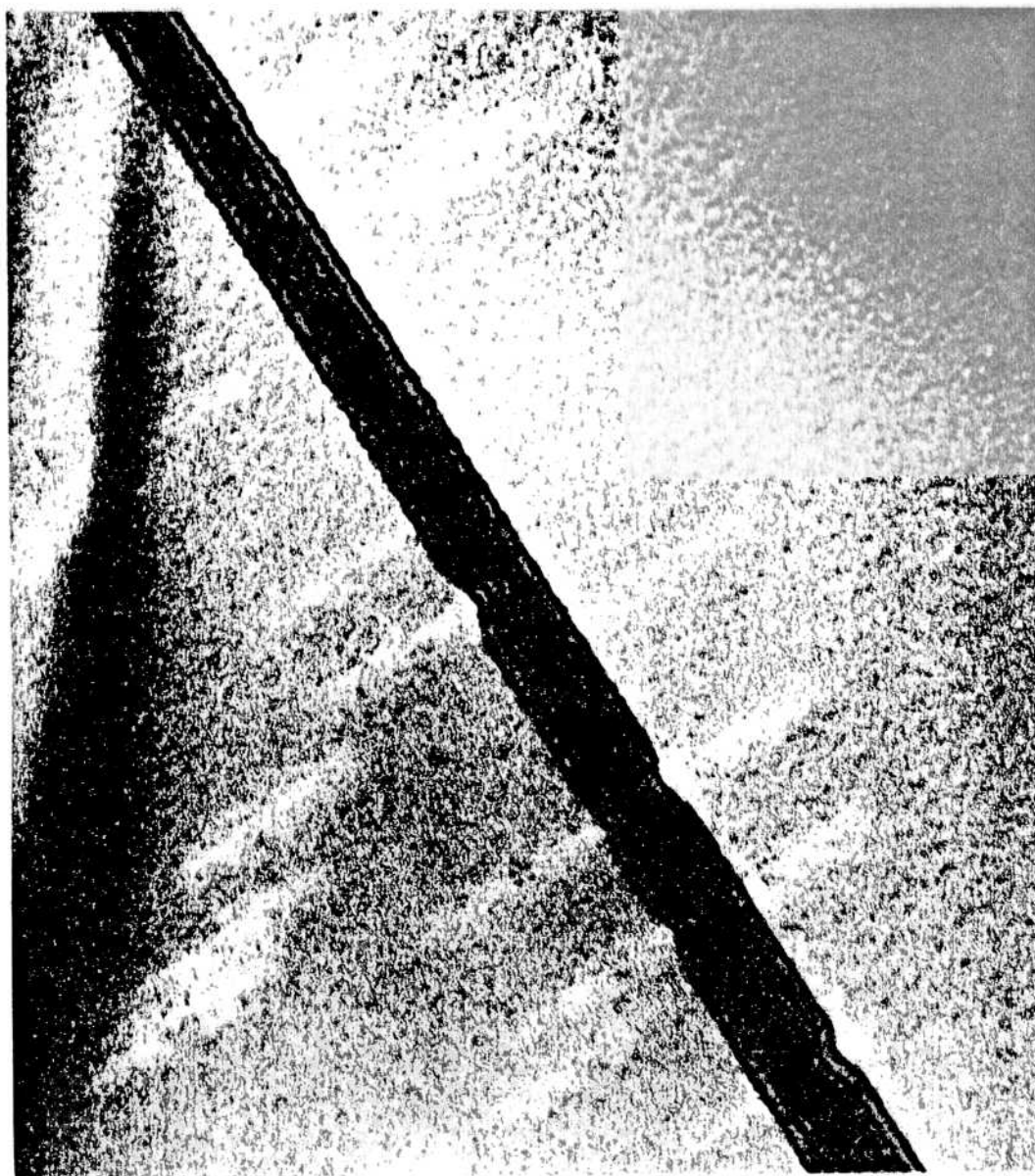


FIG.IV.11 - Micrografía electrónica de una falla de apilamiento en una lámina delgada de cobre.

$$\Delta I_g = \frac{4}{\pi^2 s^2} \sin \pi s t_1 \sin \pi s t_2 \sin \left(\frac{\alpha}{2} + 2\pi s t \right) \frac{\sin \alpha}{2}$$

(IV.19)

Según esta última expresión, se ve que aún si α es distinto de cero, la falla es invisible si

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

Con estos resultados es posible ahora considerar el caso de una falla inclinada. Como la intensidad difractada 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 la Fig.IV.11 se muestra un ejemplo de imágenes de fallas de apilamiento en metales fcc.

Por otro lado, en el ejemplo que hemos considerado, $\alpha = -2\pi/3$, según (IV.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

$$\begin{aligned} & \left\{ \begin{array}{l} \text{primer franja clara } \alpha = 2\pi/3 \\ \text{primer franja oscura } \alpha = -2\pi/3 \end{array} \right. \\ \text{campo claro } \{ & \end{aligned}$$

(IV.20)

Conocido el valor de α es posible determinar la naturaleza intrínseca o extrínseca de la falla, a través del valor de $\vec{R}$ ($\pm a/3[111]$) que satisface IV.12. Para ello también es necesario conocer la inclinación de la falla dentro de la lámina, puesto que para un $\vec{R}$ dado, el signo de α depende del ángulo entre $\vec{g}$ y $\vec{R}$, Fig.IV.12. Pueden utilizarse técnicas de estereo-microscopía, obteniendo dos micrografías con el mismo vector $\vec{g}$, 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.IV.XX (a) y (b).

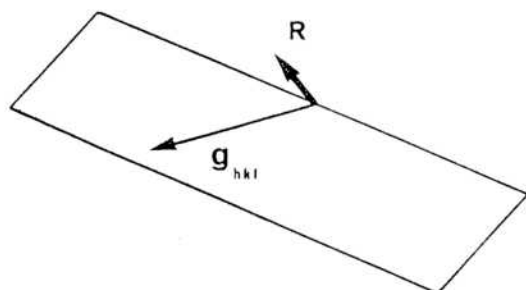
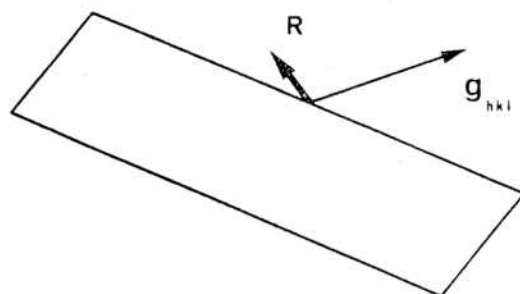


Fig.IV.12 - En una falla de apilamiento dada, el contraste depende del ángulo entre el vector desplazamiento $\vec{R}$ y el vector de reflexión $\vec{g}$. Para poder determinar la naturaleza intrínseca o extrínseca de una falla es necesario distinguir entre las dos posibilidades esquematizadas.

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 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 $g \cdot b = 0$, ver referencia [1].

IV.3.2 - Contraste de Dislocaciones de Hélice y de Borde

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 [3] así como en publicaciones del laboratorio [4] se pueden consultar los detalles de la teoría general de dislocaciones, y nos limitaremos aquí a una descripción cristalográfica para la visualización del contraste al que dan lugar en una micrografía electrónica.

Dislocación de Borde - Una dislocación de este tipo puede visualizarse fácilmente si se la considera como el resultado de un agregado de un semiplano adicional entre dos planos consecutivos de una familia (hkl), Fig.IV.13. El desplazamiento b así originado se denomina vector de Burger b y en este caso es siempre perpendicular a la línea de dislocación. De la misma manera la remoción de un semiplano 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 b respecto de la parte inferior. La manera más simple de hacerlo es desplazando directamente las dos mitades en b , pero también se logra el mismo resultado desplazando de un extremo a otro del cristal una dislocación de borde cuyo vector de Burger b está contenido en el plano de deslizamiento P . En una posición intermedia, la configuración de planos cristalinos es tal como la indicada en la Fig.IV.13(b). Entonces la dislocación define el límite entre la parte del cristal que ha deslizado 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 si misma dando origen a un lazo cerrado 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 .

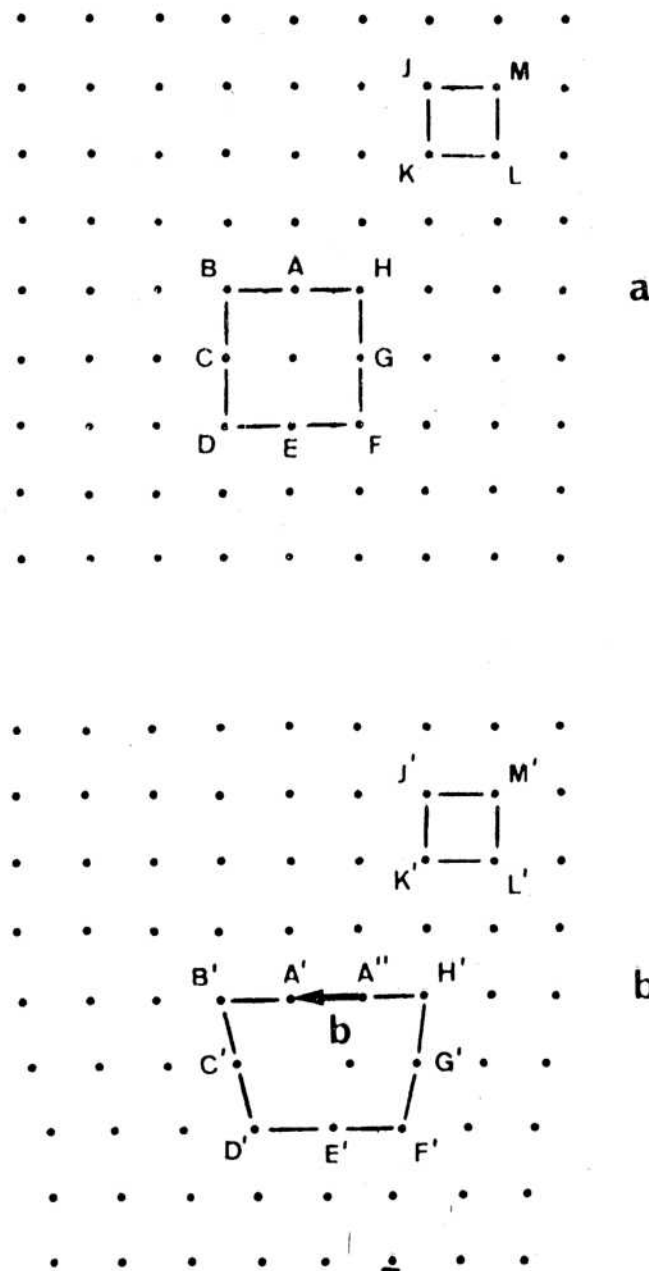


Fig.IV.13 - Definición de vector de Burger. En zonas alejadas de la dislocación, al circuito cerrado **JKLM** del cristal perfecto (a) le corresponde el circuito cerrado **J'K'L'M'** del cristal imperfecto (b). Pero al circuito **ABCDEFGHA** que encierra a la línea de dislocación le corresponde un circuito que no es cerrado. El vector que completa este circuito se denomina vector de Burger $\vec{b}$ de esta dislocación.

Circuito de Burger - Consideremos nuevamente los esquemas de las Fig.IV.13 (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 puedan 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 b** de la dislocación. El sentido positivo de **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 dislocación dada, y no depende del origen ni de la forma del circuito elegido. Por lo tanto es un parámetro característico propio de la dislocación. Si **b** es igual a un vector traslación de la red, la dislocación se denomina perfecta o total.

