

## EVALUATION OF THE NANOSTRAIN CAUSED BY INCOHERENT PARTICLES IN AN ALUMINUM-BASED COMPOSITE

J. L. Hernández-Rivera<sup>\*a</sup>, M. Ramos-Azpeitia<sup>b</sup>, J. J. Cruz Rivera<sup>c</sup>, J. Palmerin Moreno<sup>d</sup>, C. G. Garay-Reyes<sup>e</sup>

<sup>a</sup> CONACYT-Instituto de Metalurgia, Universidad Autónoma de San Luis Potosí, San Luis Potosí, México.

<sup>b</sup> Facultad de Ingeniería, Universidad Autónoma de San Luis Potosí, San Luis Potosí, México.

<sup>c</sup> Instituto de Metalurgia, Universidad Autónoma de San Luis Potosí, San Luis Potosí, México

<sup>d</sup> Departamento de Minas, Metalurgia y Geología, Universidad de Guanajuato, Guanajuato, Guanajuato, México.

<sup>e</sup> Centro de Investigación en Materiales Avanzados-Laboratorio Nacional de Nanotecnología, Chihuahua, México.

\*Corresponding author, email: jlhr10@yahoo.com.mx, tlf: +52 (444) 8261450.

Recibido: Noviembre 2017. Aprobado: Marzo 2018.

Publicado: Junio 2018.

### ABSTRACT

Aluminium based composite with dispersed graphite particles was processed by means of mechanical alloying, cold compression, sintering and hot extrusion. Samples for High Resolution Electron Microscopy (HRTEM) were obtained from extruded bars and were prepared using ultrasonic cutting, mechanical grinding, jet electropolishing and ion milling. Significant strain gradients are created in the metal matrix composites because of thermal mismatch between matrix and reinforcement particles. The main objective of this work was to determine by HRTEM in a quantitative way, the strain gradients in the matrix, in order to be able to predict the increments in the flow stress and the modification in the precipitation kinetics in future works. The geometric phase analysis (GPA) technique was employed to measure strain in the vicinity of the graphite particles. In order to avoid commonly observed errors in strain maps generated from HRTEM images we applied the GPA technique to the exit face wave function reconstructed from a focal series of HRTEM micrographs. It was possible to establish that the matrix is subjected to tension strain gradients that extend out to about 5 nm around the graphite particles. It was observed that the strain in transverse direction ( $\epsilon_{xx}$ ) was higher than the longitudinal ( $\epsilon_{yy}$ ). According to the results obtained the strain was heterogeneous and had a maximum value of 2.2 % in areas close to the particles.

**Keywords:** Metal Matrix Composites, Geometric Phase Analysis, Strain Mapping

### EVALUACIÓN DE LA NANODEFORMACIÓN CAUSADA POR PARTÍCULAS INCOHERENTES EN UN MATERIAL COMPUESTO BASE ALUMINIO

### RESUMEN

Un material compuesto con matriz de aluminio y con partículas dispersas de grafito se produjo mediante aleado mecánico, compresión en frío, sinterización y extrusión en caliente. Se obtuvieron muestras para microscopía electrónica de alta resolución (HRTEM) mediante corte ultrasónico, desbaste mecánico, electropulido y desbaste por iones a partir de dichas barras. Gradientes significativos de deformación fueron encontrados en el compuesto debido al desajuste de dilatación térmica entre matriz y refuerzo. El objetivo principal de esta investigación fue determinar cuantitativamente mediante HRTEM, los gradientes de deformación alrededor de las partículas de grafito, ya que esto permitirá en trabajos futuros predecir los incrementos en el esfuerzo de flujo y las alteraciones de la cinética de precipitación en dichos compuestos. La técnica de análisis geométrico de fase (GPA) fue aplicada para determinar la deformación alrededor a la interfase entre la matriz-partícula. Con el fin de evitar el efecto de las aberraciones de las lentes del microscopio en las imágenes de HRTEM la técnica GPA se usó en la función de onda de salida obtenida a partir de una reconstrucción por serie focal. Mediante esto, fue posible establecer que la matriz experimenta importantes gradientes de deformación por tensión que se extienden hasta aproximadamente 5 nm alrededor de las partículas de grafito. Adicionalmente, se observó que la deformación en la dirección transversal ( $\epsilon_{xx}$ ) fue mayor que en la longitudinal ( $\epsilon_{yy}$ ). De acuerdo con los resultados anteriores, se puede establecer que la deformación fue heterogénea y tuvo un máximo de 2.2% en las áreas cercanas a la interfase entre matriz-grafito.

