

REFINAMENTO PELO MÉTODO DE RIETVELD DE UMA CHAPA LAMINADA COM ORIENTAÇÃO PREFERENCIAL DA LIGA Al-Mg-Si 6063

J. A. G. Carrió¹; N. B. Lima²; A. A. Couto^{1,2}; A. A. Aguiar²; C. S. Hattori¹; L. F. Miranda¹; N. I. Domingues Jr.¹
Av. Prof. Lineu Prestes, 2.242, CEP: 05508-000, São Paulo, SP, acouto@ipen.br
(1) Mackenzie; (2) IPEN

RESUMO

O refinamento pelo método de Rietveld de uma amostra com orientação preferencial foi realizado usando dados de difração de raios-X de uma chapa da liga de alumínio 6063 laminada. O refinamento da orientação preferencial por harmônicos esféricos foi realizado usando uma simetria de amostra mmm (laminado) até a ordem de 8 e comparadas com figuras de polo medidas experimentalmente com goniômetro de textura. As quatro figuras de pólo apresentadas indicam forte textura dos planos (111), (200), (220) e (311). A obtenção de figuras de pólos calculadas a partir do refinamento do espectro de difração de raios X pode incorrer em erros de orientação cristalográfica preferencial. Isto ocorre porque a medida é restrita aos planos paralelos à superfície sem inferência à simetria da amostra.

Palavras-chave: alumínio, Rietveld; orientação preferencial; difração de raios-X.

INTRODUÇÃO

Uma excepcional combinação de propriedades faz do alumínio um dos mais versáteis materiais na engenharia e em construções. Baixo peso específico, embora algumas de suas ligas tenham resistência superior à do aço estrutural. Alta resistência à corrosão sob a maioria das condições de trabalho. Estas características tornam as ligas de alumínio adequadas à utilização nas mais diversas aplicações. O aumento da utilização de ligas de alumínio em estruturas estáticas tem aumentado continuamente. Devido às estruturas de aço ter um custo inicial substancialmente menor, alumínio é somente usado onde baixo peso ou custo de manutenção forem os principais fatores a serem considerados⁽¹⁾.

O alumínio quando micro-ligado ao magnésio e ao silício forma, em equilíbrio, à temperatura ambiente duas fases: a solução sólida de alumínio α , com estrutura cristalina cúbica de faces centradas (cfc) e o composto intermetálico Mg_2Si . Na liga 6063, o Mg e o Si são os elementos mais importantes e respondem pela formação

do intermetálico Mg_2Si . Este composto, quando adequadamente formado e disposto na matriz é responsável pelo aumento da resistência mecânica da liga. Na fig 1 é mostrado parte de um diagrama de fases de alumínio-magnésio+silício. A solubilidade sólida à temperatura ambiente do magnésio e do silício no alumínio é muito baixa. Portanto, o magnésio e o silício quando adicionados ao alumínio, mesmo em pequenas quantidades, formam à temperatura ambiente o intermetálico Mg_2Si ⁽²⁻⁵⁾.

O método de Rietveld vem sendo extensivamente utilizado na quantificação de fases presentes nos materiais. Contudo, poucos trabalhos tem sido desenvolvidos no estudo pelo método de Rietveld de materiais que apresentem forte orientação preferencial. Diante disto, o presente trabalho investigou pelo método de Rietveld uma liga de alumínio laminada a quente com alto grau de orientação preferencial. As figuras de pólo obtidas a partir do refinamento pelo método de Rietveld foram comparadas com as obtidas experimentalmente por difração de raios-X.

MATERIAIS E MÉTODOS

O material estudado neste trabalho foi a liga Al-Mg-Si 6063, cuja composição química é apresentada na tab 1. O material no estado como recebido encontra-se no formato de chapas finas laminadas a quente com 118 mm de comprimento, 17 mm de largura e 2,9 mm de espessura. Uma chapa da liga de alumínio 6063 laminada foi cortada e uma amostra de 2 cm de comprimento foi utilizada na análise por difração de raios-X. A liga se encontrava no estado solubilizado em decorrência do processo de laminação a quente. Algum envelhecimento natural pode ter ocorrido na chapa do momento da laminação (solubilização) até a execução das medidas por difração de raios-X.