La definición del vector de Burger en el caso de una dislocación de hélice es semejante. 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 **b** paralela a la dirección **[100]**, se obtiene una dislocación denominada de hélice, ver Fig.IV.8. El conjunto de planos de la familia **(100)** perpendiculares a **b** se transforma en una rampa helicoidal. La dislocación de hélice es siempre paralela a su vector de Burger **b**. Todo plano cristalino que contiene a la línea de dislocación puede ser en principio un plano de deslizamiento.

Una dislocación de borde forma un ángulo de 90° con su vector de Burger, y en una dislocación de hélice 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.

Calcularemos ahora el contraste que presenta una dislocación en una lámina delgada observada en el microscopio electrónico. En primer lugar consideremos una dislocación de hélice paralela a las superficies libres de la lámina, paralela a la dirección **Oy**, Fig.IV.14 (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

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

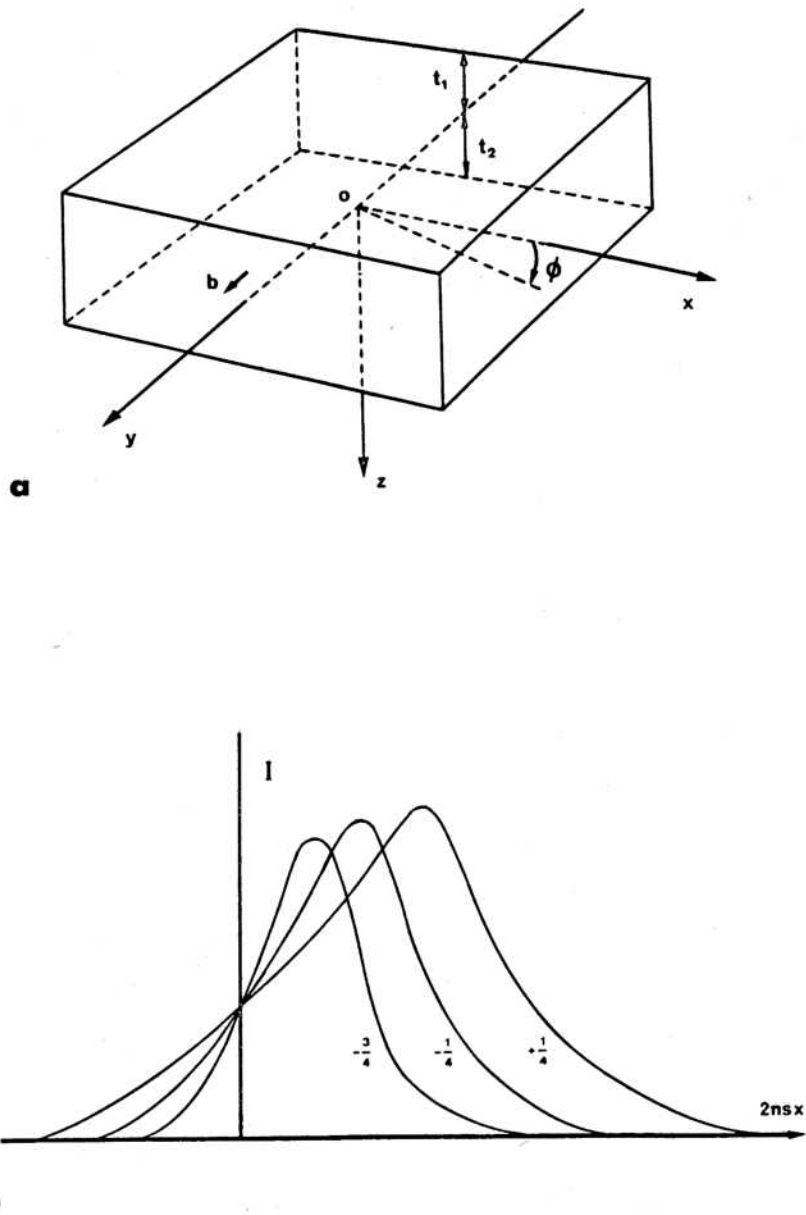


Fig.IV.14 - a) Dislocación de hélice paralela a las superficies de la lámina. b) Perfiles de intensidad calculados. La distancia entre los máximos y la línea de dislocación es del orden del ancho total de la imagen. El ancho de la imagen crece con el orden de reflexión $n = \vec{g} \cdot \vec{b}$.

o de manera más general

$$\vec{R} = \frac{\vec{b}}{2\pi} \operatorname{arctg} \phi = \frac{\vec{b}}{2\pi} \operatorname{arctg} \frac{z}{x}$$

(IV.21)

donde $\vec{b}$ es el vector de Burger de la dislocación. El desfase será entonces

$$\alpha = 2\pi \vec{g} \cdot \vec{R} = \vec{g} \cdot \vec{b} \operatorname{arctg} \frac{z}{x} = n \operatorname{arctg} \frac{z}{x}$$

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

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

$$A = \int_{-t_1}^{t_2} e^{-in \operatorname{arctg} \frac{z}{x}} e^{-2\pi i s z} dz$$

(IV.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 IV.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. Como es de esperar, 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 cantidad $\arctg z/x$ pasa del valor $-\pi/2$ a $+\pi/2$. El desfase total introducido por la dislocación en sus vecindades es $n\pi$. Se puede ver también que la amplitud difractada es independiente de y . El contraste es por lo tanto paralelo a la línea de dislocación.

El cálculo numérico de IV.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.IV.14 (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 150Å. Además el ancho de la imagen crece rápidamente con el orden de reflexión

$$n (= \vec{g} \bullet \vec{b})$$

En cuanto a la altura de los picos, es necesario notar que las curvas de la Fig.IV.14 (b) representan el cuadrado de la amplitud difractada A . Para obtener la intensidad real, tal como corresponde a la observación 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 , es decir 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 si. 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.IV.14 (b) muestra también que la intensidad difractada no es máxima sobre la dislocación ($x=0$) sino que está situada a derecha o izquierda de la misma, según el signo de s . Por lo tanto la imagen de una dislocación que atraviesa un contorno de extinción, se quiebra al pasar de la zona $s > 0$ a la zona $s < 0$.

Las principales características de las imágenes de las dislocaciones de hélice se pueden también deducir a partir de los diagramas fase-amplitud. Consideremos la integral IV.22. El círculo C_0 de radio $1/2\pi s$ corresponde a un cristal sin defectos, Fig.IV.15. Según el signo de $\vec{g} \bullet \vec{b}$, s , x , pueden presentarse dos casos :

1) - $nsx > 0$. En este caso el ángulo dado por

$$2\pi sz + n \arctg z/x$$

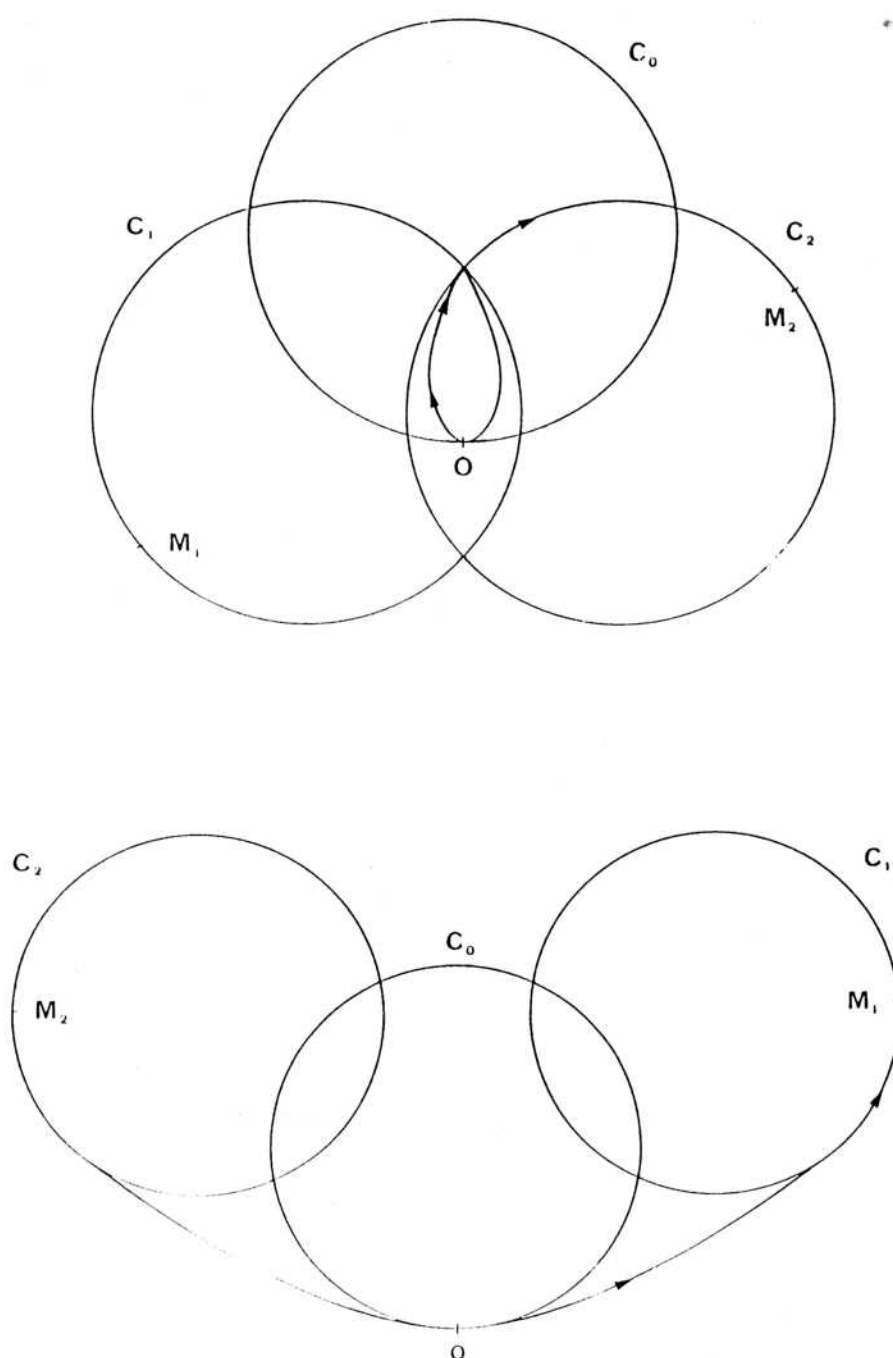


Fig.IV.15 - Diagrama fase-amplitud correspondiente a una dislocación de hélice paralela a las superficies de la lámina delgada. a) $nsx > 0$. b) $nsx < 0$.

s : parámetro de desviación.

$$n = \vec{g} \bullet \vec{b}$$

x : distancia entre la columna y la línea de dislocación.

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.IV.15 (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 que 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 curvatura de C_0 , es decir que la espiral tiende a C_0 desde su interior.

2) - $nsx < 0$. En este caso el argumento

$$2\pi sz + n \arctg z/x$$

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.IV.15 (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.IV.16 (a). Si la profundidad t_1 a la que se encuentra la dislocación aumenta, consecuentemente 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 período la longitud de la circunferencia $1/s$. Si el diagrama es como el de la Fig.IV.16 (b), se puede ver que la longitud M_1M_2 no cambia al variar t_1 (y t_2).

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 $nsx > 0$ una dislocación inclinada presentará una imagen que puede ser oscura o clara y que se repite cada vez que la profundidad de la dislocación aumenta en $1/s$, Fig.IV.16 (a). Este tipo de contraste se observa frecuentemente en láminas delgadas, Fig.IV.17.

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.IV.16 (a) o (b) es el parámetro s de desviación respecto de la posición de Bragg, es decir la orientación de la lámina.

