

# Propiedades Topológicas de Compuestos Fabricados a Partir de Polvos y Absorción Anisotrópica en Materiales Bifásicos de Ag-Ni

A. FOURTY y R. E. BOLMARO

INSTITUTO DE FÍSICA ROSARIO-FACULTAD DE CIENCIAS EXACTAS, INGENIERÍA Y AGRIMENSURA. UNIVERSIDAD NACIONAL DE ROSARIO.- CONICET-. BV. 27 DE FEBRERO 210 BIS. 2000 ROSARIO. ARGENTINA.

e-mail: bolmaro@jfir.edu.ar

## Resumen

En este trabajo se estudia el fenómeno de absorción anisotrópica para un modelo de compuestos de Ag-Ni fabricados a partir de polvos. La distribución de fases se simula mediante un arreglo periódico de círculos de Ni en una matriz de Ag y se muestra que, a pesar de la distribución aleatoria de ambas fases, el efecto de la absorción anisotrópica se produce debido al orden de corto alcance que adquieren las partículas durante la fabricación del compuesto. Se muestra que las curvas de corrección por desenfoque dependen de manera importante de la deformación por lo cual las curvas medidas en probetas sin textura no son convenientes para corregir texturas de alta deformación.

## Abstract

Anisotropic absorption effects have been studied for a model Ag-Ni powder composite case. The phases distribution has been simulated by a periodic arrangement of Ni circles in a Ag matrix. It is shown that, despite the random distribution of both powders, an anisotropic absorption effect comes out due to the short range order produced by mixing and compaction of metal powders during hot isostatic pressing. The dependence on the deformation of the defocusing correction curves is shown to be very important. Correction at high strains cannot be performed with experimental defocusing curves obtained at low strains.

## Introducción

En las mediciones de texturas de materiales bifásicos con rayos X además de presentarse los conocidos fenómenos de desenfoque y absorción, aparece la dificultad adicional de que la absorción, al depender tanto de los materiales como de la geometría y distribución de las diferentes fases, es anisotrópica<sup>1,2</sup>. Por lo tanto, la dependencia de la absorción con los diferentes parámetros que caracterizan al material, debe ser estudiada en cada caso particular. Las estructuras laminares ya han sido analizadas<sup>2</sup>, pero la influencia de este fenómeno en otros casos no es bien conocida. Uno interesante por razones científicas y tecnológicas es el de compuestos fabricados a partir de polvos. Además de este tipo de compuestos, son muchos los materiales bifásicos (por ej. aleaciones con partículas de segunda fase), que presentan una distribución de fases que puede caracterizarse, a los efectos de su modelización, como una distribución aleatoria de granos elipsoidales. En este trabajo se estudia teórica y

experimentalmente un compuesto de Ag y Ni fabricado con la técnica de prensado isostático en caliente (HIP). Las formas redondeadas de las partículas y la distribución aleatoria que presentan sugieren que no debe encontrarse el fenómeno de absorción anisotrópica. Sin embargo éste se presenta influyendo en las mediciones de textura.

La intensidad medida de rayos X reflejados por un plano de red (hkl) de la fase i en la dirección de la muestra  $\{\alpha, \beta\}$  está dada por la expresión:

$$I_{hkl}^i\{\alpha, \beta\} = I_0 \cdot P_{hkl}^i\{\alpha, \beta\} \cdot R_{hkl}^i \cdot \iiint e^{-\int_0^z \mu(x,y,z) \frac{dz}{\sin \varphi}} \cdot g^i(x,y,z) \frac{dz}{\sin \varphi} dx dy \quad (1)$$

donde  $I_0$  es la intensidad incidente,  $R_{hkl}^i$  es la reflectividad de los planos de red (hkl) y  $P_{hkl}^i\{\alpha, \beta\}$  es la densidad de los polos (hkl) en la dirección de la muestra  $\{\alpha, \beta\}$ . Los ángulos  $\{\alpha, \beta\}$  coinciden con los del goniómetro y  $\varphi$  es el ángulo entre el haz de rayos X y la

superficie de la muestra tal que  $\sin\phi = \sin\theta \cdot \cos\alpha$ .  $\underline{x}$  e  $\underline{y}$  son las coordenadas de superficie y  $\underline{z}$  es el eje perpendicular a la superficie de la muestra. El factor exponencial  $e^{-\int_0^z \mu(x,y,z) \frac{dz}{\sin\phi}}$  es la atenuación que afecta a la intensidad de los rayos X que llegan a cierta profundidad. La función  $g(x,y,z)$  toma el valor 1 cuando la integración se está efectuando dentro de la fase difractante  $i$ , y 0 en los otros puntos. El coeficiente de absorción lineal es escrito como una función variable a lo largo del camino de integración. Esta ecuación tiende al caso límite de una sola fase cuando  $\mu$  es constante.