Tabela 1: Composição química da liga de alumínio 6063 investigada neste trabalho.

Liga	Elementos							
	Mg (%)	Si (%)	Mn (%)	Cu (%)	Zn (%)	Fe (%)	Cr (%)	Al (%)
6063	0,45 - 0,90	0,20 - 0,60	0,10 máx.	0,10 máx.	0,10 máx.	0,35 máx.	0,10 máx.	Balanço

O espectro de difração de raios X foram coletados em um difratômetro Rigaku MultiFlex com um monocromador fixo. As condições experimentais foram: 40kV, 20mA, $20^\circ \leq 2\theta \leq 90^\circ$, $\Delta 2\theta = 0.02^\circ$, radiação $\lambda_{CuK\alpha}$, fenda de divergência = $0,5^\circ$,

fenda de recepção =0,3mm e tempo de contagem 8 s. Para o refinamento da estrutura foi utilizado o modelo estrutural do arquivo aluminium.cif da MAS (“American Mineralogical Society”), com estrutura cúbica de grupo espacial Fm-3m. As figuras de pólos foram coletadas em um difratômetro Rigaku RINT, radiação de MoK α , 40Kv, 20 mA com variação angular de $0^{\circ} \leq \Psi \leq 75^{\circ}$ e $0^{\circ} \leq \gamma \leq 360^{\circ}$ e passos $\Psi = \gamma = 5^{\circ}$. As figuras de pólos medidas foram (111), (200), (220) e (311).

RESULTADOS E DISCUSSÃO

O ajuste do difratograma é apresentado na Fig 1 e os detalhes do ajuste do perfil dos picos são apresentados nas Figs 2 e 3. Os resultados do refinamento são apresentados nas Tabs 2 e 3.

Tabela 2: Parâmetros de rede, fator de vibração térmica e fatores de discordância.

$a = 4,054283(3) \text{ \AA}$	$V = 6,641(1) \text{ \AA}^3$	$U = 0,02(16) \text{ \AA}^2$
$R_{wp} = 16,31\%$		
$R_p = 12,00\%$		
$R_{Bbragg} = 2,18\%$		
$X^2 = 3,165$		

Tabela 3: Coeficientes de perfil refinados da função 4 do GSAS.

$GU=0,75198 \times 10^{-1}$	$GV=1,3810 \times 10^{-1}$	$GW=1,37620$	$GP=0$	$LX=4,59644$
$Ptec=3,16979$	$Trns=-3,99 \times 10^{-1}$	$Shft=3,011 \times 10^{-1}$	$sfec = 0$	$S/L=3,092 \times 10^{-1}$
$H/L=0.3225 \times 10^{-1}$	$eta=0,75000$	$S400=0$	$S220=-0.540620 \times 10^{-1}$	

O refinamento da orientação preferencial por harmônicos esféricos foi realizado usando uma simetria de amostra mmm (laminado) até a ordem 8, uma vez que o aumento da ordem aumentava o valor do resíduo. Os valores dos coeficientes são apresentados na tab 4. Na tab 5 é apresentado a comparação das intensidades obtidas para chapa texturada com as intensidades de uma amostra aleatória, onde pode-se perceber um alto grau de orientação preferencial. As figuras de pólo foram calculadas para os quatro planos cujas figuras de pólos foram medidas experimentalmente e está apresentada na fig 2. A orientação da figura é descrita da seguinte forma: o eixo x da amostra está na direção horizontal (direção transversal à direção de laminação) e com sentido para a direita, o eixo y está na direção vertical (direção e laminação), o ângulo $\Psi = 0^{\circ}$ no centro e 90° na borda e o ângulo $\gamma = 0^{\circ}$ na

direita e 90° no topo do gráfico. Além disso, a legenda também indica as densidades dos contornos representados com cores diferentes.