Finalmente es necesario destacar que todos estos resultados han sido obtenidos a partir de un campo de desplazamientos calculados para un material isotrópico. Sin embargo la mayoría de los metales no son isotrópicos, y el valor de R correspondiente a una dislocación de hélice dado por (IV.21) es solo una aproximación. En una lámina delgada, además, la presencia de dos superficies

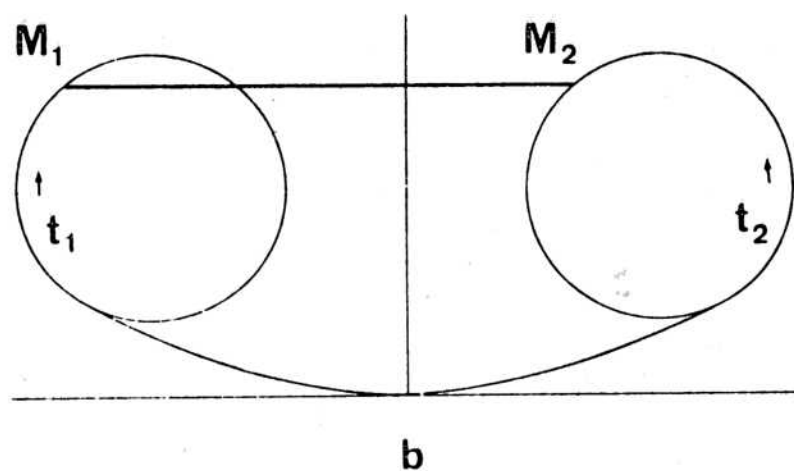
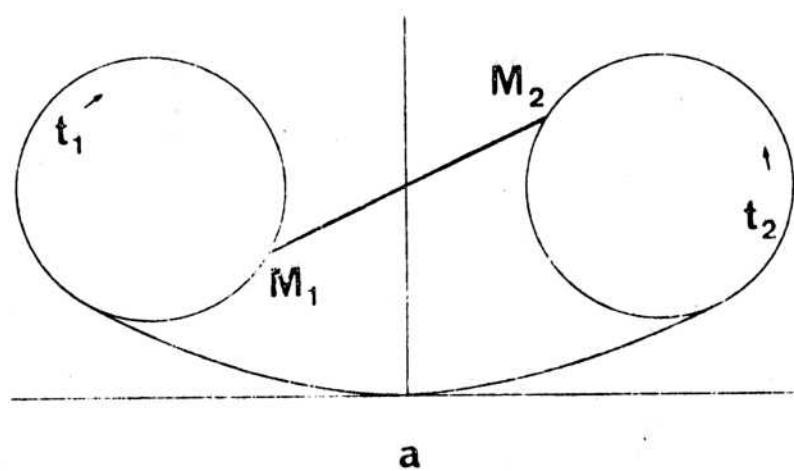


Fig.IV.16 - Diagrama fase-amplitud de una dislocación de hélice, caso $nsx < 0$. La amplitud difractada, segmento M_1M_2 , depende de los distintos parámetros n , s , x .

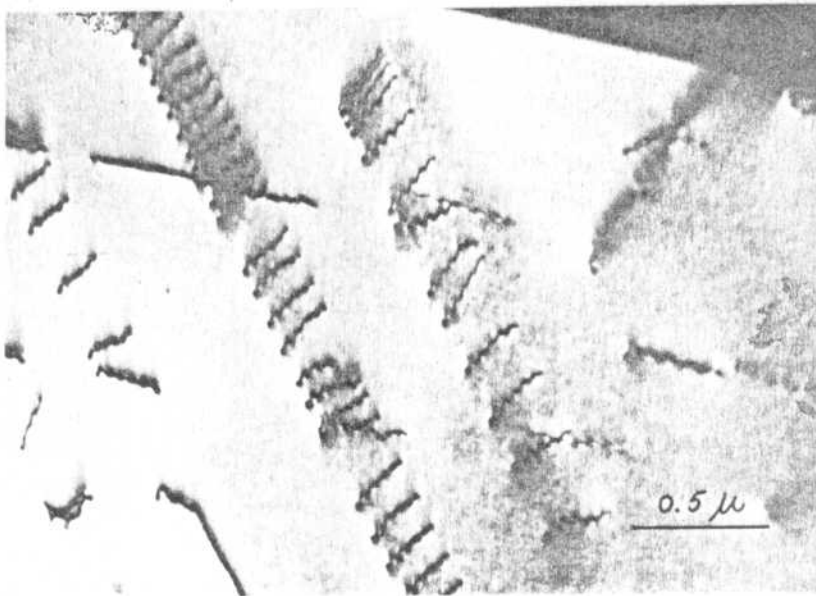


Fig.IV.17 - Dislocaciones en una lámina delgada de la aleación Inconel 718. Nótese el contraste oscilante de la imagen con la profundidad dentro de la lámina. Atención : M.S.Rosalén y R.A.Versaci [12].

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.

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

$$\vec{R} = \frac{1}{2\pi} \left[\vec{b}\theta + \vec{b}_c \frac{\sin 2\theta}{4} (1-\nu) + \vec{b} \times \vec{l} \left(\frac{1-\sin 2\theta}{2(1-\nu)} \log \frac{r}{b} + \frac{\cos 2\theta}{4(1-\nu)} \right) \right]$$

(IV.23)

donde :

- $\vec{b}$: vector de Burger de la dislocación
- $\vec{b}_c$: componente 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

$$\alpha = 2\pi \vec{g} \cdot \vec{R}$$

(IV.24)

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

$$\begin{aligned} \vec{g} \cdot \vec{b} &= 0 \\ \vec{g} \cdot \vec{b}_c &= 0 \\ \vec{g} \cdot (\vec{b} \times \vec{l}) &= 0 \end{aligned}$$

(IV.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. IV.18 (a) se reproducen los perfiles de intensidad calculados por Gevers [x] para una dislocación mixta con $n=1$, en función de distintos valores del parámetro

$$\eta = \sin \theta \sin \psi$$

donde

$$\theta = \text{ángulo entre la dislocación y su vector de Burger } \vec{b}$$

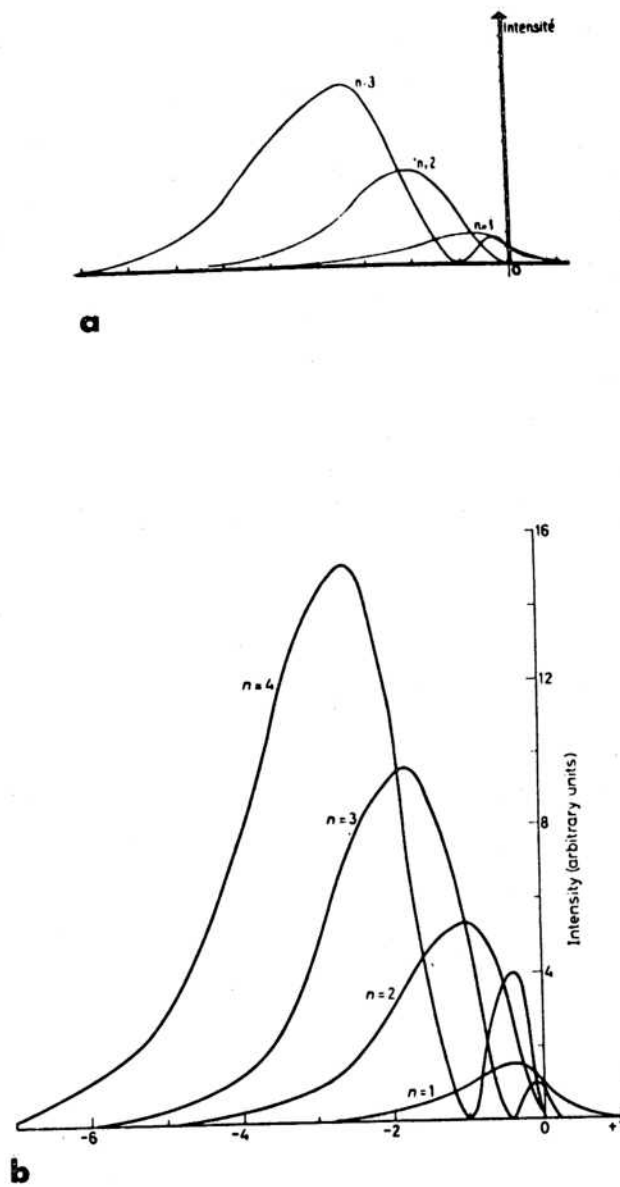


Fig.IV.18 - a) Perfiles de intensidad correspondientes a una dislocación mixta. b) Dislocación de borde, $n = g \bullet b$.

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.IV.18 (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 del correspondiente a una dislocación de hélice, comparar las Figs.IV.14 (b) y IV.18 (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 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 $\vec{g}$.

IV.3.3 - Contraste de Lazos de Dislocaciones

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

Para interpretar correctamente los resultados es fundamental ajustarse a una definición del vector de Burger de un lazo, referencia [x], Fig.IV.19. 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 [6] :

- 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 es tal que 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 (hkl) del espacio recíproco asociado con una familia de planos está dentro de la esfera de Ewald, y es negativo si se halla fuera de la misma.

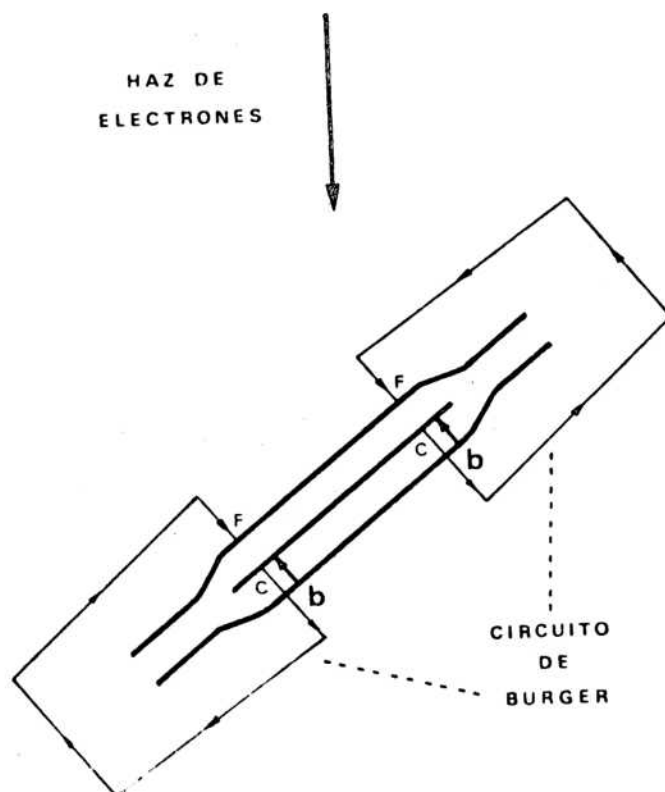


Fig.IV.19 - Vector de Burger de un lazo cerrado de dislocaciones. Para lazos de tipo intersticial, el vector de Burger forma un ángulo menor que 90° con un vector de sentido opuesto al del haz incidente.

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) Los 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 $\vec{g}$, presentan una imagen residual con una línea de contraste nulo normal a la dirección de $\vec{g}$.

e) De acuerdo a la definición de vector de Burger adoptada, la imagen es mayor que la proyección geométrica del lazo si la cantidad $(\vec{g} \cdot \vec{b})s > 0$ y está dentro de la proyección si es $(\vec{g} \cdot \vec{b})s < 0$, ver Fig.IV.20. 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, entonces varía el tamaño de la imagen del lazo observada en la pantalla del microscopio electrónico. Esto se puede hacer de dos maneras :

- Manteniendo constante el 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 último método, puesto que se mantienen así las condiciones óptimas de visibilidad de defectos.

