

DUCTILIDAD A ALTA TEMPERATURA DE LA ALEACION Al-7Zn-2Mg

JORGE LUIS GONZÁLEZ VELÁZQUEZ, BELISARIO SÁNCHEZ VÁZQUEZ
y JOSÉ GERARDO CABAÑAS MORENO

División de Ingeniería Metalúrgica. Escuela Superior de Ingeniería Química e Industrias
Extractivas (ESIQUIE)
Instituto Politécnico Nacional

Resumen: Se estudió el comportamiento bajo deformación en tensión a alta temperatura de una aleación Al-7Zn-2Mg, previamente laminada en frío. La microestructura del material fue caracterizada antes y después de las pruebas a fin de observar los cambios ocurridos. Las pruebas se realizaron bajo diferentes condiciones de temperatura, velocidad de deformación y tiempo de permanencia a la temperatura de prueba. El estudio mostró que la ductilidad es máxima en el rango de temperaturas de 350 a 400°C para velocidades de deformación de 0.66×10^{-3} a $6.66 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ y tiempo de permanencia de 20 minutos. Los cambios microestructurales, después de la deformación, fueron principalmente recristalización y disolución de precipitados. Se encontró que una microestructura de grano fino y equiaxial con una dispersión homogénea de precipitados favorece la ductilidad en caliente de esta aleación.

HIGH TEMPERATURE DUCTILITY OF Al-7Zn-2Mg ALLOY

Abstract: The tensile deformation behaviour at high temperature of a coldrolled Al-7Zn-2Mg alloy was studied. The material microstructure was characterized before and after testing. The tests were done under different temperatures, strain rates and times of permanency at test temperature. The study showed that the ductility is a maximum in the range of temperatures between 350 and 400°C, for strain rates of 0.66×10^{-3} to $6.66 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ and times of permanency of 20 minutes. The main microstructural changes after deformation were recrystallization and dissolution of precipitates. It was found that a fine grained microstructure and a homogeneous dispersion of precipitates improves the hot ductility of the alloy.

I. INTRODUCCION

Existen varios trabajos en los cuales se ha observado un comportamiento superplástico en aleaciones de tipo Al-Zn-Mg.¹⁻³ En estos trabajos se han empleado aleaciones de composiciones muy similares a la usada en la presente investigación, habiéndose obtenido en algunos casos alargamientos en tensión de hasta 400% aproximadamente.¹

Es evidente que las características inherentes de un comportamiento de alta ductilidad (bajo esfuerzo de flujo y grandes alargamientos de ruptura) serían de interés si pudieran obtenerse en un material comercial y sin que se requiriera un complicado procesamiento termomecánico previo.

Trabajos anteriores^{1,2} parecen indicar que esto es posible en un material deformado en frío, cuando cuenta con una dispersión homogénea de precipita-

dos que cumplen dos funciones: servir de núcleos para el proceso de recristalización e impedir un rápido crecimiento de grano.

El presente trabajo es una investigación encaminada a determinar las condiciones de temperatura, velocidad de deformación inicial, velocidad de calentamiento y tiempo de permanencia (empape) a la temperatura de prueba antes de aplicar la carga para el desarrollo de alta ductilidad en una aleación Al-7Zn-2Mg; asimismo, se aportan datos acerca de los cambios microestructurales (recristalización, tamaño de grano y disolución de precipitados) ocurridos durante el proceso de deformación en caliente.

Los datos reportados serían de utilidad para trabajos posteriores encaminados a profundizar en el estudio de esta aleación. Dichos estudios se justificarían por el hecho de tratarse de una aleación de composición química bastante usual, con buenas propiedades a temperatura ambiente y que, con una alta formalidad en caliente, pudiera ser aprovechada para disminuir los consumos de energía durante su conformado o bien para conseguir formas más intrincadas.

II. ANTECEDENTES TEÓRICOS Y EXPERIMENTALES

1. Generalidades

La habilidad de algunas aleaciones metálicas para fluir de manera semejante a la del vidrio fue reportada en la literatura científica hace aproximadamente cincuenta años, pero el primer reporte de deformación superplástica verdadera en la que se logran alargamientos sin constricciones se atribuye al trabajo de Pearson realizado en Inglaterra en 1934.⁴ Sin embargo, aun cuando este resultado fue subsecuentemente observado en Europa Occidental y los Estados Unidos, el tópico de superplasticidad recibió poca o nula atención hasta 1962, cuando Underwood publicó la descripción del trabajo experimental realizado sobre los materiales superplásticos en la Unión Soviética, en donde se introdujo el término superplasticidad.⁴

La deformación superplástica se refiere a la propiedad de algunas aleaciones metálicas de presentar grandes alargamientos en tensión antes de la ruptura. Aunque no hay una cantidad de alargamiento precisa que defina un requerimiento mínimo para la superplasticidad, los alargamientos logrados son del orden de varios cientos de por ciento. Esto último normalmente ocurre en un estrecho rango de temperaturas y velocidades de deformación; pero existe una forma menos desarrollada de la superplasticidad con meca-

nismos muy similares que puede definirse como ductilidad extrema y que abarca una gama mayor de temperaturas y velocidades de deformación.

La característica más útil de los materiales superplásticos es su habilidad para deformarse a bajos esfuerzos aplicados y dando deformaciones excepcionalmente grandes. Claramente, el formado superplástico es de gran interés, ya que las reducciones en costo son grandes y se provee de gran libertad en el diseño de formas complejas, usando métodos y presiones no posibles anteriormente.