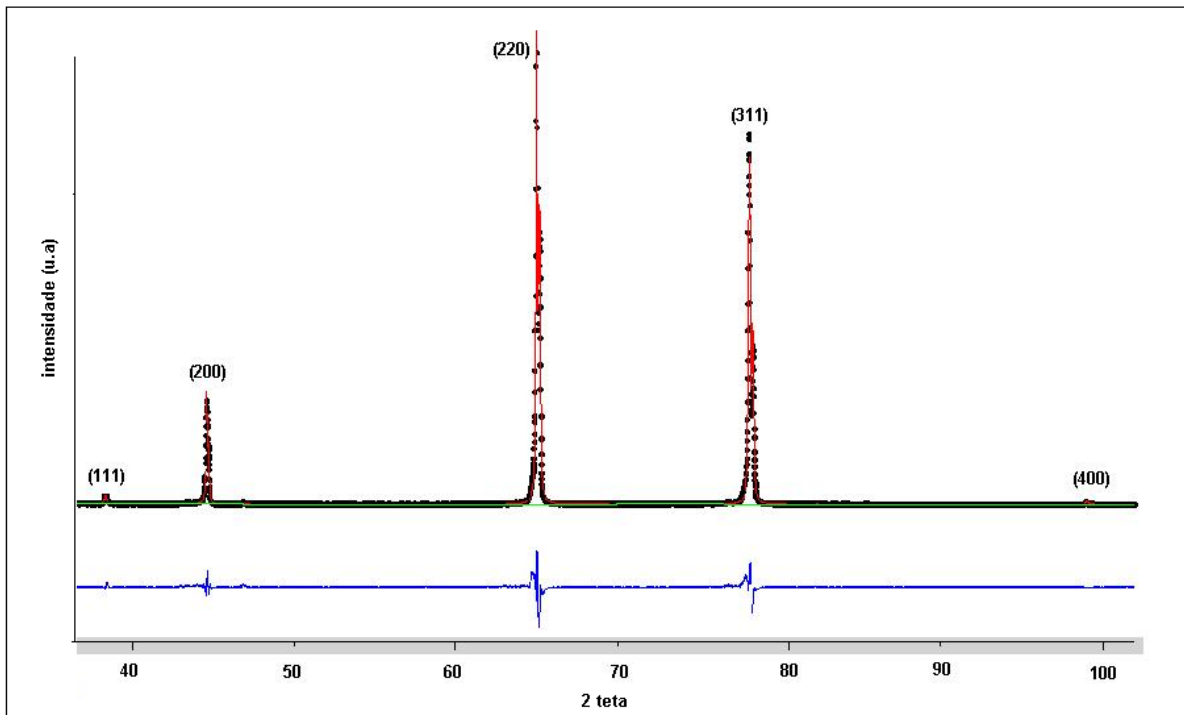


Figura 1: Ajuste do difratograma da chapa usando o modelo estrutural do alumínio puro.

O método desenvolvido baseia-se no método proposto por Bunge ⁽⁶⁾ de modo que a função distribuição de orientação pode ser expandida em série da seguinte forma:

$$f(g) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{\mu=1}^{M(l)} \sum_{\nu=1}^{N(l)} C_1^{\mu\nu} \hat{T}_1^{\mu\nu}(g)$$

onde $\hat{T}_1^{\mu\nu}(g)$, os harmônicos esféricos generalizados simétricos. Os pontos da esquerda sobre o T indicam a simetria do cristal e os da direita indicam a simetria da amostra e os coeficientes $C_1^{\mu\nu}$ a serem refinados.

A figura de pólos pode ser descrita utilizando seguinte expansão em série:

$$Ph_i(y) = \sum_{l=0}^{L_{\text{máx}}} \sum_{\nu=1}^{N(l)} \left[\frac{4\pi}{2l+1} \sum_{\mu=1}^{M(l)} C_1^{\mu\nu} \hat{K}_1^{*\mu}(h_i) \right] \bullet \hat{K}_1^{\nu}(y)$$

onde $h_i = (h_i, k_i, l_i)$ representa os índices de Miller do plano cristalográfico escolhido; Ψ e γ o sistema de coordenadas da amostra; K_1^{μ} e K_1^{ν} os harmônicos esféricos de superfície simétricos do cristal e da amostra, respectivamente. Os termos harmônicos descritos (L,m,n) utilizados no programa GSAS são bem descritos por Bunge⁽⁶⁾.

Tabela 4: Refinamento da orientação preferencial por harmônicos esféricos.