Veremos a continuación como es posible determinar el vector de Burger $\vec{b}$ de lazos de dislocaciones, mediante una serie de experiencias sistemáticas de variación de contraste. En el trabajo que se ha tomado en este ejemplo [6] fue además posible 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, $s > 0$ 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 incidía normal a los planos [101] de las muestras. El diagrama de difracción correspondiente, plano (101) de la red recíproca del Al, Fig.IV.21, contiene las reflexiones $(\bar{1}11)$, (111) , (002) y (202) .

Las experiencias de visibilidad del contraste permitió clasificar a los lazos en cuatro grandes grupos :

- 1) Lazos visibles en la reflexiones (111) y (020) e invisibles en la reflexión $(\bar{1}11)$.

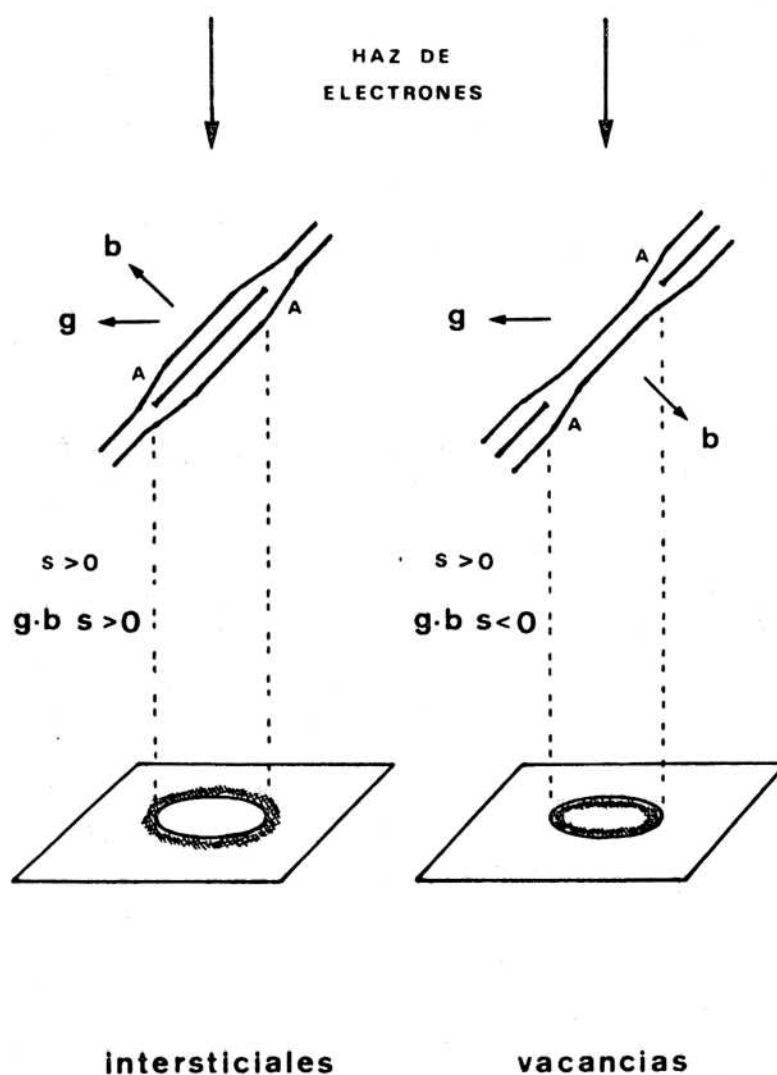


Fig.IV.20 - Análisis de la variación del producto $(\vec{g} \cdot \vec{b})s$ para lazos de dislocaciones. Cuando es $(\vec{g} \cdot \vec{b})s > 0$ la imagen electrónica del lazo es mayor que su proyección geométrica. las zonas indicadas con A son las que difractan fuertemente dando origen al contraste.

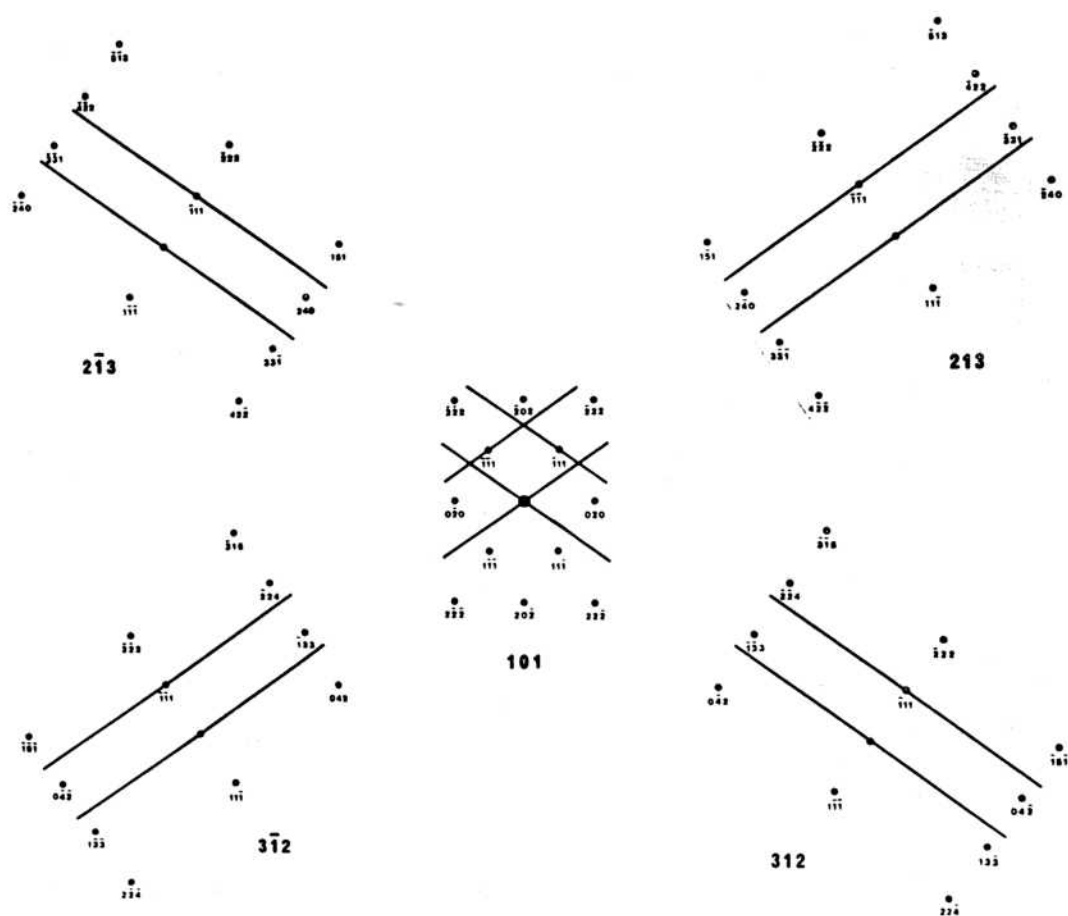


Fig.IV.21 - Diagramas de difracción de los polos del tipo $\langle 312 \rangle$ a los que se llega siguiendo las bandas de Kikuchi (111) y $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ a partir del polo $[101]$.

- 2) Lazos visibles en las reflexiones (111) y (020) e invisibles en la reflexión (111).
- 3) Lazos visibles en las reflexiones (111) y (111) e invisibles en la reflexión (020).
- 4) Lazos que presentan una imagen residual en las reflexiones (111), (111) 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

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

$$\vec{b}_2 = \pm \frac{1}{2} [1\bar{1}0]$$

efectivamente, para los vectores de reflexión $(\bar{1}11)$ 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 $(\bar{1}\bar{1}1)$ 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 $\vec{g} = (\bar{1}11)$ y $\vec{g} = (1\bar{1}\bar{1})$ manteniendo siempre $s > 0$. Se observó además 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.IV.22 presentan una imagen mayor en la reflexión (111) mientras que para los marcados con **B** el contraste era mayor en la reflexión opuesta (111). Entonces caben dos 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 naturaleza distinta.

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

Finalmente, para conocer la naturaleza 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 $\vec{g} = (111)$, debe ser necesariamente $(\vec{g} \cdot \vec{b}) > 0$ 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 $\mathbf{n} = [101]$, Fig.IV.21, 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 debidos 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 (111) hasta el polo [213], Fig.IV.21. En esta nueva orientación se repitieron las experiencias de cambio de signo de $(\mathbf{g} \cdot \mathbf{b})_s$ y las variaciones de contraste observadas fueron siempre las mismas. Como en este caso $\bar{\mathbf{n}} = [213]$ y además $\bar{\mathbf{n}} \cdot \bar{\mathbf{b}}_1 > 0$ los lazos son efectivamente de tipo intersticial.

Para los lazos del tipo **B** el diámetro del contraste es mayor en la reflexión $\bar{\mathbf{g}} = (111)$ y para que sea $\bar{\mathbf{g}} \cdot \bar{\mathbf{b}} > 0$ debe ser

$$\mathbf{b}_2 = \frac{1}{2} [110]$$

Las experiencias de cambio de signo de $(\bar{\mathbf{g}} \cdot \bar{\mathbf{b}})_s$ fueron repetidas en el polo [213] 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 (111) y (020) e invisibles en la reflexión (111) fueron analizados de la misma manera que los anteriores. Las experiencias de variación de contraste se efectuaron sobre el polo [312] siguiendo la banda de Kikuchi (111), Fig.IV.21. Los resultados obtenidos para ambos grupos se resumen en la Tabla IV.1, confirmándose la naturaleza intersticial de todos ellos.

3) Los lazos visibles en las reflexiones (111) y (111) e invisibles en la reflexión (020) requieren un análisis diferente de los casos anteriores. El único vector de Burger compatible con los criterios de visibilidad mencionados es

$$\bar{\mathbf{b}}_3 = \frac{1}{2} [101]$$

siendo el plano de hábito de estos lazos (101) 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 $(\bar{\mathbf{g}} \cdot \bar{\mathbf{b}})_s$ es necesario rotar la lámina hacia una orientación en la cual las imágenes de estos lazos tengan un diámetro apreciable.

En nuestro caso las observaciones se realizaron en los polos [213] y [312] siguiendo las bandas de Kikuchi (111) y (111) respectivamente, Fig.IV.21, y los datos obtenidos se resumen en la Tabla IV.2. Los lazos de este grupo son también de tipo intersticial. 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 (101) fueron observados en dos orientaciones distintas.

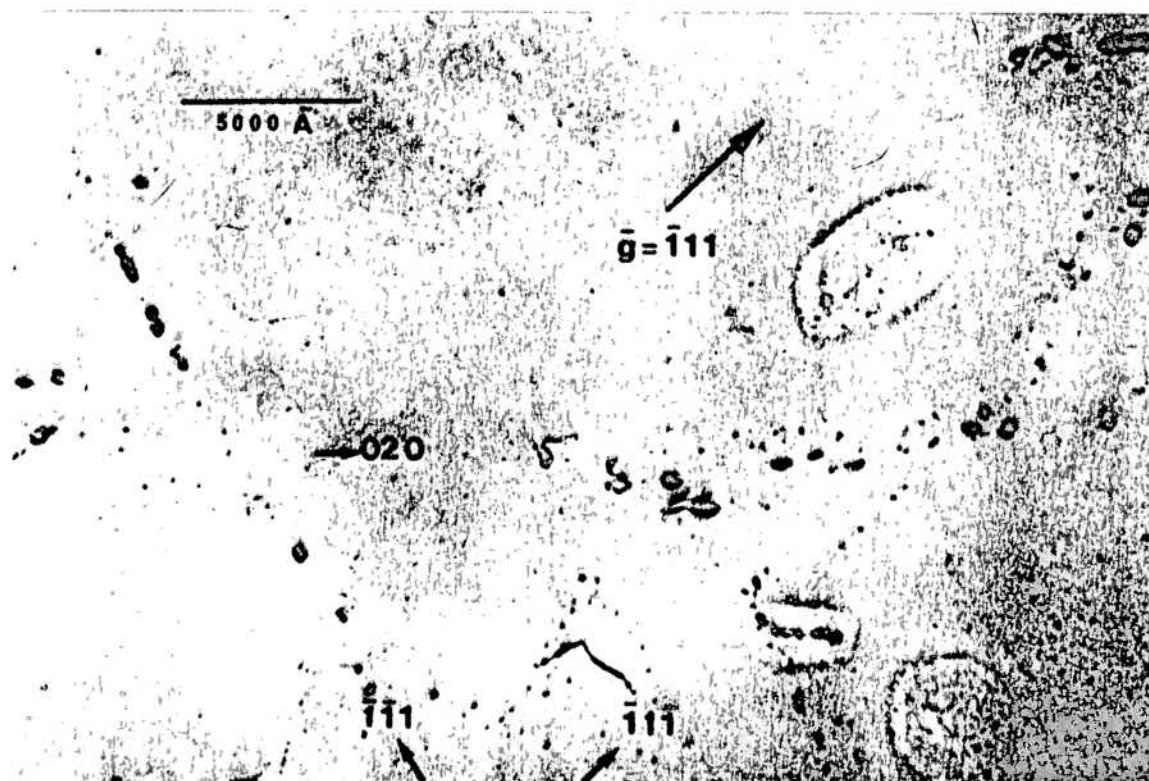


Fig.IV.22 - Micrografía de una lámina delgada de aluminio irradiado con neutrones, donde se observan los lazos de dislocaciones de tipo intersticial. Atención : A.A.Pochettino.