La ecuación (1) puede evaluarse para cualquier geometría y distribución de fases. Si consideramos simetría cilíndrica con respecto a un eje perpendicular a la superficie nos encontramos con que los planos que pasan por dicho eje pueden simularse como se muestra en las Figs. 1 y 2. Con esta simplificación, en el espacio, la probeta estaría representada por un arreglo de anillos toroidales. En la realidad, la probeta evidencia simetría cilíndrica, pero esta simetría es estadística, ya que los diferentes caminos de los rayos X para diferentes ángulos  $\beta$  (ángulo de rotación alrededor de un eje perpendicular a la muestra) son indistinguibles.

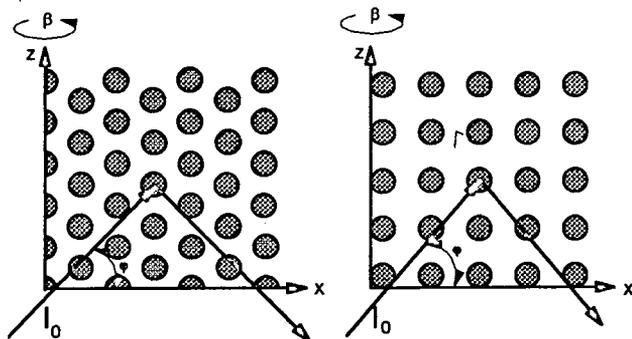


Fig. 1: Arreglo exagonal

Fig. 2: Arreglo cúbico

### Resultados experimentales

Mediante el método de prensado isostático en caliente (HIP) se han preparado tres compuestos a partir de polvos con 25%Ni, 50%Ni y 75%Ni en matriz de Ag. Las muestras fueron sometidas a ensayos de compresión simple con pasos de

aproximadamente 20% de deformación de Von Mises. La deformación resultante fue macroscópicamente homogénea. Luego de cada paso de deformación se midió la textura para seguir su evolución. Para esto, se dispuso de un goniómetro de textura Scintag utilizando radiación  $K_{\alpha}$  de tubo de Cu. Las figuras de polos fueron analizadas con un programa de PC, popLA, para obtenerlas completas y normalizadas<sup>3</sup>. Debido a los efectos de desenfoque, para cada composición en las probetas sin textura (es decir, sin deformar) debe medirse una curva de corrección que debe incluir los efectos de la geometría y dimensiones del goniómetro como así también los efectos de la absorción anisotrópica. Dada la simetría cilíndrica presentada por las muestras alrededor del eje perpendicular a la superficie de compresión, el efecto de desenfoque puede medirse promediando las intensidades reflejadas variando  $\beta$  cada  $5^{\circ}$ . Las curvas de corrección por desenfoque así obtenidas, que se utilizan para corregir las texturas medidas para diferentes deformaciones, se muestran en la Fig. 3 para dos picos de difracción del Ni y dos de la Ag para la probeta de 75%Ag-25%Ni.

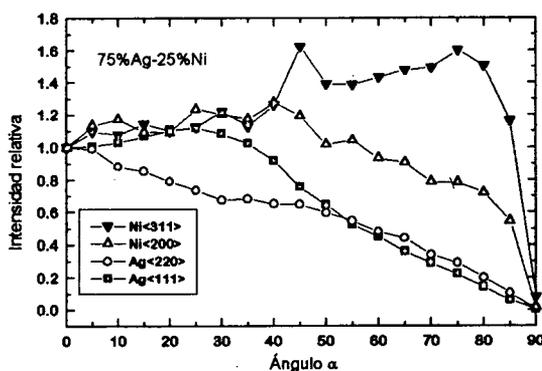


Fig. 3: Curvas experimentales de corrección de desenfoque.

El pico  $\langle 311 \rangle$  del Ni muestra el comportamiento más irregular, pero todos evidencian variaciones que difieren del decremento monótono característico de las muestras monofásicas de gran espesor. Este comportamiento es inesperado; sólo deberían encontrarse variaciones locales de la intensidad reflejada para tamaños de partículas del orden de la profundidad de penetración.

Hemos llevado a cabo algunas simulaciones basadas en la ec. (1), que explican dicho comportamiento y dan idea de la validez del uso de las curvas experimentales (medidas en probetas sin deformar) para corrección de texturas de alta deformación.