$\omega = 0$		$\chi = 89,99$		$\phi = 0$	
Termos harmônicos esféricos (L,m,n) e coeficientes $k_L^m(h)$ e $k_L^n(\gamma)$:					
(4,0,1)	(4,2,1)	(4,4,1)	(6,0,1)	(6,2,1)	(6,4,1)
6.5677	-65.9741	-53.1958	100.0000	73.4575	0.0163
(6,6,1)	(8,0,1)	(8,2,1)	(8,4,1)	(8,6,1)	(8,8,1)
-0.8878	-45.7889	6.6488	-7.7779	26.7088	47.9523

Tabela 5: Comparação das intensidades das reflexões com e sem orientação preferencial.

Reflexão	Intensidade (%)	
	Al puro sem textura	Chapa laminada e recozida de Al
(111)	100	0,5
(200)	47	25
(220)	22	100
(311)	24	80
(400)	2	2

As quatro figuras de pólo (FP) medidas, (111), (200), (220) e (311), apresentadas na fig 3. O círculo vermelho delimita a região da figura de pólo que foi medida, isto é, 75° . A chapa laminada e recozida de alumínio possui alta orientação preferencial, com espalhamento em torno da orientação (112)<111>. Para exemplificar, a orientação (112)<111> pode ser visualizada em $\Psi=20^\circ$ e $\gamma=90^\circ$ na FP (111), em $\Psi=35^\circ$ e $\gamma=90^\circ$ na FP (200).

