

CONDUCTIVIDAD ELECTRICA EN MUESTRAS DELBADAS DE HIELO

Jorge M. Caranti y Miguel A. Re

Grupo de Física de la Atmósfera
Facultad de Matemática Astronomía y Física
Universidad Nacional de Córdoba
Córdoba, República Argentina

En el presente las propiedades físicas de la superficie del hielo no son completamente conocidas. En este trabajo se ha diseñado una experiencia para estudiar su comportamiento eléctrico minimizando las contribuciones del volumen. A tal fin se usó un portamuestras de cuatro terminales que permite muestras de 20mmx20mm de área útil y espesor variable.

La electrónica asociada que se diseñó permite medir directamente las componentes real e imaginaria de la corriente y deducir las respectivas componentes de la conductividad.

Para el preparado de las muestras se crecen monocristales por el método de Jaccard y se cortan al tamaño y espesor deseado determinando el plano cristalino por medio de réplicas.

A la muestra se le aplica un voltaje alterno y se mide la corriente que la atraviesa. A diferencia del comportamiento volumétrico no se observa una relajación según el modelo de Debye. La corriente es principalmente real y presenta un crecimiento monótono con la frecuencia existiendo un cambio en la pendiente a 1khz. La dependencia con la temperatura sigue una ley de Arrhenius con una energía de activación cercana a 1eV.

Nowadays the physical properties of ice surface are not completely known. In the present work an experience has been carried out to study its electrical behaviour minimizing the bulk contribution. With that purpose a sample holder admitting samples with work area of 20mmx20mm and variable thickness has been used.

The necessary electronic equipment was developed in order to measure the real and imaginary contributions to the current and the respective components of conductivity separately.

To prepare the samples, single-crystals of ice were grown following Jaccard's method and they were cut according to the size and thickness desired. The crystal plane was determined by means of etch pits in Formvar replicas.

An alternate voltage was applied to the sample and the current across it was measured. Unlike bulk behaviour a relaxation was not observed, as predicted by Debye's model.

The current was mainly real and showed a monotonous growth with frequency. A change was observed in the rate of growth at 1khz too. The temperature dependence fitted an Arrhenius law with an activation energy near 1eV.

1. ANTECEDENTES

1.1 Fenómenos en que interviene la superficie del hielo

El hielo presenta algunas propiedades que indican que su comportamiento superficial es diferente del volumétrico. Algunos aspectos de interés atmosférico son: la alta adhesión que presenta el hielo, su crecimiento por fase vapor con un peculiar cambio de hábito cristalino además de singularidades en propiedades mecánicas y ópticas.

En particular, en electrificación de nubes la fase sólida tiene una contribución preponderante. La evidencia experimental indica que no es el volumen el responsable de la separación de carga.

1.2 Modelo vigente

Hasta el presente sólo se cuenta con un modelo semicuantitativo (Fletcher 1968). El mismo propone que la superficie presenta una estructura cristalina desordenada que permite el ordenamiento de los dipolos moleculares del agua. Este desorden se produce en una transición gradual y en una capa de espesor aproximado de 20Å . Asimismo el modelo predice un salto de potencial en la superficie de aproximadamente 1eV .

Las predicciones del modelo no se ajustan en un todo a la realidad. Hay evidencia de que la capa superficial puede tener un espesor mayor y mediciones del cambio de potencial superficial muestran mayores valores del mismo.

2. EXPERIENCIA

2.1 Dispositivo experimental

Los requerimientos de la experiencia hacen conveniente el uso de muestras con una alta relación superficie volumen. El dispositivo utilizado se ilustra en la figural.