TABLA IV.1

Visible g.b = ± 1	Invisib g.b = 0	Posible b	Plano de hábito	(g.b)s > 0	b	n	n.b
$11\bar{1} 020$	$\bar{1}11$	$\pm \frac{1}{2}[011]$	(011)	$(\bar{1}\bar{1}1)A$	$\frac{1}{2}[011]$	$2\bar{1}3$	>0
		$\pm \frac{1}{2}[110]$	(110)	$(11\bar{1})B$	$\frac{1}{2}[110]$	213	>0
111 020	111	$\pm \frac{1}{2}[110]$	(110)	(111)	$\frac{1}{2}[110]$	312	>0
		$\pm \frac{1}{2}[011]$	(011)	(111)	$\frac{1}{2}[011]$	312	>0

TABLA IV.2

Lazos observados sobre la banda	En reflexiones	(g.b)s > 0	b	n	n.b
(111)	g = (111)	g = (111)	$\frac{1}{2}[101]$	213	>0
	g = (111)				
(111)	g = (111)	g = (111)	$\frac{1}{2}[101]$	312	>0
	g = (111)				

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 consecuencia de la convención adoptada para definir el vector de Burger de un lazo de dislocaciones. En efecto, el rotar la lámina hacia el polo [213] o el [312] siguiendo las bandas (111) y (111) 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 $\mathbf{n} \cdot \mathbf{b}$ es positivo. En consecuencia $\mathbf{b}$ 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 (111), (111) y (020). Estos lazos están situados sobre los planos (101) y en todos los casos es $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} > 0$. 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.

IV.4 - Imágenes 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 en microscopía electrónica. Un precipitado puede dar lugar a distintos tipos de contraste, según su profundidad en la lámina, tamaño, naturaleza o grado de 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 la distorsión que origina en la matriz. En el primer caso se altera 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.

IV.4.1 - Contraste de 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 $\mathbf{R}(\mathbf{r})$ producido por la

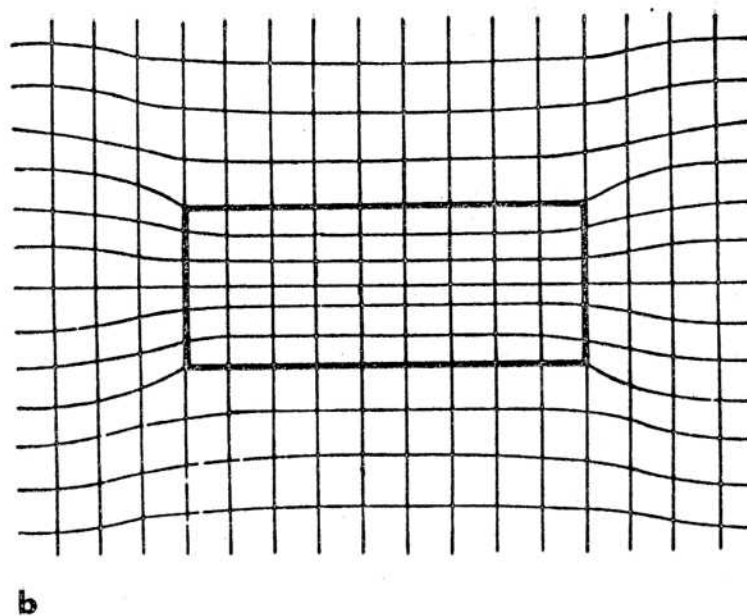
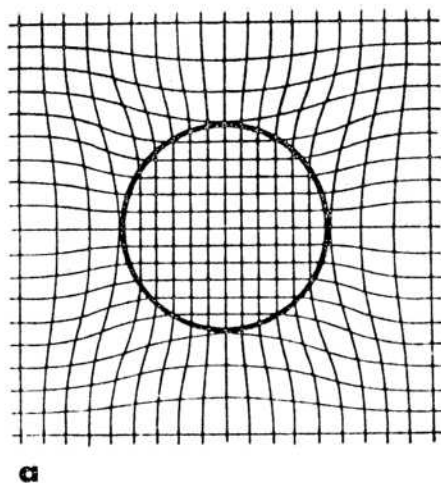


Fig.IV.23 - a) Esquema de un precipitado esférico coherente con la matriz. b) Precipitado coherente plano.

distorsión sobre las columnas de la lámina delgada introduce un desfase $\alpha(r) = 2\pi \vec{g} \cdot \vec{R}(r)$ que da origen a distintos efectos de contraste según las características particulares de las dos fases [7].

El caso más simple es el de un precipitado esférico de radio r_0 , Fig.IV.23 (a), cuyo campo radial de desplazamientos está dado por

$$\vec{R} = \frac{\epsilon r_0^3}{r^3} \vec{r} \quad \text{para } r > r_0$$

$$\vec{R} = \epsilon \vec{r} \quad \text{para } r < r_0$$
(IV.26)

donde el parámetro ϵ es tal que

$\epsilon > 0$ si el precipitado comprime la matriz

$\epsilon < 0$ si el precipitado dilata la matriz

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 de Ashby y Brown [7] conducen a los siguientes resultados :

- 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 $\zeta_{hkl}/2$ de las superficies libres de la lámina, las imágenes son anormalmente extendidas, y además asimétricas respecto de la línea de contraste nulo.
- Las imágenes son idénticas 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.IV.23 (b). Los cálculos de contraste se realizan suponiendo que el precipitado es un lazo de dislocaciones de vector de Burger fraccionario $\vec{b}_p = \epsilon \vec{t}$ donde $\vec{t}$ es el espesor de la lámina. Los resultados principales se pueden resumir de la siguiente manera :

- Discos perpendiculares al plano de la lámina 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 .

IV.4.2 - Contraste de 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 debida 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 (franjas similares a las producidas por una falla de apilamiento).
- Contraste en la interfase.

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

$$\xi_g \Delta t \left[\frac{1}{\xi_g^p} - \frac{1}{\xi_g} \right] \quad (\text{IV.27})$$

donde Δt es el espesor del precipitado, y ξ_g^p y ξ_g son las distancias de extinción del precipitado y la matriz. Se puede demostrar además que para partículas pequeñas ($\Delta t < \xi_g$) la variación de la intensidad está dada por

$$\Delta I = -\pi \Delta t \left[\frac{1}{\xi_g^p} - \frac{1}{\xi_g} \right] \frac{\sin 2\pi t}{\xi_g} \quad (\text{IV.28})$$

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 que puede ser oscuro o claro. Este contraste aparece en general en



Fig.IV.24 - Imagen de precipitados de Ni_3Nb en un Acero Inconel 718.
Atención : M.S.Rosalén y R.A.Versaci.

precipitados grandes ($> 1\mu$) y es el más simple de interpretar. En el diagrama de difracción se observa 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 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 sentidos opuestos 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 de desplazamiento, que se suelen denominar franjas de "tipo de 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 fcc.

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 correspondientes a una distancia de extinción

$$\xi_g^s = \frac{\xi_g}{(1 + s^2 \xi_g^2)^{\frac{1}{2}}} \quad (\text{IV.29})$$

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.IV.24, [12]. 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. 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, 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 $n\zeta_g$ (n : entero, ζ_g :

distancia de extinción) aparece más blanca que el fondo. Por el contrario, si la misma cavidad está ubicada en una zona de espesor $n\zeta_g + \Delta r$, el espesor local es en realidad $n\zeta_g$ y aparece entonces negra en un fondo más claro. Este tipo de contraste se observa también en láminas delgadas con micropicaduras en su superficie debidas a un pulido electrolítico incorrecto.

IV.5 - Imágenes Periódicas

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. Analizaremos a continuación los dos tipos de franjas que suelen aparecer en microscopía electrónica de láminas delgadas cristalinas.

IV.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

$$A = e^{2\pi i \vec{k} \cdot \vec{r}} + A_g e^{2\pi i \vec{k}' \cdot \vec{r}}$$

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

$$I = |A|^2 = |1 + R e^{2\pi i \vec{g} \cdot \vec{r} + i\delta}|^2 = 1 + R^2 + 2R \cos(2\pi \vec{g} \cdot \vec{r} + \delta)$$

(IV.30)

Recordando la expresión de la amplitud de la onda difractada

$$A_g = \frac{F}{r} \frac{\sin \pi s t}{\pi s t} e^{-i\pi s t}$$

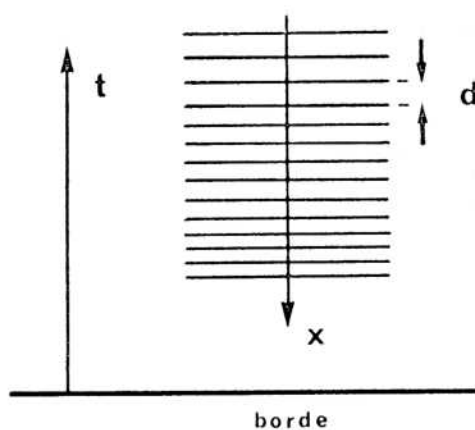
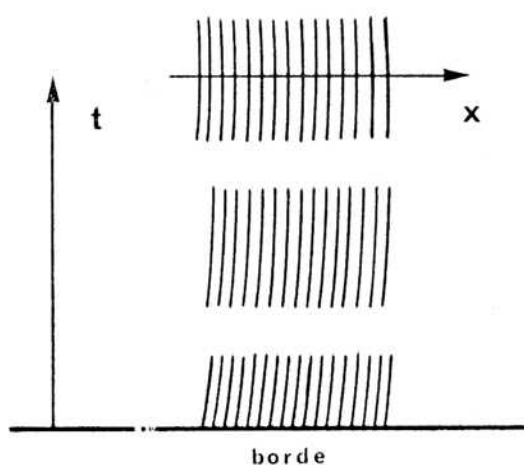


Fig.IV.25 - Variación del espaciado d en la resolución directa de planos cristalinos, con la geometría de la lámina delgada.