**Palabras claves:** Compuestos de matriz metálica, Análisis geométrico de fase, Mapeo de deformación.

## INTRODUCCIÓN

Los materiales compuestos de matriz metálica (CMM) han encontrado un nicho importante de uso en varias aplicaciones industriales debido a sus propiedades específicas superiores, las cuales resultan de la combinación de materiales de distinta naturaleza. De forma particular, aquellos fabricados mediante metalurgia de polvos tienen la principal ventaja de combinar una excelente resistencia mecánica con una aceptable tenacidad en comparación con los CMM fabricados mediante procesos que involucran rutas de procesamiento en estado líquido [1, 2]. Cuando un CMM es enfriado desde su temperatura de fabricación, esfuerzos y deformaciones residuales se generan en la matriz como consecuencia de los distintos coeficientes de expansión térmica de la matriz y el refuerzo. El grafito es uno de los refuerzos que se ha incorporado en las aleaciones de aluminio debido a que reduce el desgaste y la abrasión de las herramientas. Adicional a esto, el grafito tiene una baja solubilidad en el aluminio y por tanto, la tendencia a reaccionar químicamente con la matriz es minimizada [3]. La significativa diferencia en los coeficientes de expansión térmica de ambos materiales produce esfuerzos residuales del orden de 200 MPa en la matriz [4]. En algunos casos dichos esfuerzos son relajados parcialmente mediante deformación plástica y la consecuente generación de dislocaciones en la matriz, lo cual produce un endurecimiento importante. Fitzpatrick [5] ha establecido que los esfuerzos y deformaciones que se generan en los CMM pueden ser clasificados en 3 clases de acuerdo a la escala de longitud en la que ocurren, los del tipo I se generan en escala de milímetros y pueden ser medidos mediante técnicas destructivas como el maquinado de perforaciones. Los del tipo II ocurren a escalas aproximadas al tamaño de grano de los materiales y provienen de pequeñas heterogeneidades en la microestructura como desajustes en el módulo elástico

entre refuerzo y matriz y pueden ser detectados mediante difracción de rayos X.

Finalmente los del tipo III ocurren a distancias cercanas a la red atómica y son causados por el desajuste entre los coeficientes de expansión térmica entre refuerzo y matriz, sobre todo cuando el refuerzo es sub-micrométrico. Este tipo de esfuerzos y deformaciones provocadas, no son posibles de resolver mediante difracción de rayos X, por lo que las técnicas basadas en radiación de electrones son preferidas debido a su mayor resolución espacial.

Entre las técnicas de microscopía de transmisión, sobresale la técnica de análisis geométrico de fase (GPA), desarrollada por Hytch *et. al.* [6]. Dicha técnica se basa en el postprocesamiento de imágenes de microscopía de transmisión de alta resolución (HRTEM). Típicamente, esta técnica se empleó en la cuantificación de deformación en dispositivos semiconductores [7], sin embargo, recientemente se ha usado en cuantificar deformaciones del orden nanométrico en nanopartículas de FePt con potenciales aplicaciones biomédicas y magnéticas [8]. En otro trabajo, Hou *et al.* [9] determinaron el campo de deformación alrededor de precipitados con morfología de placa en una aleación de Al-Zn-Mg-Cu. Uno de los principales resultados de este trabajo fue que el campo de deformación en la dirección perpendicular al precipitado  $\eta'$  fue mayor (2.2%) a la causada en dirección paralela a éste (0.17%), lo cual fue atribuido al crecimiento preferencial del precipitado durante el proceso de envejecido.