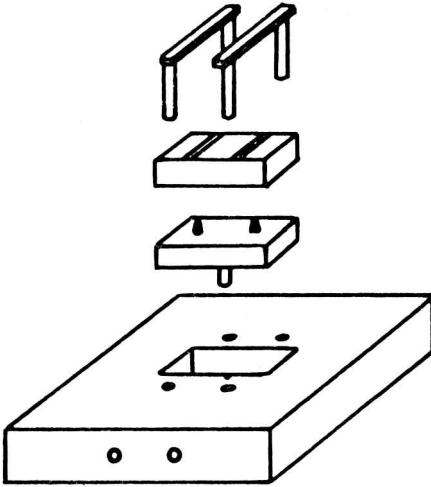


Fig. 1: Detalle del portamuestras usado en la experiencia.

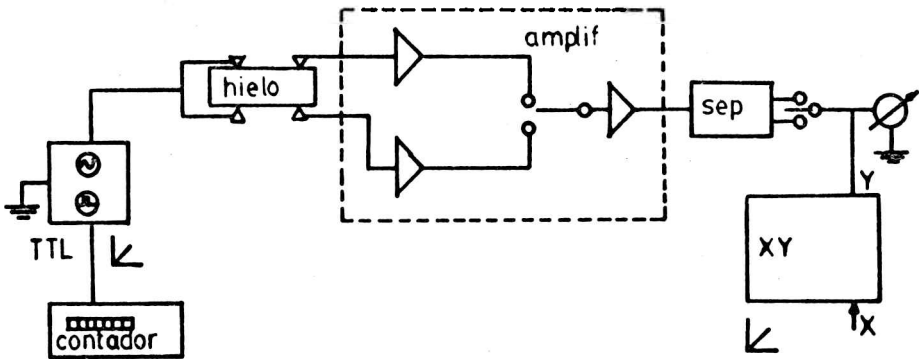


Fig. 2: Diagrama en bloque del conexionado general de la experiencia.

El soporte y el portamuestras encajan uno sobre otro y ambos se colocan en el orificio de un bloque de acrílico. Este último tiene a su vez perforaciones por las que deslizan los electrodos superiores que coinciden en su posicionamiento con los del portamuestras cuando este se ubica en la cavidad. Un electrodo superior está conectado eléctricamente con el inferior correspondiente, teniendo conexiones separadas los dos restantes. Estas conexiones terminan en conectores en el bloque de acrílico.

En la medición también es necesario separar las componentes resistiva (o real o en fase) y reactiva (o imaginaria o desfasada) de la corriente al aplicarse a la muestra un voltaje alterno. El detalle del circuito se describe en una publicación anterior (Caranti y Ré 1984).

2.2 Proceso de medición

Para la experiencia se utilizaron muestras monocristalinas de 2cmx2cm y aproximadamente 1mm de espesor. Estas se colocan en el portamuestras y el mismo se ubica en un recinto termostatzado, conectandose eléctricamente. Dos electrodos opuestos se conectan a un generador de audio sinusoidal de frecuencia variable. Los dos electrodos restantes se conectan a sendos conversores corriente-voltaje que forman parte del circuito mencionado en la sección anterior.

A su vez las salidas del mismo, correspondientes a las componentes resistiva y reactiva de la corriente, se conectan a un graficador X-Y. A la entrada X del mismo, se conecta una rampa lineal proporcional a la frecuencia del generador de audio. El conexionado general se ilustra en el diagrama en bloque de la figura 2.

3. RESULTADOS

3.1 Medición de la corriente

Las figuras 3 y 4 muestran la componente real de la corriente medida. Para estos gráficos se eligieron los resultados obtenidos con las muestras que denotamos 3 y 4. A partir de las respectivas salidas del separador, se obtienen las componentes resistiva y reactiva de la corriente.

Dichos valores se muestran en las figuras 3 y 4, correspondiendo a las muestras 3 y 4 respectivamente, como función de la frecuencia. Las corrientes medidas están directamente ligadas a la conductividad a través de la relación

$$I = s V_{ap}$$

s = conductividad superficial
 V_{ap} = voltaje aplicado

Según puede observarse en el gráfico; la corriente, y consecuentemente la conductividad, es mayor para la muestra 4 que para la 3, lo que sugiere una contaminación accidental en la primera.