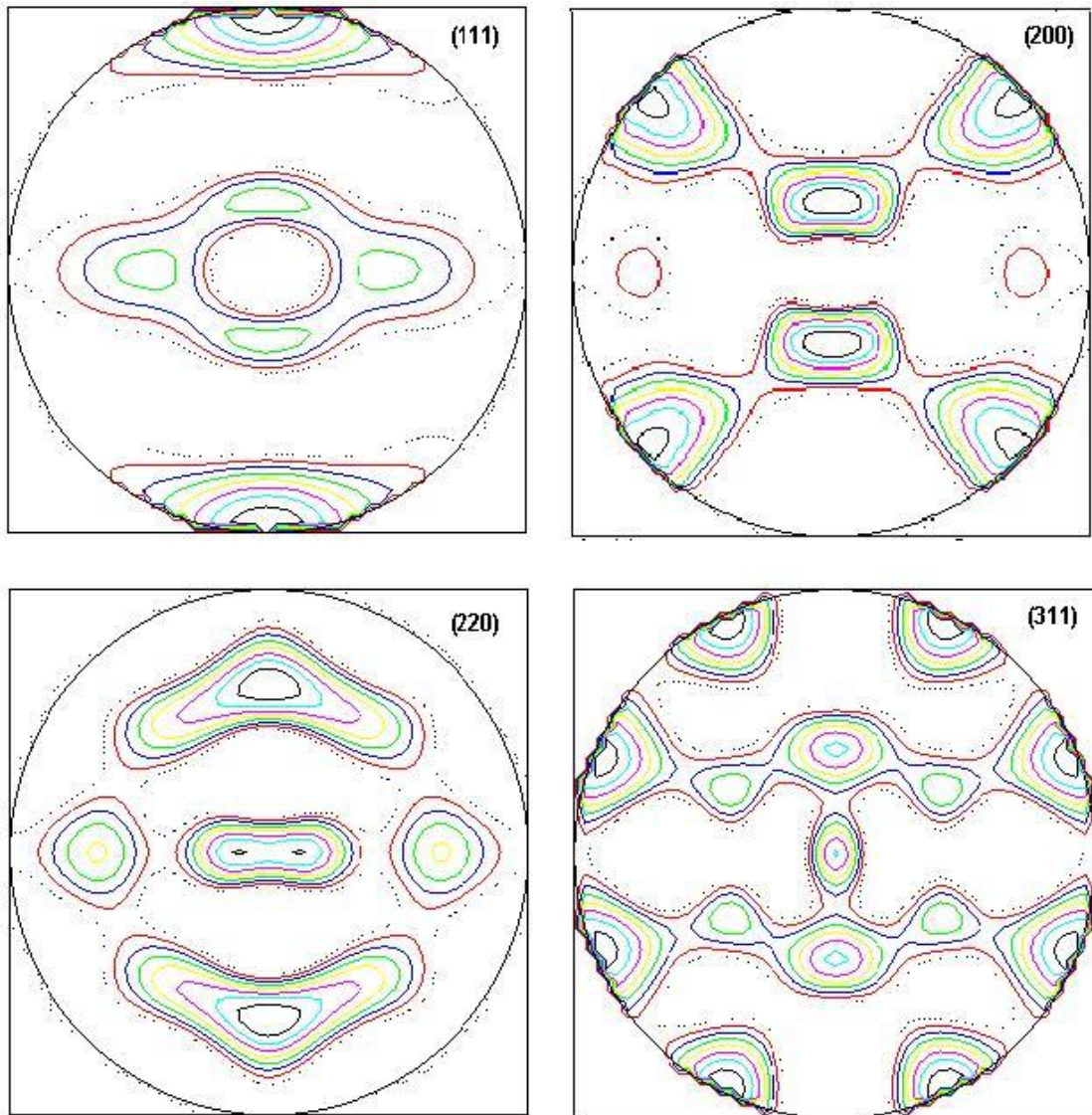


Figura 2: Figuras de pólo calculadas pelo GSAS após refinamento.

Comparando as figuras de pólos medidas e calculadas percebemos que a orientação preferencial $(112)\langle 111 \rangle$ está presente em ambas. Por outro lado, a figura de pólo calculada pelo método de Rietveld apresenta a orientação $(311)\langle 121 \rangle$ que não está presente na FP medida. O refinamento é baseado na medida do espectro que é obtido pela difração somente dos planos paralelos à superfície. Portanto, rotações em torno da normal à superfície produzem o mesmo espectro de difração de raios X, levando à desconsideração da simetria da amostra. Uma vez que o refinamento é conduzido ajustando os valores dos coeficientes C_1^{hkl} com o espectro medido, esta equação permite varias soluções que podem incorrer em erros na determinação destes coeficientes.