Como se ha visto en estas investigaciones, la técnica de GPA se ha usado en cuantificar deformaciones en el interior y alrededor de precipitados coherentes con la matriz, sin embargo, hasta donde nuestro conocimiento concierne, la técnica GPA no ha sido empleada en la determinación de los campos de deformación provocados por partículas incoherentes, por lo que la principal aportación científica de este trabajo es la estimación de

los gradientes de deformación provocados por la presencia de partículas incoherentes de grafito en la matriz de aluminio cuando ambos son sometidos a tratamientos termomecánicos. La importancia de la determinación de dichas deformaciones radica en que esto permitirá explicar el endurecimiento por dispersión que rige el comportamiento mecánico de este material compuesto, así como la posibilidad de estimar esfuerzos residuales en la matriz.

## MATERIALES Y MÉTODOS

El material utilizado fue fabricado mediante técnicas de metalurgia de polvos y extrusión en caliente. A las barras extruidas se les aplicó un tratamiento de envejecido que consistió en un calentamiento a 530 °C por 4 h, temple en salmuera a 0°C y posteriormente un envejecido a 140 °C por diferentes tiempos. Mediante pruebas de microdureza se determinó que el valor máximo de esta propiedad fue alcanzado en un tiempo de 12 h, por lo cual dicha condición se seleccionó para realizar el presente análisis. Las muestras para las observaciones en el microscopio electrónico de transmisión se prepararon mediante desbaste mecánico, electropulido por doble jet y finalmente fueron pulidas con iones para eliminar cualquier óxido superficial. Se usó un microscopio electrónico de transmisión JEOL JEM-2200FS operado a 200 kV. Con el fin de minimizar las aberraciones introducidas por las lentes del microscopio, se obtuvo la función de onda de salida del microscopio a partir de una serie de micrografías obtenidas a diferentes valores de desenfoque (-30,-20,-10,0,10,20 y 30 nm) con la muestra orientada en el eje de zona [100] [10]. Mediante el uso de la técnica GPA y en la ausencia de cambios significativos en la orientación del cristal, estructura cristalina y campos magnéticos o electrostáticos, la fase geométrica es directamente proporcional al desplazamiento local de la red cristalina, información con la que la deformación puede ser obtenida.

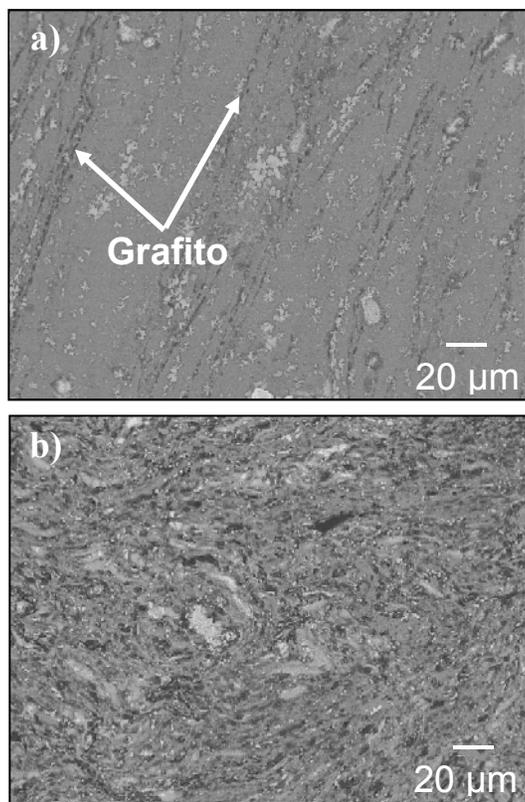
La fase geométrica es extraída de 2 reflexiones no colineales de la matriz, siendo en este caso las reflexiones (200) y (020) y usando una apertura cosenoidal de tamaños 1, 2 y 3 nm<sup>-1</sup> para evaluar como el tamaño de esta apertura influencia los resultados en los mapas de deformación.