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 .

y omitiendo los factores F y r , entonces

$$R = \frac{\sin \pi s t}{\pi s t}, \quad \delta = -\pi s t$$

Como el vector g es prácticamente perpendicular al haz incidente, se puede elegir una cierta coordenada x paralela a g sobre un plano normal al haz, de tal manera que

$$2\pi g \cdot r = 2\pi g x = 2\pi \frac{x}{d}$$

donde d es el espaciado cristalino representado por el vector g . La intensidad total (IV.30) se expresa finalmente

$$I = 1 + R^2 + 2R \cos\left(2\pi \frac{x}{d} - \pi s t\right) \quad (IV.31)$$

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 , que de cierta manera significan una "resolución" directa de los planos cristalinos. Esta imagen periódica se obtiene si la imagen es formada por el haz directo más 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

$$\pi s t = n\pi \quad \text{es} \quad R = 0$$

y desaparece la modulación. Por el contrario para

$$\pi s t = n\pi + \pi/2 \quad \text{es} \quad R : \text{máximo}$$

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.IV,25 (a), y perpendiculares al 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, Fig.IV.25 (b), entonces t varía con x y el espaciado de las franjas pasa de d a un cierto valor que depende de la variación local de t y x .

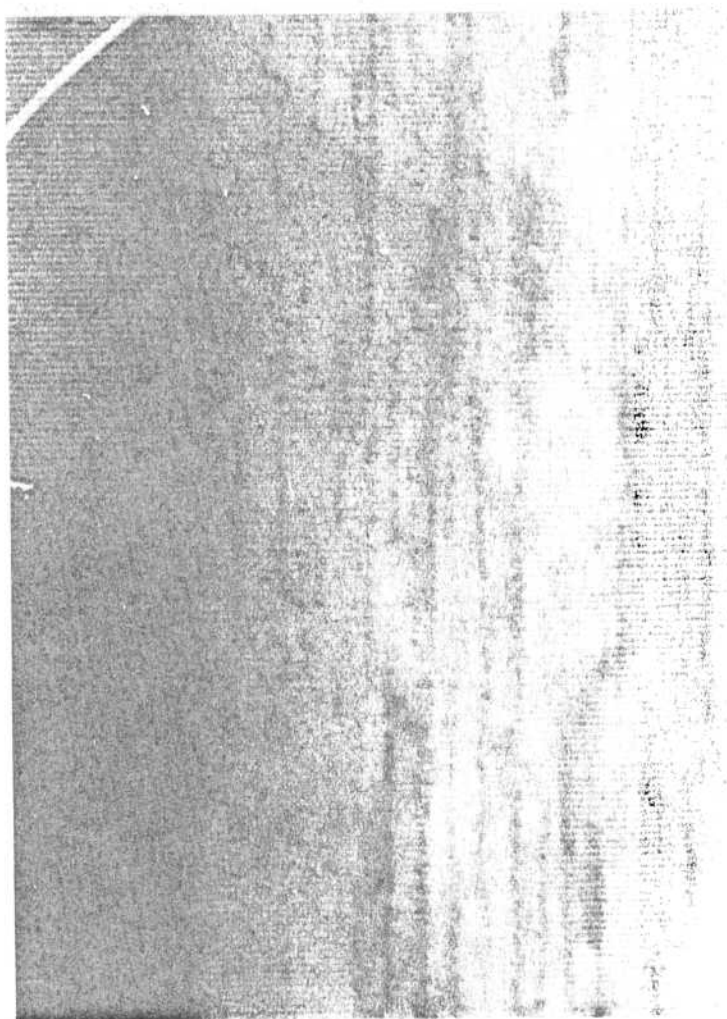


Fig.IV.26 - Resolución directa de planos cristalinos de la enzima denominada catalasa.

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 $1\text{\AA}$ con instrumentos cuya resolución punto a punto es del orden de los $4\text{\AA}$. En la Fig.IV.26 se muestra una imagen de planos cristalinos separados por una distancia de $82.2\text{\AA}$ correspondientes a la enzima denominada "catalasa".

IV.5.2 - Resolución Indirecta. 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 Fig.IV.27 se muestra una analogía óptica que representa la superposición de dos reticulados distintos. En la Fig.IV.27 (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

$$D = \frac{d_1 d_2}{|d_1 - d_2|} \quad (\text{IV.32})$$

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 Fig.IV.27 (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

$$D = \frac{d}{2 \sin \frac{\alpha}{2}} \quad (\text{IV.33})$$

que normalmente se puede aproximar por

$$D = \frac{d}{\alpha}$$

Se puede definir un factor de magnificación de Moiré dado por

$$M = \frac{D}{d}$$

Para diagramas de rotación es

$$M = \frac{1}{\alpha}$$

mientras que para diagramas de Moiré paralelos es

$$M = \frac{d}{|d_1 - d_2|}$$

si se supone que

$$d_1 \approx d_2 \approx d$$

La superposición de dos reticulados de diferente espaciado, rotados ligeramente entre si en un ángulo α da origen a los diagramas de Moiré mixtos

$$D \approx \frac{d_1 d_2}{[(d_1 - d_2)^2 + d_1 d_2 \alpha^2]^{\frac{1}{2}}}$$

Las analogías ópticas de la Fig.IV.27 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 ambas puedan formarse. Puede demostrarse que la condición para que se forme un diagrama de Moiré es que contribuya a la imagen un haz que ha sido difractado una vez por las dos familias de planos cristalinos. Supongamos que **P** sea el haz difractado por la familia de planos de espaciado d_1 del cristal superior, y que éste a su vez es difractado por el cristal inferior por planos de espaciado d_2 , Fig.IV.28 (a), dando 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 es

$$OP = \frac{1}{d_1} \quad OQ = \frac{1}{d_2}$$

resulta inmediatamente

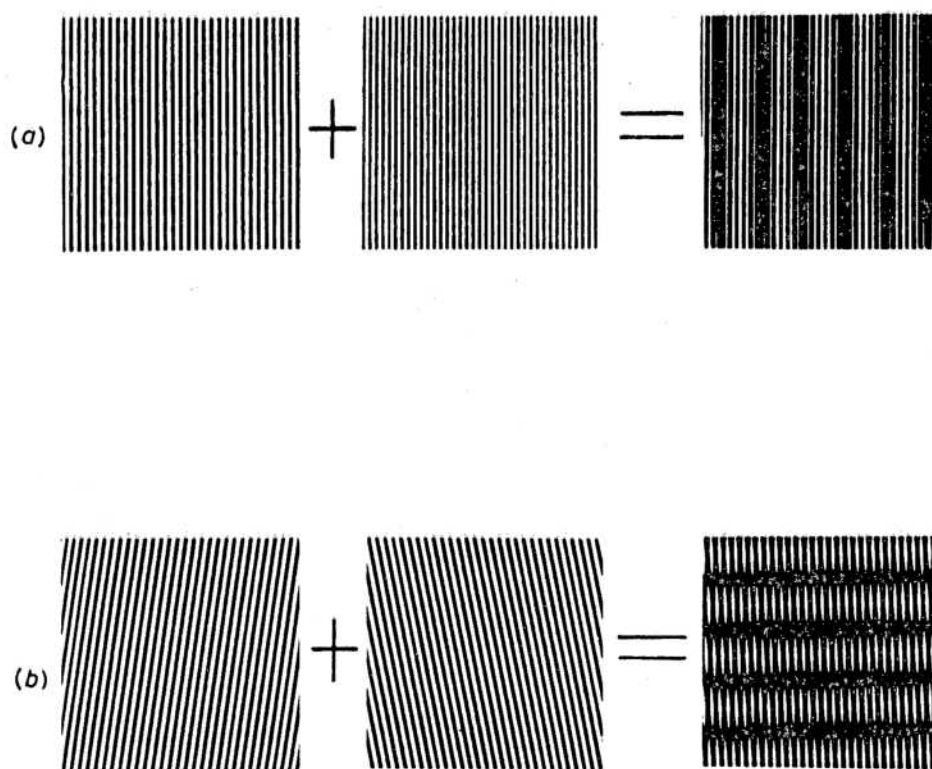


Fig.IV.27 - Analogía óptica de la formación de franjas de Moiré a partir de la superposición de dos sistemas de franjas periódicas. a) Diagramas de Moiré paralelos. b) Diagramas de rotación.

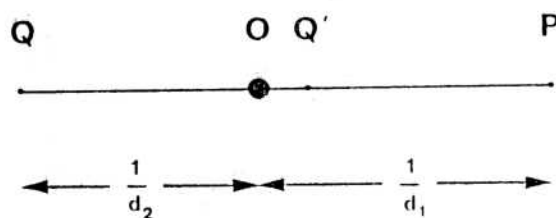
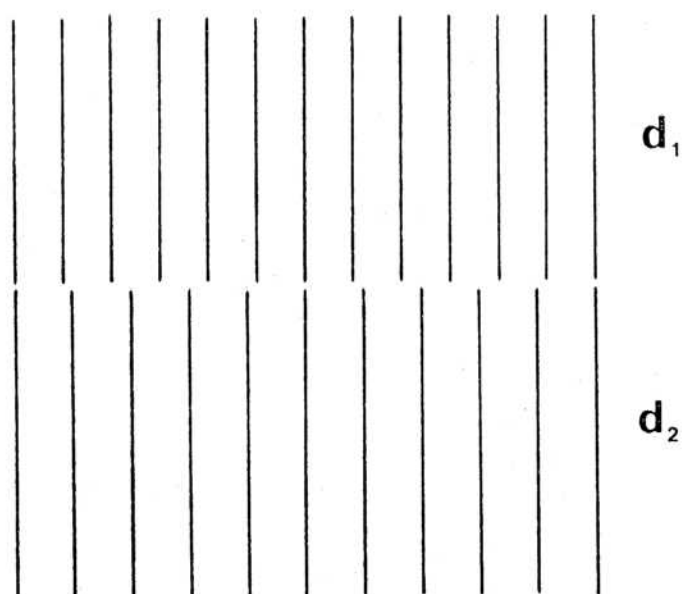


Fig.IV.28 - a) Esquema de formación de franjas de Moiré por la superposición de dos cristales de espaciados diferentes d_1 y d_2 . b) Si P es el haz difractado por el cristal inferior, se origina el haz Q' en el diagrama de difracción. Este corresponde a un haz difractado por una familia de espaciado $d_1 d_2 / d_2 - d_1$ que es el espaciado de las franjas de Moiré.

$$OQ' = OP - OQ = OP - OQ = \frac{1}{d_1} - \frac{1}{d_2} = \frac{d_2 - d_1}{d_1 d_2}$$

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, Fig.IV.29 (a). El punto P corresponde a la familia de planos de espaciado d del 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

$$OQ' = \frac{1}{d} 2 \sin \frac{\alpha}{2}$$

El punto Q' corresponde a la difracción por una familia ficticia de planos de espaciado

$$D = \frac{d}{2 \sin \frac{\alpha}{2}}$$

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 esta doble difracción.

Consideremos los diagramas de μ oiré paralelos. En la Fig.IV.29 (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 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.IV.29 (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 se observa una lámina 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 Fig.IV.30 se muestra una micrografía electrónica de una lámina delgada de la aleación Zr-2.5%Nb en la cual se observan franjas de Moiré originadas por la presencia de precipitados de una segunda fase en la matriz de Zr.