La diferencia entre los valores medidos de la corriente imaginaria con la muestra y los de pruebas de calibración es menor que el error experimental. Estas pruebas se hicieron con la misma geometría con que se mide en la muestra.

3.2 Dependencia con la temperatura

Para analizar en mayor detalle el comportamiento de la conductividad como función de la temperatura, los resultados se llevaron a un gráfico $\log(s)$ vs $1000/T$, como se ilustra en las figuras 4 y 5, correspondiendo las partes a) y b) a las muestras 3 y 4 respectivamente. Los gráficos son similares y se

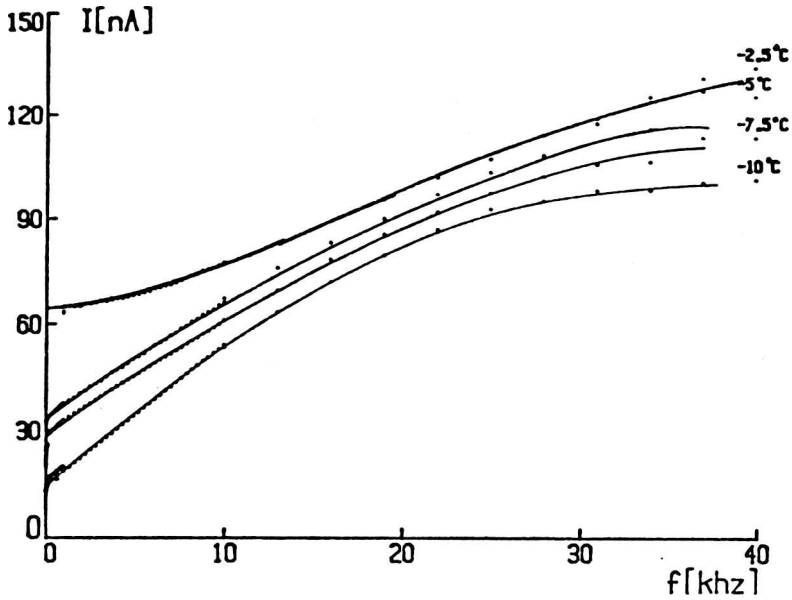


Figura 3: Corriente componente real en función de la frecuencia con la temperatura como parámetro para la muestra 3.

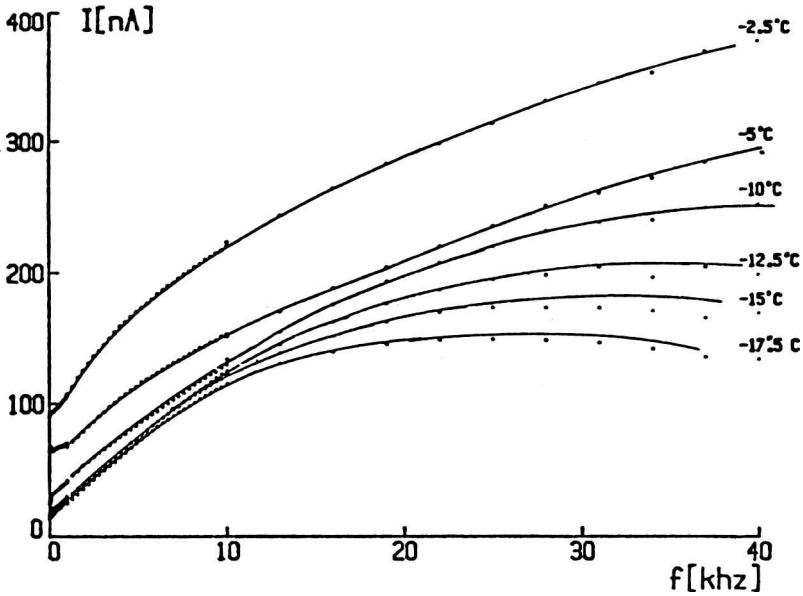


Figura 4: Corriente componente real en función de la frecuencia con la temperatura como parámetro para la muestra 4.