## RESULTADOS Y DISCUSIÓN

### *Morfología del compuesto extruido en caliente*

Las Figs. 1a) y b) muestran la sección transversal y longitudinal del compuesto extruido en caliente. Como se puede ver, el grafito muestra una relación de aspecto cercana a 1 en la sección transversal mientras que en la sección longitudinal las partículas están orientadas de forma paralela a la dirección de procesamiento. Durante la extrusión, el grafito experimenta una combinación de fuerzas de corte y compresión que permiten que dicho material sea posible de deformar y adoptar las morfologías que se observan en la dirección longitudinal. En la literatura se ha reportado previamente que el grafito desarrolla una cierta textura cristalográfica durante la extrusión debido a que la cohesión entre las capas normales a los planos basales es baja y por tanto, la posibilidad de clivaje es alta [11]. Como consecuencia, la textura desarrollada provoca que los planos basales del grafito tiendan a estar paralelos a la dirección de extrusión. Las Figs. 2a) y b) exhiben micrografías de HRTEM de la partícula que fue analizada en este trabajo. El área indicada con un recuadro negro en la Fig. 2a), es ampliada en el inciso b). En esta última micrografía se pueden distinguir los planos atómicos de la matriz y la zona de la partícula de grafito en la parte izquierda. Como se mencionó en la sección experimental, micrografías con distintos desenfoques fueron adquiridas en esta región para realizar posteriormente una reconstrucción focal. Es importante mencionar que no se observaron fases distintas a la matriz o al grafito en la intercara entre ambos. En la Fig. 2a) también se presenta el patrón de difracción de área selecta (SADP) de la

matriz indicando que la orientación de esta última se encuentra alineada con el eje de zona [001]. Esta orientación permite definir de manera clara las reflexiones [200] y [020] a lo largo de las cuales se determinaron las deformaciones  $\epsilon_{xx}$  and  $\epsilon_{yy}$ .