La textura de compresión simple es mucho más fácil de comprender con la figura de polos inversa en la dirección del eje  $z$  perpendicular al plano de compresión<sup>4</sup>. Las figuras de polos inversas de ambos metales para 75%Ag-25%Ni se muestran en la Fig. 4 para una deformación de Von Mises de 1.25. Las figuras de polos inversas para deformaciones menores muestran el aspecto típico de texturas

de compresión simple de la Ag y del Ni. Las diferencias principales son las intensidades de las texturas de ambos materiales y la forma en que ellas evolucionan en función de la deformación macroscópica. Para pequeñas deformaciones las texturas del Ni son mucho más débiles que las de la Ag. Para las deformaciones promedio mayores de ambas fases las texturas muestran el mismo comportamiento general excepto que la textura de la Ag ha frenado su desarrollo y que la del Ni ha alcanzado su misma intensidad. Una componente extra en la dirección  $\langle 111 \rangle$  del Ni que no aparece a bajas deformaciones se ha comenzado a desarrollar.

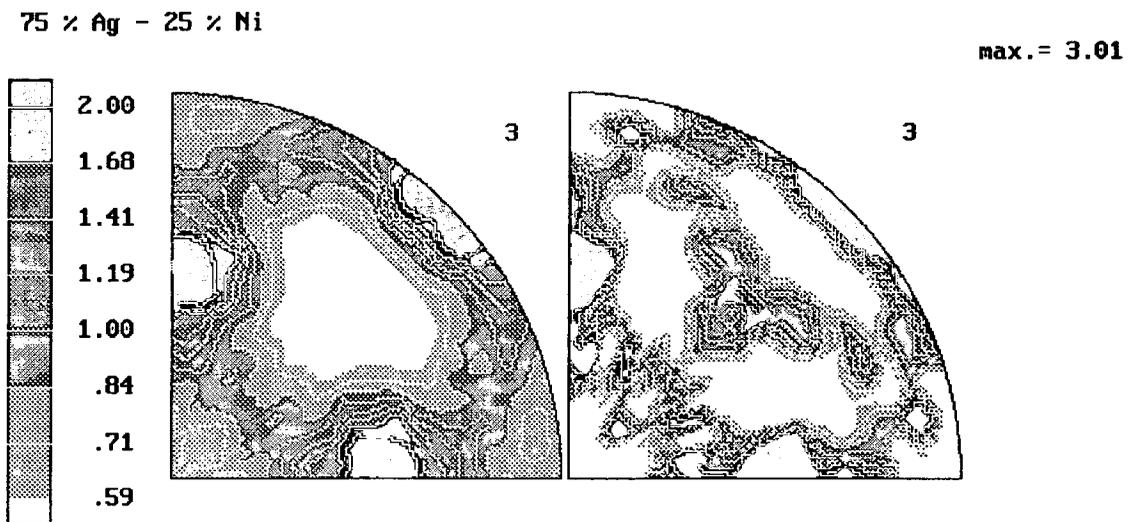


Fig. 4: Figuras de polos inversas experimentales (001) de Ag y Ni para un compuesto 75%Ag-25%Ni a una deformación equivalente de Von Mises de 1.25.

### Simulación de la absorción anisotrópica

Las superficies de las muestras fueron analizadas por SEM. Sus imágenes evidencian percolación bidimensional de Ag y Ni para la muestra de 50%Ag-50%Ni. En todas las composiciones las partículas de Ni mantienen su redondez, mientras que la fase Ag envuelve a los granos de Ni manteniendo su contigüidad aún en la probeta de 25%Ag-75%Ni. A esta alta fracción de volumen el Ni también se presenta continuo en tres dimensiones. De hecho la continuidad tridimensional de ambas fases simultáneamente es posible entre fracciones de volumen de entre, aproximadamente, 20% y 80% para una

distribución aleatoria de las fases. Debido a la simetría cilíndrica se elimina la necesidad de considerar la dirección  $y$ . La distribución de fases en profundidad se simula mediante dos arreglos periódicos de círculos de Ni embebidos en una matriz de Ag. Ambas distribuciones, exagonal y cúbica, se muestran en las Fig. 1. y 2. El material real es una colección de secciones de esferas de Ni de diferentes diámetros distribuidas al azar dentro de la matriz de Ag. En el espacio, al asumir simetría cilíndrica, la simulación se efectúa sobre una colección de cilindros toroidales de igual diámetro de Ni embebidos en la matriz de Ag. Las curvas de corrección de absorción anisotrópica teóricas calculadas para el pico

$\langle 311 \rangle$  del Ni ( $\theta=46.5^\circ$ ) para 75%Ag-25%Ni se muestran en la Fig. 5a para el arreglo exagonal y en la Fig. 5b para el arreglo cúbico. Por otro lado se han efectuado cálculos para un arreglo exagonal de elipses con una excentricidad correspondiente a partículas sometidas a una deformación equivalente de Von Mises de 0.65 y de 1.25. Las curvas de corrección se muestran en la Fig. 5a. Éstas son inaccesibles de manera experimental dado que el material una vez deformado posee una textura.