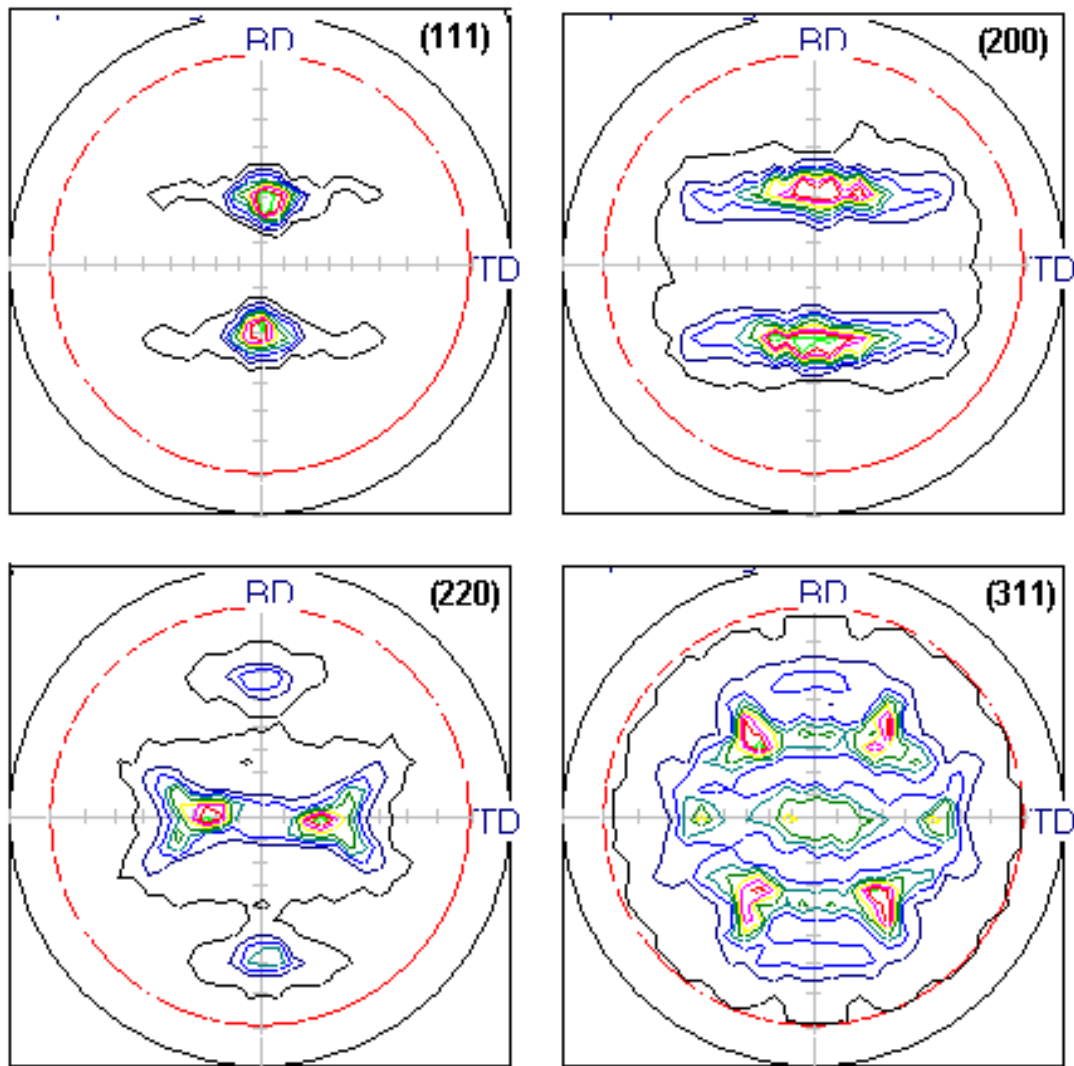


Figura 3: Figuras de pólos medidas da liga de alumínio 6063.

CONCLUSÃO

A obtenção de figuras de pólos calculadas a partir do refinamento do espectro de difração de raios X pode incorrer em erros de orientação cristalográfica preferencial. Isto ocorre porque a medida é restrita aos planos paralelos à superfície sem inferência à simetria da amostra.

AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem o apoio dado pelo Instituto Presbiteriano Mackenzie através do Fundo Mackenzie de Pesquisa – MackPesquisa ao aluno Nilton Inácio Domingues Junior para participar do 19º CBECiMat. Os autores também agradecem

a bolsa PIBIC concedida à aluna Carolina Sayuri Hattori pelo Instituto Presbiteriano Mackenzie e o fornecimento do material utilizado neste trabalho pela Associação Brasileira do Alumínio – ABAL.

REFERÊNCIAS

1. ASM HANDBOOK; ***Properties and Selection: Nonferrous Alloys and Pure Metals***. The Ninth Edition of Metals Handbook, v. 2, 1991.
2. TRAENKNER, F. O.; Factors Affeting the Physical Characteristics of Aluminum Magnesium Silicon Alloy. ***Proceedings of the Second International Aluminum Extrusion Technology Seminar***, Georgia, U.S.A., 1977.
3. Guia técnico do alumínio: Tratamento Térmico: vol. 6 – 3ª ed. – São Paulo : ***Associação Brasileira do Alumínio – ABAL***, 2005.
4. SWEARENGEN, J. C.; The Thermo-mechanical Behavior of 6061 Aluminum-Magnesium-Silicon Alloy. ***Materials Science and Engineering***, vol. 2, p. 103, 1972.
5. ASM HANDBOOK; ***Heat treating***. The Ninth Edition of Metals Handbook, v. 4, 1991.
6. BUNGE H.J. ***Texture analysis in materials science mathematical methods***. 1.ed., Butterworths, 1982.

REFINEMENT BY RIETVELD METHOD OF A ROLLED SHEET Al-Mg-Si 6063 ALLOY WITH PREFERENTIAL ORIENTATION

ABSTRACT

The Rietveld refinement of a sample with preferential orientation was accomplished using data of X ray diffraction of a rolled 6063 aluminum alloy. The refinement of the preferential orientation by spherical harmonic was accomplished using a symmetry of sample mmm (rolling) until the order of 8 and was compared with experimental pole figures. The four pole figures presented indicate a sharp texture of the planes (111), (200), (220) and (311). The calculated pole figures obtained from the refinement of the X ray diffraction spectrum can incur in mistakes of preferential orientation. This happens because the measure is restricted to the planes parallel to the surface without inference to the symmetry of the sample.

Key-words: aluminum; Rietveld; preferential orientation; X-ray diffraction.