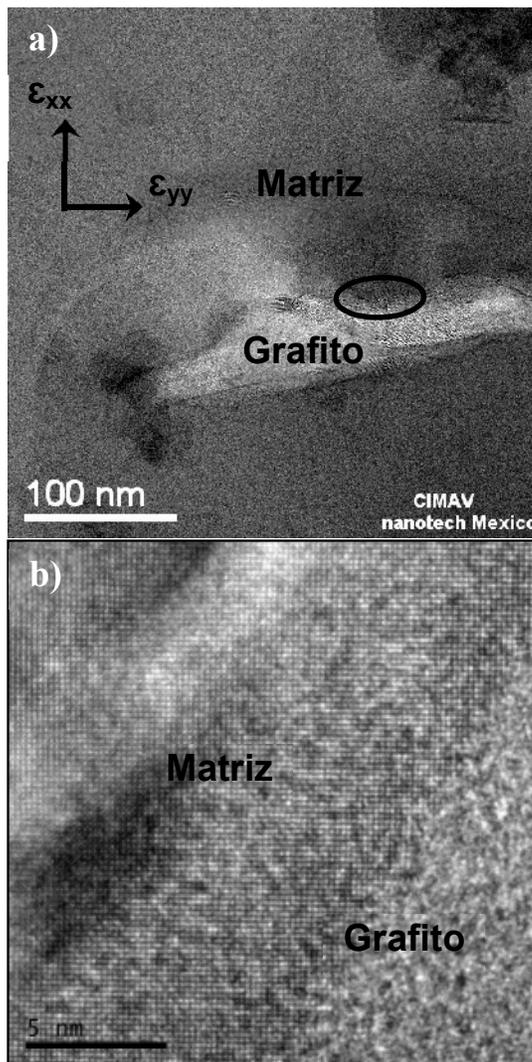


**Fig. 1.** Micrografías de SEM de la microestructura del compuesto, a) sección transversal, b) sección longitudinal.

#### ***Mapeo de deformaciones en la matriz***

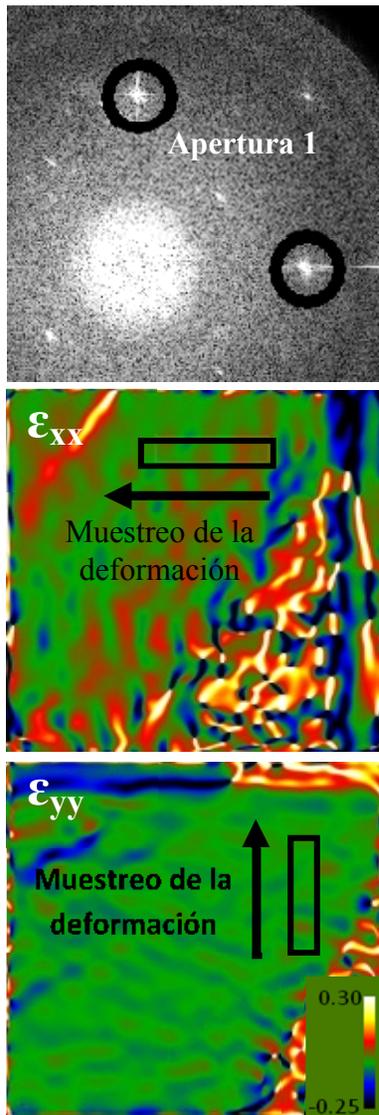
En la Fig. 3, 4 y 5 se presentan los mapas de contorno correspondientes a las deformaciones  $\epsilon_{xx}$  y  $\epsilon_{yy}$  para 3 distintos valores de apertura respectivamente, las cuales se presentan antes de cada mapa.

En los primeros mapas se indican con recuadro negro, las zonas en donde los gradientes de deformación fueron evaluados. En esas mismas zonas, se indica con una flecha, la dirección a través de la cual se obtuvieron dichos perfiles.



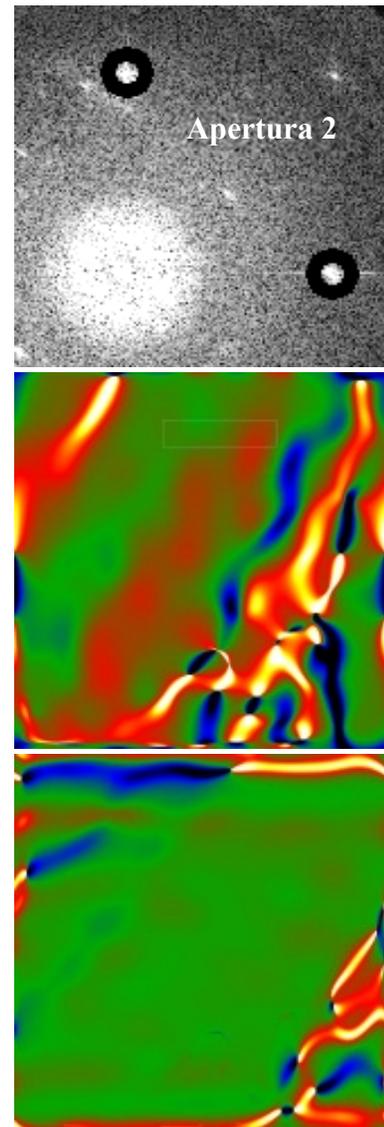
**Fig. 2.** Micrografías electrónicas del material compuesto, a) mostrando la partícula de grafito en donde se realizó el análisis. También se muestran las direcciones en las cuales se evaluaron las deformaciones en la matriz, b) Intercara entre el grafito y la matriz.