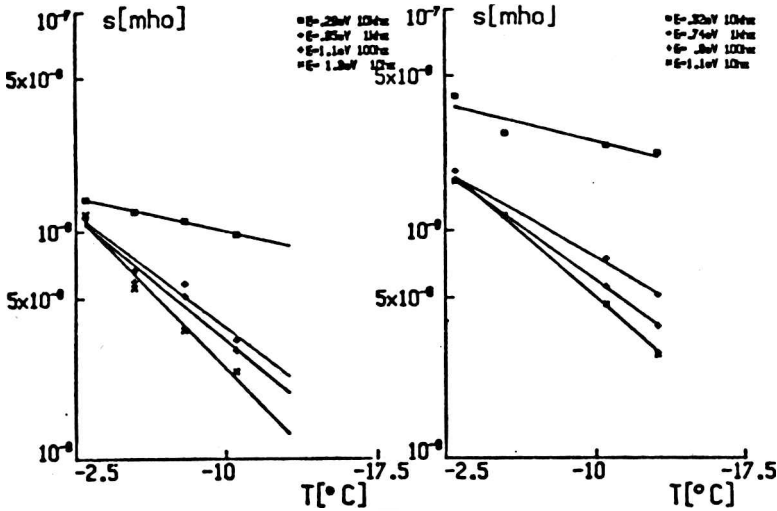


Fig.5:a) Conductividad real en función de la temperatura con la frecuencia como parámetro para la muestra 3. La pendiente en las rectas es proporcional a la energía de activación. Fig.5 b) Conductividad real en función de la temperatura con la frecuencia como parámetro para la muestra 4. La pendiente en las rectas es proporcional a la energía de activación.

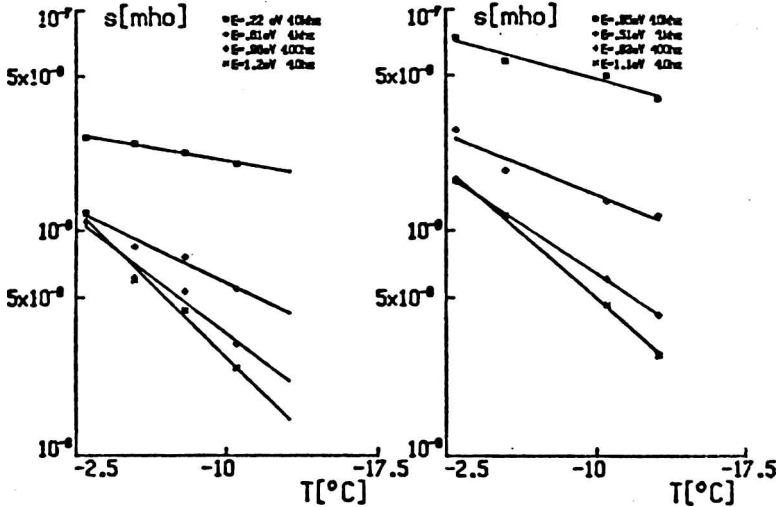


Fig.6:a) Conductividad real en función de la temperatura con la frecuencia como parámetro para la muestra 3. La pendiente en las rectas es proporcional a la energía de activación. Fig.6 b) Conductividad real en función de la temperatura con la frecuencia como parámetro para la muestra 4. La pendiente en las rectas es proporcional a la energía de activación.

eligieron las frecuencias que se detallan en la tabla a continuación, donde se resumen los resultados obtenidos

M3				M4			
f[Hz]	E[eV]	f[Hz]	E[eV]	f[Hz]	E[eV]	f[Hz]	E[eV]
10^1	1.3	4×10^1	1.2	10^1	1.1	4×10^1	1.1
10^2	1.1	4×10^2	.96	10^2	.9	4×10^2	.83
10^3	.95	4×10^3	.61	10^3	.74	4×10^3	.51
10^4	.29	4×10^4	.22	10^4	.32	4×10^4	.35

Según puede verse en las figuras, la conductividad sigue una ley de Arrhenius, con energías de activación superiores a las que se presentan usualmente en el volumen.