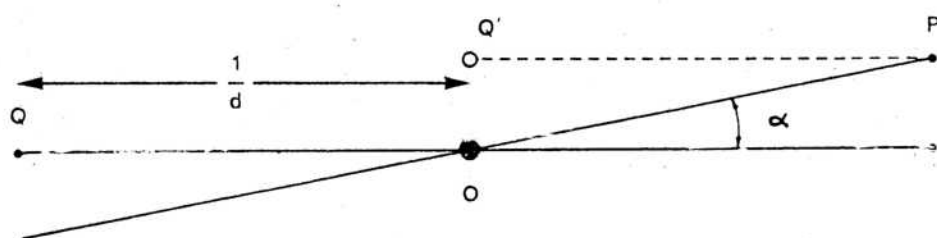
IV.5.3 - Efecto de las Imperfecciones Cristalinas

Consideraremos 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.IV.31. 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

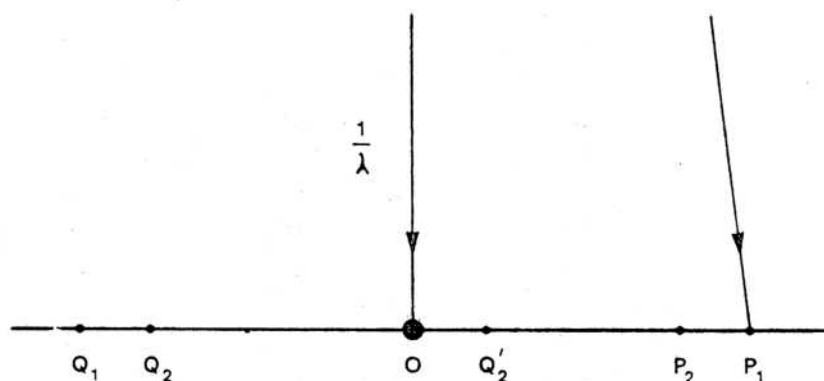
$$\omega = \frac{Q''Q'}{OQ'} = \frac{\frac{1}{d_2} \theta}{\frac{|d_2 - d_1|}{d_1 d_2}} = \frac{d_1}{|d_1 - d_2|} \theta = M \theta$$

Es decir que la rotación de las franjas resulta también magnificada por el mismo factor de magnificación de Moiré M . Las franjas 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. 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 entonces la resolución directa como una proyección de planos atómicos.



a



b

Fig.IV.29 - a) Esquema de formación de franjas de Moiré de rotación. El haz **P** corresponde a una reflexión del cristal superior. Este es a su vez difractado por los planos de igual espaciado del cristal inferior dando origen al haz **Q'**.

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 **P₁**, es altamente probable que contenga también al haz doblemente difractado **Q'₂**.

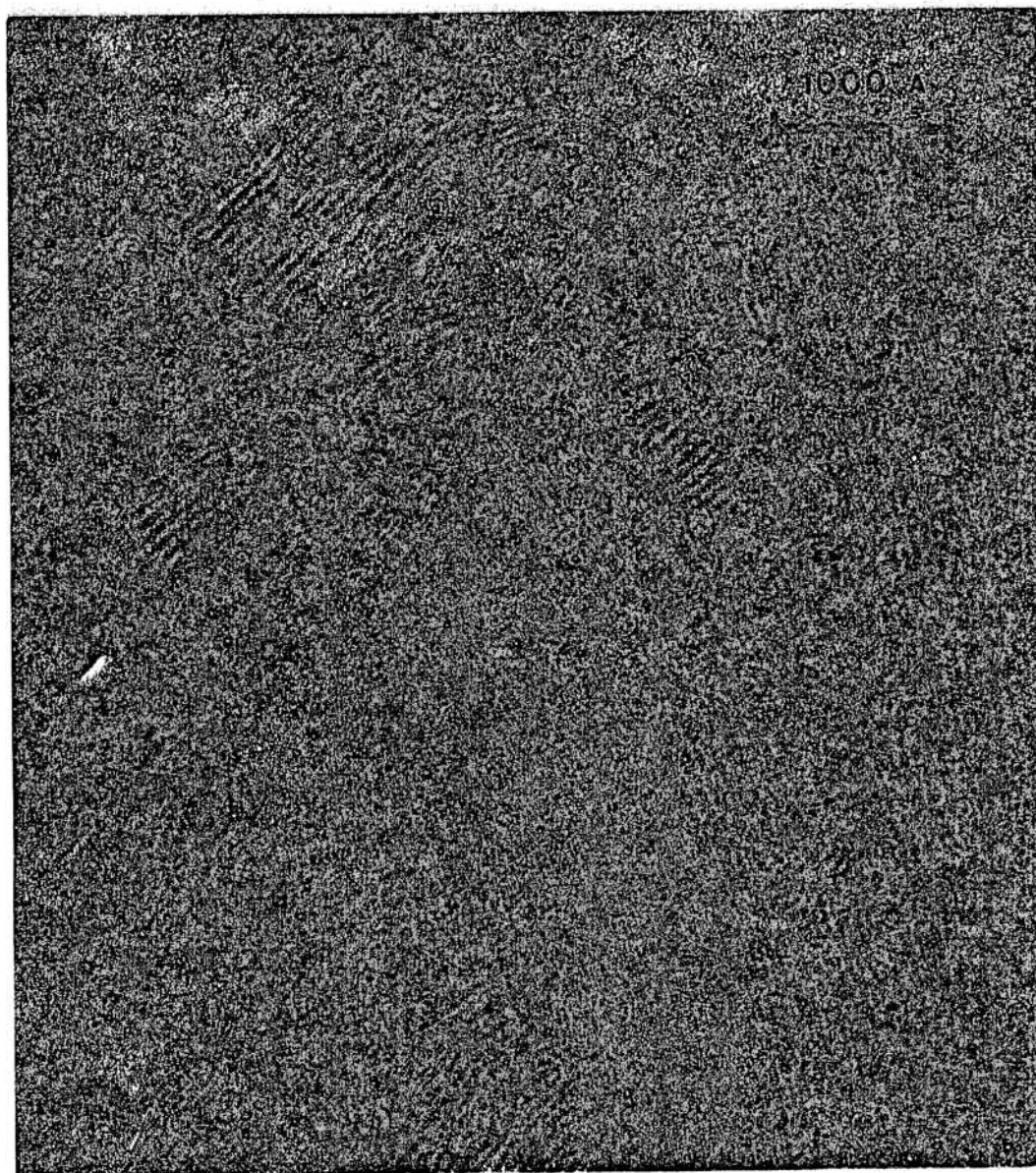


Fig.IV.30 - Franjas de Moiré en precipitados de una aleación Zr-Nb templada y recocida. Magnificación : 70000 x. Atención : R.A.Versaci.

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

$$N = g \cdot b$$

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 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 no puede indicar el 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 N de franjas es cero, es decir $g \cdot b = 0$. 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. IV.32 (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 tiene signo opuesto.

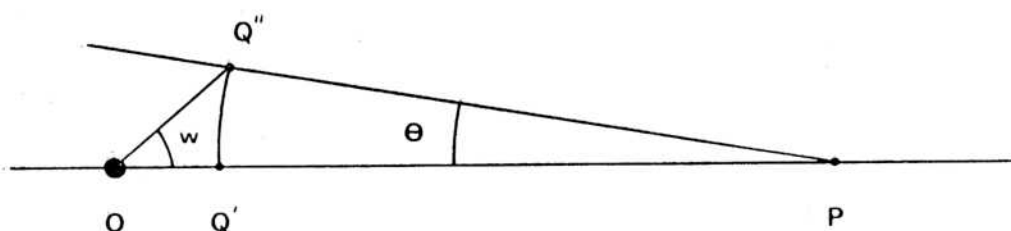


Fig.IV.31 - Efecto de una pequeña rotación θ de uno de los reticulados que da origen al diagrama de Moiré paralelo. El punto Q' producido por doble difracción pasa a una nueva posición Q'' rotada en un ángulo $\omega = M\theta$. Las franjas de Moiré resultan así muy sensibles a pequeñas distorsiones cristalinas, permitiendo detectar la presencia de dislocaciones y otros defectos.

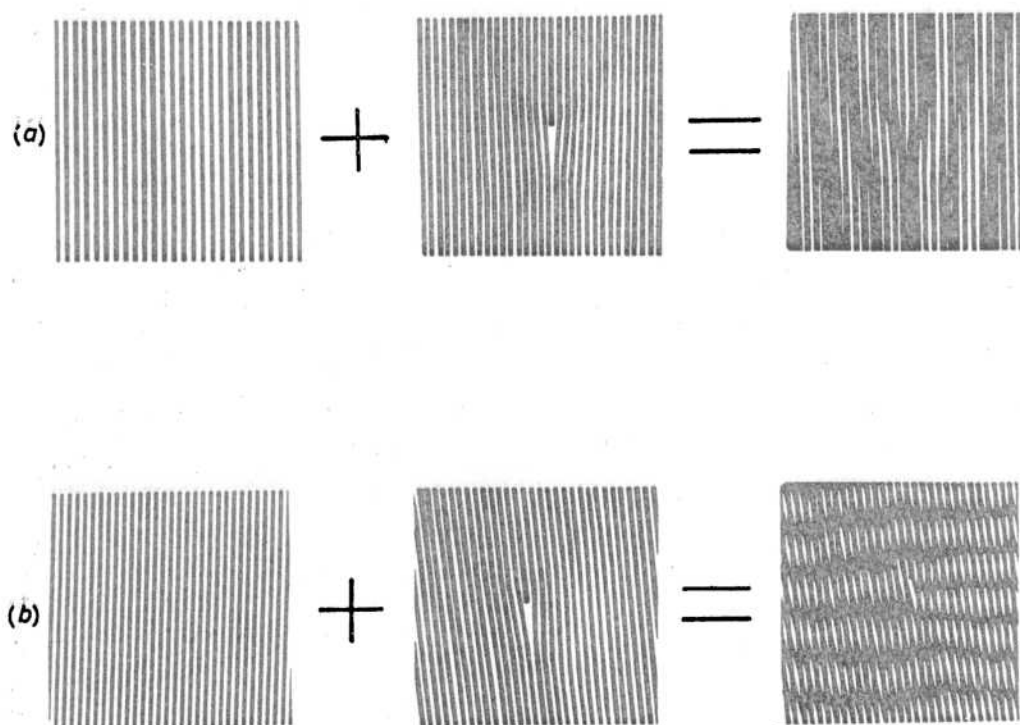


Fig.IV.32 - Analogía óptica que muestra como puede hacerse visible una dislocación de borde por medio de las franjas de Moiré. a) Diagramas paralelos. b) Diagramas de rotación.

- 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 las mismas consideraciones, excepto que N puede ser un número fraccionario.

IV.6 - Imágenes de Campo Oscuro

Las observaciones en campo oscuro constituyen una de las técnicas usuales de la microscopía electrónica de láminas delgadas. Una micrografía de campo oscuro se obtiene desplazando la apertura de objetivo de tal manera que uno de los haces difractados forma la imagen electrónica.

En la Fig.IV.33 se muestra esquemáticamente la marcha de rayos en la lente objetivo. La apertura de objetivo está situada en el plano imagen de esta primer lente. Para obtener una imagen de campo oscuro, se selecciona uno de los haces difractados desplazando la apertura de objetivo y operando luego el microscopio de manera convencional. Para evitar imágenes astigmáticas, el sistema de iluminación se inclina de tal manera que el haz difractado elegido pase por el eje óptico del instrumento. Con este ajuste, la resolución de la imagen de campo oscuro es igual que la de campo claro. Los microscopios electrónicos actuales poseen dispositivos basados en bobinas deflectoras para variar la inclinación del haz incidente sobre la muestra mediante controles externos.

Dado que una imagen de campo oscuro revela aquellas partes de la muestra que contribuyen a formar el haz difractado elegido, las técnicas de campo oscuro permiten determinar el origen de un haz difractado dado. Esta información es 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 dimensiones pequeñas que no permiten obtener el diagrama de difracción individual. Cada precipitado da origen al diagrama particular correspondiente a su orientación y el diagrama resultante es en general difícil de interpretar. Pero mediante las técnicas de campo oscuro pueden identificarse los precipitados particulares que dan origen a cada haz difractado, y así un diagrama complejo puede separarse en sus componentes originales. Una vez interpretados cada uno de estos diagramas individuales, puede incluso determinarse la orientación relativa de los precipitados dentro de la matriz. El contraste producido por las distorsiones cristalinas (dislocaciones, precipitados) depende fuertemente de las condiciones de difracción (orientación) de la muestra. Sin embargo, no siempre es fácil determinar las condiciones de difracción bajo las cuales se obtiene un determinado contraste en una imagen de campo claro. Aún en la aproximación de dos haces siempre existen reflexiones que, aunque débilmente excitadas, influyen de alguna manera sobre la imagen.