En la Fig. 6 se grafican los perfiles de deformación obtenidos para cada tamaño de apertura. En el caso de la apertura 1, se observa que los mapas de contorno para  $\epsilon_{xx}$  exhiben fluctuaciones significativas, las cuales se observan más claramente en la Fig. 6a), la cual proporciona valores positivos de entre 0.4 y 4%. En el caso de la apertura 2 y 3, se observa que los cambios son más graduales y muy similares e indican que en la zona cercana a la intercara entre matriz-grafito se encuentra en compresión mientras que la matriz se encuentra en un estado de tensión (-0.8 y 2.2% en promedio).



**Fig. 3.** Mapas de contorno mostrando el tamaño de apertura 1 y los componentes  $\epsilon_{xx}$  y  $\epsilon_{yy}$  obtenidos a partir de la reconstrucción mediante serie focal.

significativas que son causadas porque la apertura considera información que no proviene de la reflexión estudiada.

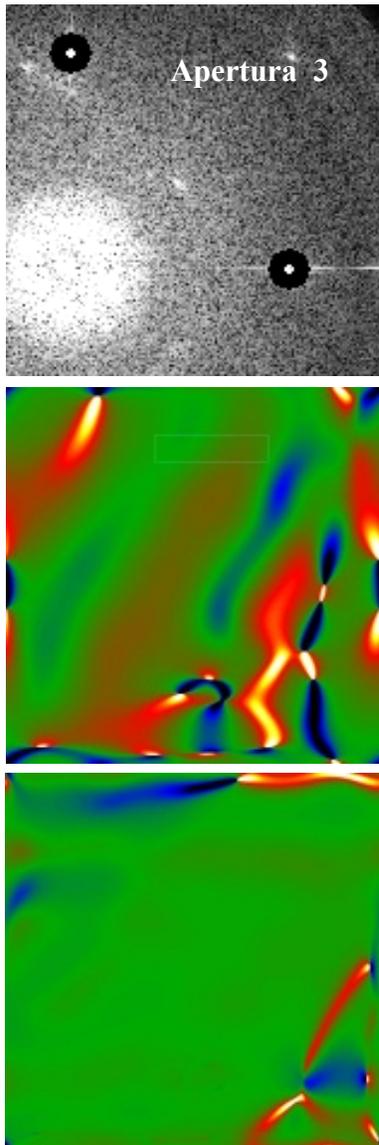


**Fig. 4.** Mapas de contorno mostrando el tamaño de apertura 2 y los componentes  $\epsilon_{xx}$  y  $\epsilon_{yy}$  obtenidos a partir de la reconstrucción mediante serie focal.

Es importante agregar que la ligera deformación por compresión que se observa en la transición de intercara hacia la matriz deformada tiene su origen en el denominado efecto de borde de la apertura usada durante la aplicación del GPA, el cual ha sido reportado previamente por Peters *et. al.* [12] en intercargas de SrRuTiO<sub>3</sub>-SrTiO<sub>3</sub>(SRO-STO). Con el resultado anterior, se puede establecer que valores de apertura iguales o menores al diámetro de la reflexión que se analiza producen resultados similares, mientras que valores mayores a la reflexión son sujetos a fluctuaciones

Se debe puntualizar que las deformaciones positivas encontradas en dirección de  $\epsilon_{xx}$  provienen de los esfuerzos residuales de tensión que se generan durante el termoprocesamiento de dicho compuesto mediante extrusión. Cuando el material es procesado, el espacio ocupado por las partículas de grafito no permite que la matriz de aluminio pueda expandirse hacia esa zona, y