Asimismo, puede verse que en general las energías de activación en la muestra 4, son menores que las correspondientes en la muestra 3, lo que podría sugerir un mecanismo de conducción distinto en ambas, reforzando la idea de una contaminación accidental.

3.3 Dependencia con la frecuencia

Para tener una idea más detallada del comportamiento de la conductividad con la frecuencia, los resultados se llevaron a un gráfico $\log(\sigma)$ vs $\log(f)$. Los resultados se presentan en las figuras 7 y 8 para las muestras 3 y 4 respectivamente. Según puede verse en los mismos, para bajas frecuencias (hasta aproximadamente 1kHz) el comportamiento es esencialmente constante, y luego pasa a tener una dependencia lineal, en el rango de 1kHz a 10kHz, pasando a mostrar un efecto de saturación a frecuencias mayores.

Las pendientes estimadas en este rango van de .62 a .18 para la muestra 3 en tanto que para la 4 van de .75 a .38

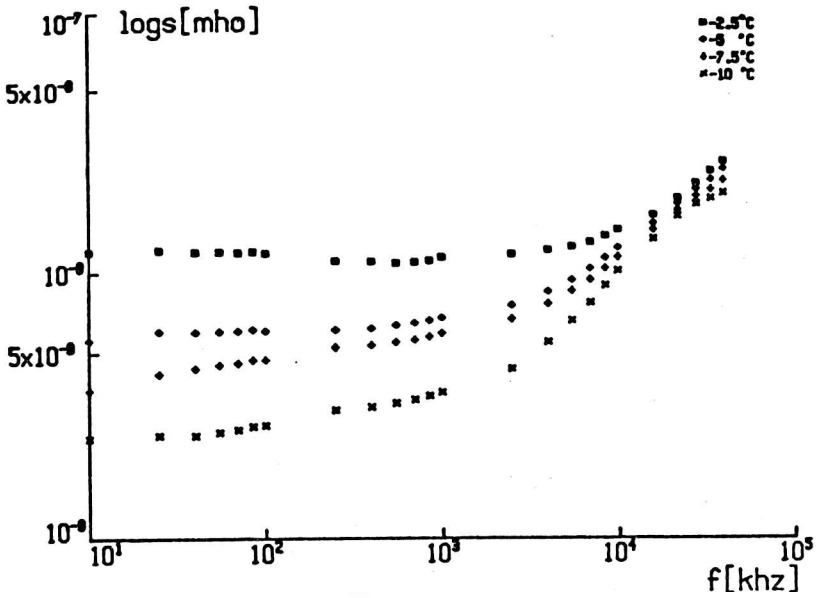


Fig.7: Conductividad real en función de la frecuencia en un gráfico log-log que muestra un comportamiento similar a sólidos amorfos para la muestra 3.