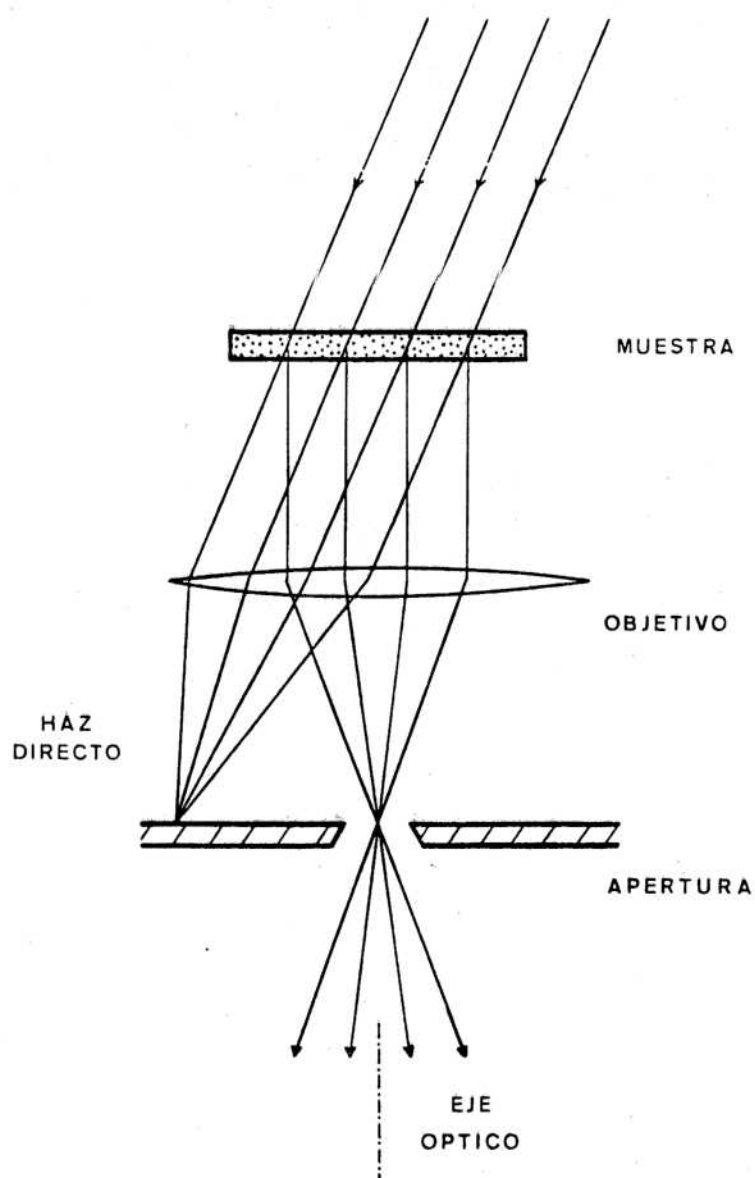


Fig.IV.33 - Obtención de una imagen de campo oscuro. La apertura de objetivo se desplaza sobre el plano focal imagen para obtener la imagen correspondiente a un haz difractado. El haz incidente sobre la muestra se inclina para que este haz difractado sea paralelo al eje óptico del microscopio.

Estas dificultades no aparecen en campo oscuro, pues la reflexión que opera es única y está bien definida. Así puede determinarse el contraste debido a una única reflexión cristalina. Este tipo de micrografías se utiliza en la determinación de vectores de Burger de dislocaciones.

Por otro lado, como una imagen de campo oscuro está controlada por un solo haz difractado, su contraste es mayor que el de la imagen de campo claro. Esta última depende de los distintos haces que puedan estar presentes. Por lo tanto esta es otra de las ventajas de las técnicas de campo oscuro, pues permiten observar defectos que presentan bajo contraste en campo claro.

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, polimerizan y quedan sobre la superficie de la muestra formando 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 un mejor contraste.

IV.7 - Técnicas Avanzadas de Microscopía Electrónica

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 Al o Cu de hasta 0.5μ de espesor. Este valor es mucho menor en el caso de metales más pesados. 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 disponer de haces electrónicos de mayor penetración.

Un microscopio electrónico de alto voltaje es similar en principio a un instrumento convencional. La fuente de alta tensión debe estar convenientemente aislada de la columna. Por ejemplo, en el modelo comercial de Jeol, la fuente de alta tensión se encierra en un recipiente con gas a alta presión. El sistema de lentes es similar al de un instrumento de 100 kV, aunque las bobinas son más voluminosas puesto que se necesitan campos magnéticos más intensos para desviar un haz de electrones de mayor energía. Los controles son 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. Las técnicas de microscopía de alto voltaje han sido muy utilizadas en el estudio de dislocaciones, daño por radiación, así como en el estudio de material biológico.

Holografía Electrónica - La nueva generación de microscopios electrónicos con cátodo de emisión de campo y alta resolución, del tipo del Philips CM12F, ha permitido un rápido desarrollo de la holografía electrónica, y ha posibilitado su uso para los microscopistas que disponen actualmente de este tipo de instrumentos.

En la Fig.IV.34 se esquematiza el principio de obtención de un holograma en un microscopio electrónico, según el trabajo de Joy y col. [13]. Una fracción del orden del 30% del haz incidente atraviesa la muestra (Señal) mientras que el resto pasa directamente a través de la columna (Haz de Referencia). Las dos componentes son luego deflectadas por un Bi-Prisma hacia una región en la cual interfieren y forman un diagrama de interferencia que es precisamente el holograma electrónico. Actualmente es posible observar espaciados interplanares del orden de 1 a 2 Å directamente sobre la pantalla fluorescente operando el microscopio a una magnificación del orden de los 300000x, o mediante sistemas gráficos de resolución mayor que 1024 x 1024 pixels.

En pocos casos el holograma proporciona información directa. Tal es el caso de las imágenes de dominios ferroeléctricos en el BaTiO_3 , o de las imágenes de planos separados por 0.9 Å en el grafito. Normalmente la información obtenida en un holograma debe ser reconstruida para poder ser fácilmente interpretada. Este proceso se puede realizar rápidamente en una PC de laboratorio. Las técnicas de holografía electrónica se están comenzando a utilizar recién ahora (Año 1995) a problemas concretos de la ciencia de los materiales.

Se han comenzado a desarrollar también técnicas de holografía electrónica que se pueden implementar en microscopios convencionales que no disponen de cátodo de emisión de campo, ver referencia [14]. Estas técnicas se basan en la interferencia del haz transmitido y de un haz difractado por una lámina delgada monocristalina, de forma análoga a la obtención de imágenes periódicas por resolución directa de planos cristalinos, sección IV.5.1.

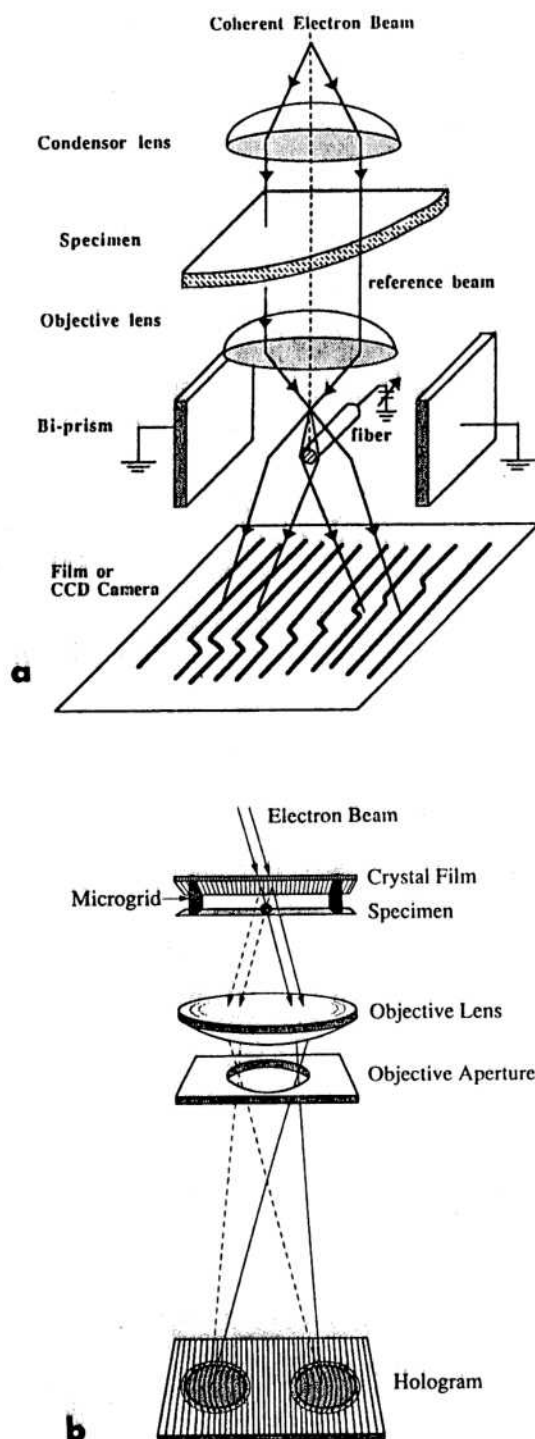


Fig.IV.34 - a) Principio de formación de un holograma electrónico en un microscopio de última generación con un bi-prisma, referencia [13] D.C.Joy y col.
 b) Obtención de un holograma electrónico en un microscopio electrónico convencional, referencia [14] Q.Ru y col.

REFERENCIAS

- 1 - A.Howie, P.B.Hirsch, R.B.Nicholson, D.W.Pashley, M.J.Whelan, *Electron Microscopy of Thin Crystals*, Butterworths, 1965.
- 2 - A.F.Bonfiglioli, M.Ipohorski, R.J.Acuña, *Elementos de Cristalografía y Difracción de Rayos X*, PMM/A-221 y PMM/A-246, Buenos Aires, 1974.
- 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 - A.A.Pochettino and M.Ipohorski, *Characterization of Dislocation Loops in Neutron Irradiated Al-0.1 %Mg by Transmission Electron Microscopy*, *Ultramicroscopy* 3 (1978) 61.
- 7 - M.F.Ashby y L.M.Brown, *Phil.Mag.*8 (1963) 1083.
- 8 - A.A.Pochettino y M.Ipohorski, *Problemas Típicos de Microscopía Electrónica*, PMM/A-157, CNEA, Buenos Aires, 1974.
- 9 - L.Reimer, *Transmission Electron Microscopy*, Springer Series in Optical Sciences, Vol.36, Springer Verlag, 1984.
- 10- R.A.Versaci, *Microscopía Electrónica Analítica*, PMTM/A-24, Buenos Aires, 1987.
- 11- M.Ipohorski y R.A.Versaci, *Técnicas Avanzadas de Microscopía Electrónica*, PMTM-A/104, Depto.Materiales, CNEA, Buenos Aires, 1990.
- 12- M.S.Rosalén, *Precipitación en las Aleaciones Inconel 718 e Inconel 713 C*, Tesis de Licenciatura, FCEN, UBA, 1991.
- 13- D.C.Joy, Y.S.Zhang, X.Zhang, T.Hashimoto, R.D.Bunn, L.Allard, T.A.Nolan, *Practical Aspects of Electron Holography*, *Ultramicroscopy* 51 (1993) 1-14.
- 14- Q.Ru, N.Osakabe, J.Endo, A.Tonomura, *Electron Holography in a Non-Biprism Transmission Electron Microscope*, *Ultramicroscopy* 53 (1994) 1-7.