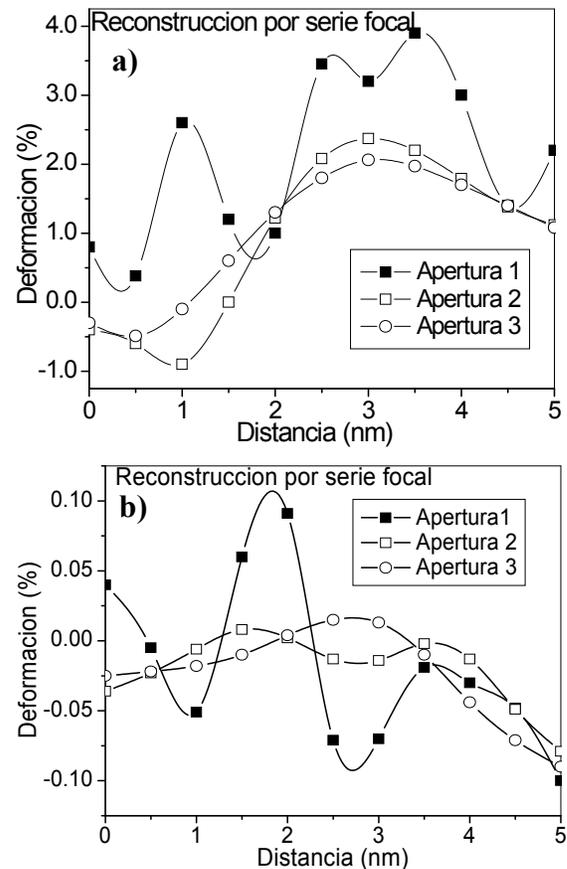
por tanto se generan dichos esfuerzos, los cuales en la literatura se han reportado ser de valores entre 50 y 200 MPa [4].



**Fig. 5.** Mapas de contorno mostrando el tamaño de apertura 3 y los componentes  $\epsilon_{xx}$  y  $\epsilon_{yy}$  obtenidos a partir de la reconstrucción mediante serie focal.

Respecto a los mapas de contorno obtenidos en la dirección de  $\epsilon_{yy}$ , se puede puntualizar que la deformación en esa dirección es muy baja para el caso de las 3 aperturas, siendo menor a 0.1% en todas ellas. Es importante resaltar que la apertura 1 (mayor) provoca nuevamente los mapas y perfiles con mayores fluctuaciones, mientras que las aperturas 2 y 3

proporcionan valores en promedio cercanos a -0.1%, con lo cual se puede establecer que en la dirección  $\epsilon_{yy}$  la deformación puede ser despreciada. La diferencia en los valores de deformación encontrados en las direcciones  $\epsilon_{xx}$  y  $\epsilon_{yy}$  puede ser atribuida a la alta anisotropía del grafito, como la expansión de este material es mayor en dirección perpendicular a los planos basales (los cuales se alinean con la dirección de extrusión), es en esa dirección en la que se detectó la mayor deformación, mientras que la expansión termica es menor en dirección paralela a los planos basales, por tanto en esa dirección la deformación fue muy baja.



**Fig. 6.** Perfiles de deformación correspondientes a los mapas de a)  $\epsilon_{xx}$  y b)  $\epsilon_{yy}$  para distintos valores de máscara o apertura.

Chou *et. al.* [13] han demostrado que la presencia de esfuerzos residuales en los refuerzos cerámicos de los materiales compuestos tiene un papel fundamental en este grupo de materiales. Desafortunadamente en esta

referencia, la investigación se centró en los esfuerzos residuales en los refuerzos (hasta de -195 MPa en partículas de SiC) y no se proporciona dato alguno ni de esfuerzos ni de deformaciones en la matriz de la aleación de aluminio A356.

Los complejos gradientes de deformación encontrados especialmente en la dirección xx de este material compuesto juegan un papel importante en las propiedades mecánicas resultantes, sin embargo es necesario realizar mayores estudios para establecer correlaciones que traten de predecir este comportamiento en las cuales se incorporen los valores de deformación encontrados en este trabajo, y que adicionalmente tomen en cuenta la superposición de dichas deformaciones causadas por refuerzos cercanos entre sí.