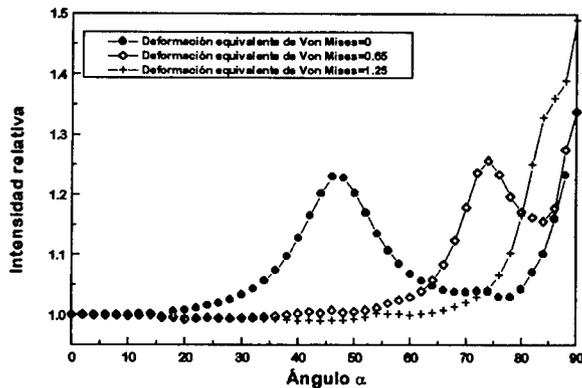


Fig. 5a: Curvas de corrección teórica para el arreglo exagonal, Ni $\langle 311 \rangle$ , 75%Ag-25%Ni.

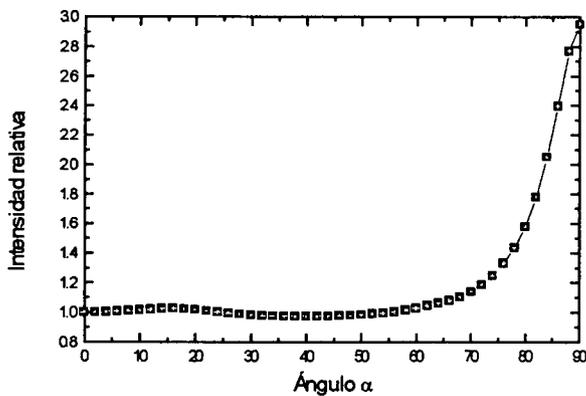


Fig. 5b: Curva de corrección teórica para el arreglo cúbico, Ni $\langle 311 \rangle$ , 75%Ag-25%Ni.

### Discusión y conclusiones

La simulación se llevó a cabo con distintos diámetros de círculos y se han encontrado diferentes características en las curvas de absorción anisotrópica. Los picos más altos fueron encontrados para círculos con diámetros de 0.5-1 $\mu$ m y la mejor coincidencia entre los resultados experimentales y teóricos se halló para el arreglo exagonal. El pico que aparece en los datos experimentales a aproximadamente  $\alpha=45^\circ$  es claro en la

simulación. El crecimiento abrupto a grandes ángulos se ve disminuido por la aparición del fenómeno de desenfoque. Este arreglo exagonal corresponde a una distribución tridimensional compacta de esferas en arreglo cúbico centrado en las caras (FCC) o exagonal compacto (HCP). Resulta, en cierto modo, sorprendente la aparición de un fenómeno de absorción anisotrópica en una distribución aleatoria de fases. Ésto puede ser entendido mirando la distribución de fases como si tuviera una estructura cuasiperiódica compacta. Debido a la escasa profundidad de penetración de los rayos X, éstos sólo pueden poner en evidencia el orden de corto alcance, revelando una suerte de distribución cuasicristalina de las partículas. Si bien en ciertas zonas de la muestra la fase Ni puede estar ausente, en las zonas en las que se encuentra se distribuye formando estructuras compactas. Este arreglo se debe al proceso de fabricación: antes de que se aplique HIP las partículas son zarandeadas alcanzando la distribución más compacta posible a corto rango. El desorden de largo alcance no es evidenciado por los rayos X debido al decaimiento exponencial de la radiación. De todos modos, la distribución aleatoria compacta de partículas y no de anillos toroidales, necesitaría de una simulación verdaderamente tridimensional. La gran variación de la curva de corrección por efecto de la deformación muestra que las correcciones de las texturas de alta deformación no pueden efectuarse con curvas experimentales tomadas a baja deformación. La aparición de la componente  $\langle 111 \rangle$  en el Ni (Fig. 4) puede ser producto de una corrección defectuosa.

### Referencias

- 1.- Bunge, H-J., Z.Metall., 76, 92 (1985).
- 2.- Bunge, H-J., Experimental Techniques in Multiphase Analysis, Ed. H.J. Bunge, DGM InformationGesellschaft. Verlag (1986).
- 3.- Kallend, J.S., Kocks, U.F., Rollett, A.D. and Wenk, H.-R. Mater. Sci. Eng., A132, 1-11 (1991).
- 4.- Bolmaro, R.E., Browning, R.V., Guerra, F.M., and Rollett, A.D. Mater. Sci. Eng. A175, 113-124 (1994).