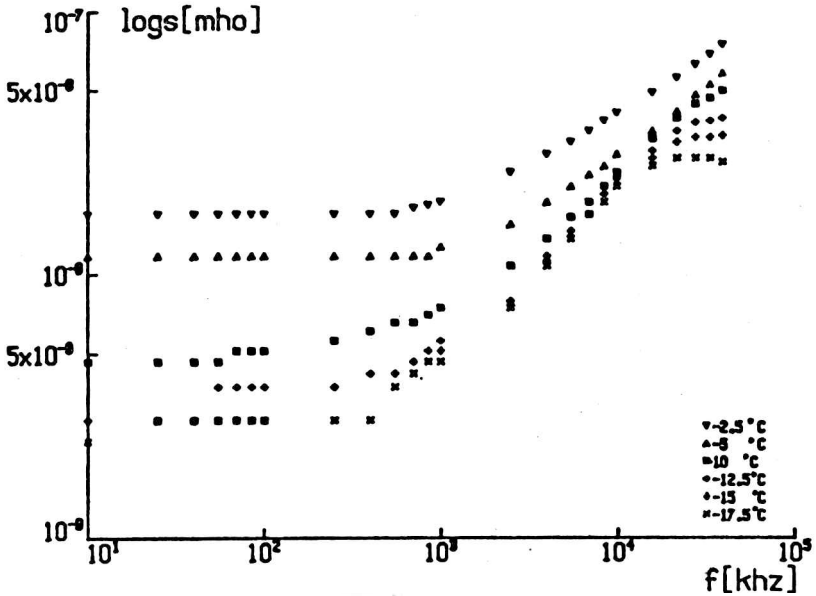


Fig.8: Conductividad real en función de la frecuencia en un gráfico log-log que muestra un comportamiento similar a sólidos amorfos para la muestra 4.

250. CONDUCTIVIDAD ELECTRICA...

acentuandose la diferencia a alta temperatura como puede verse en la siguiente tabla ($\epsilon = C f^{-1}$)

T	-17.5	-15	-12.5	-10	-7.5	-5	-2.5
a(M ₃)				.62	.4	.36	.18
a(M ₄)	.75	.75	.75	.62		.44	.38

Este comportamiento ha sido observado en hielo policristalino siendo $a = .65$ a -15°C en dicho caso (Caranti e Illingworth 1983).

4. DISCUSION Y COMPARACION CON EL VOLUMEN

El comportamiento eléctrico de la superficie del hielo muestra ciertos aspectos de interés que lo diferencian del volumen.

Los valores observados de la corriente son más altos que lo que correspondería a la contribución volumétrica para esta experiencia. Esto indica una conducción esencialmente superficial.

Dicha corriente presenta un comportamiento esencialmente resistivo, siendo la contribución reactiva pequeña para toda frecuencia. Esta es una diferencia importante respecto del volumen, en cuyo caso la relación entre las componentes resistiva y reactiva de la corriente dependen de la frecuencia aplicada.

El comportamiento dieléctrico del volumen en el hielo se ajusta a un diagrama de Cole-Cole cuando se realiza un gráfico de ϵ real vs ϵ imaginario, comportamiento no observado en la superficie, mostrando que ésta no se ajusta al modelo de relajación de Debye.

Por otra parte las energías de activación observadas en volumen son aproximadamente de .3 eV, en contraposición con los valores obtenidos para la superficie de hasta 1.3 eV.

5. CONCLUSIONES

Un aspecto de interés surge del análisis de las figuras 7 y 8. El comportamiento lineal en el gráfico $\log s$ vs $\log f$ con parámetro T en el rango de 1khz a 10khz sugiere como mecanismo de conducción el salto de portadores de trampa en trampa. Esto se justifica por la dependencia de la pendiente, en este gráfico, con la temperatura (Long 1982).

Este comportamiento ha sido observado en sólidos amorfos como germanio (Long y otros 1982).

Es de notar que las altas energías de activación observadas son comunes con otros fenómenos como: fricción interna, relajación de potencial superficial, borde de grano, etc., en los que intervienen interfases en hielo.

Estos hechos responden cualitativamente a las predicciones que surgen del modelo de Fletcher citado en el punto 1.2, que muestran la importancia de extender el mismo.

BIBLIOGRAFIA

- * Caranti, J.M. e Illingworth, A.J., 1983; "Frequency dependence of the surface conductivity of ice"; J.Phys.Chem. 87, pp 4078,4083.

- * Caranti, J.M. y Ré, M.A., 1984; "Medidor de conductividad y constante dieléctrica del hielo"; Revista Telegráfica Electrónica, 855, Setiembre.

- * Fletcher, N.H., 1968; "Surface structure of water and Ice. II. A revised model"; Phil.Mag 18, pp 287,1300.

- * Long, A.R., 1982; Adv. in Phys. 31, pp 553,637.

- * Long, A.R., Balkan N., Hogg W.R. y Ferrier R.P., 1982; Phil. Mag. 45, pag. 497.