## CONCLUSIONES

Se determinó que el campo de deformación a partir de la intercara matriz-grafito tiene una naturaleza compleja y heterogénea, encontrándose un valor promedio de 2.2% en tensión en la dirección  $\epsilon_{xx}$  mientras que en el caso de la dirección  $\epsilon_{yy}$ , la deformación fue muy baja.

Se encontró que tamaños de apertura más grandes que las reflexiones estudiadas de la matriz, provocan mapas de contorno con un nivel de variación mayor, mientras que tamaños menores o iguales proporcionan mapas de contorno más suaves y con valores más precisos.

El nivel de deformación en la dirección perpendicular a la dirección de extrusión fue mayor que la registrada en dirección paralela, lo cual fue asociado a la alta anisotropía que el grafito posee.

## REFERENCIAS

[1] Balasubramanian, Y. (2017) “*Composite Materials and Processing*”, Florida, USA, Taylor & Francis, pp. 267-354.

[2] Srivastava A. (2017) “Recent advances in metal matrix composites (MMCs): a review” *Biomed. J. Sci. & Tech. Res.* 2: 27-29.

[3] Yolshina L.A., Muradymov R.V., Korsun I.V., Yakovlev G.A., Smirnov S.V. (2016) “Novel aluminum-graphene and aluminum-graphite metallic composite materials: Synthesis and properties” *J. Alloys Compd.* 663: 449-459.

[4] Xue-Bin L, Hua-Min Z, Chun Z, Chao SU. (2000) “A study of residual stress field in whisker reinforced metallic composite by using 3-D FEM” *Wuhan J. of Nat. Sci.* 5: 45-50.

[5] Fitzpatrick M. E., Fry A. T., Holdway P., Kandil, F. A., Shackleton J., Suominen, L. (2005) “Determination of residual stresses by X-ray diffraction” *National Physical Laboratory, Teddington*

[6] Hýtch M. J., Snoeck E., Kilaas R. (1998) “Quantitative measurement of displacement and strain fields from HREM micrographs” *Ultramicroscopy* 74: 131-146.

[7] Cooper D., Denneulin T., Bernier N., Beche A., Rouviere J.L. (2016) “Strain mapping of semiconductor specimens with nm-scale resolution in a transmission electron microscope” *Micron* 80: 145-165.

[8] Monteforte M., Kobayashi S., Tung L.D., Higashimine K., Mott D., Maenosono S., Thanh N.T.K., Robinson I.K. (2016) “Quantitative two-dimensional strain mapping of small core-shell FePt@Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> nanoparticles” *New J. Phys.* 18: 1-12.

[9] Hou X., Bai P. (2017) “Evaluation of strain fields caused by the  $\eta'$  phase in an Al-Zn-Mg-Cu alloy” *Mater. Sci. Eng. A* 683: 90-93.

[10] Koch C.T. (2008) “A flux-preserving non-linear inline holography reconstruction algorithm for partially coherent electrons” *Ultramicroscopy* 108: 141-150.

[11] Kasvayee K.A., Salomonsson K., Ghassemali E., Jarfors A.E.W. (2016) “Microstructural strain distribution in ductile iron; comparison between finite

- element simulation and digital image correlation measurements” *Mater. Sci. Eng. A* 655: 27-35.
- [12] Peters J.J.P., Beanland R., Alexe M., Cockburn J. W., Revin D. G., Zhang S. Y., Sanchez A. M. (2015) “Artefacts in geometric phase analysis of compound materials” *Ultramicroscopy* 157:91-97.
- [13] Chou S.N., Lu H.H., Lii D.F., Huang J.L. (2009) “Investigation of residual stress effects in an alloy reinforced ceramic/metal composite” *J. Alloys Compd.* 470; 117-122.