De esta manera el interés en la superplasticidad se ha expandido rápidamente en años recientes con la premisa de que los metales superplásticos tienen una amplia aplicación potencial en muchas operaciones industriales de formado.

2. Requerimientos para la superplasticidad

Existen dos requerimientos principales para la deformación superplástica.¹⁻⁶ El primero es un tamaño de grano muy pequeño y estable, típicamente menor de 10 micras. El segundo es una temperatura de prueba alta, esencialmente del orden de la mitad del punto de fusión del material.

El último requerimiento es usualmente incompatible con el primero; por esto, los materiales superplásticos óptimos tienden a ser aleaciones eutécticas o eutectoides donde el crecimiento de grano es limitado por la presencia de segundas fases, o aleaciones conteniendo una dispersión fina de segundas fases que actúen como refinador de grano. Estas últimas son monofásicas a la temperatura inicial de trabajo en caliente y sufren precipitación inmediatamente después o durante el trabajo a temperaturas progresivamente más bajas. Puede pensarse que la recristalización y la precipitación ocurren simultáneamente y así se inhibe el crecimiento de nuevos granos.

Es necesario aclarar la función separada de los límites intercristalinos y de interfase. Los límites de interfase se mueven lentamente y son los responsables de mantener un tamaño de grano fino y estable.

3. Superplasticidad en Al-Zn-Mg

Se ha mostrado^{1,2} que aleaciones base aluminio conteniendo zinc y magnesio en proporciones comerciales y con precipitados que promueven la recristalización y limitan el crecimiento de grano, pueden ser superplásticas mediante la aplicación de ciertos tratamientos termomecánicos. Estos consisten básicamente en un envejecido total, seguido de homogeneización con un posterior proceso de deformación en ca-

liente (forja, extrusión o laminación) y finalmente reducción severa por medio de laminación en frío.

Los resultados obtenidos en estos trabajos han mostrado alargamientos mayores de 150%, obtenidos regularmente a temperaturas entre 340 y 360° C y velocidades de deformación de 4×10^{-4} a 10^{-2} s^{-1} . El tamaño de grano recristalizado reportado al final de la prueba para estas aleaciones fue de aproximadamente 15 micras y se menciona que las propiedades superplásticas se pierden arriba de 360° C debido al rápido crecimiento de grano a esa temperatura.

En ninguno de estos trabajos se explican en detalle los cambios microestructurales ocurridos durante la deformación superplástica y no se encontró información acerca de la influencia del procesamiento previo del material en el porcentaje de alargamiento superplástico.

III. DESARROLLO EXPERIMENTAL

El desarrollo experimental consistió en una serie de etapas que se describen a continuación:

1. Caracterización del material

La aleación fue producida por la compañía ALCOA, Inc., y suministrada en forma de una lámina deformada en frío hasta un milímetro de espesor. Se practicaron análisis por vía húmeda y espectrometría de

emisión para conocer con exactitud la composición química. El resultado obtenido fue el siguiente:

Zn	Mg	Si	Fe	Cu	Ti	Al
7.53%	2.06%	0.11%	0.11%	0.007%	0.01%	Balance

(por ciento peso)

El estudio metalográfico se realizó empleando técnicas de microscopía electrónica de barrido, realizando la identificación de fases por medio de microsonda (espectrómetro de rayos X discriminador de energías). La microestructura del material original se muestra en las figuras 1 y 2 y consiste en granos alargados en la dirección de laminación con un tamaño promedio de 0.5 mm, con una dispersión de gran cantidad de precipitados de tamaño y forma variados (1 a 10 micras) los cuales se localizan tanto en el interior de los granos como en los límites de grano (Fig. 3). El análisis por microsonda reportó precipitados binarios del sistema Al-Zn y del sistema Al-Mg y ternarios de los sistemas Al-Zn-Cu y Al-Zn-Mg. Una característica notable es que los ternarios se localizan preferencialmente en los límites de grano y su forma es alargada con tamaño de 15 micras en promedio, mientras que los binarios se encontraron dispersos homogéneamente y de formas más bien esféricas.

Asimismo, no se encontró evidencia de un tratamiento posterior a la laminación en frío ni de recristalización. Para los estudios en el microscopio

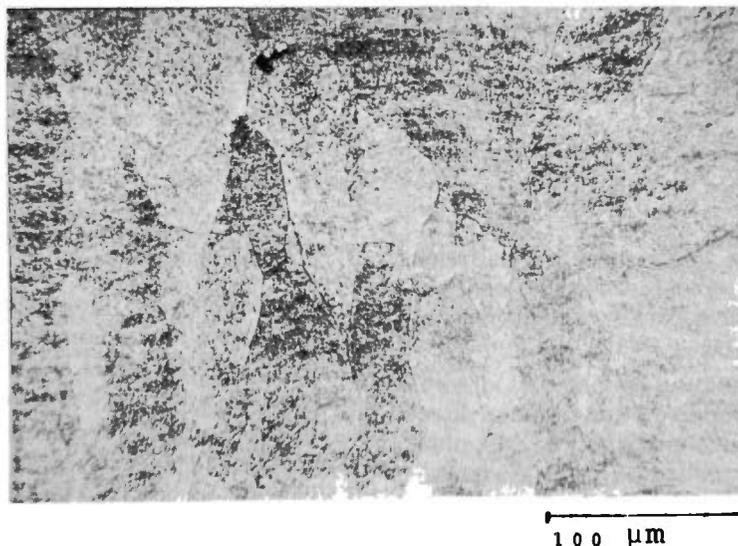


Fig. 1. Microestructura del material original.

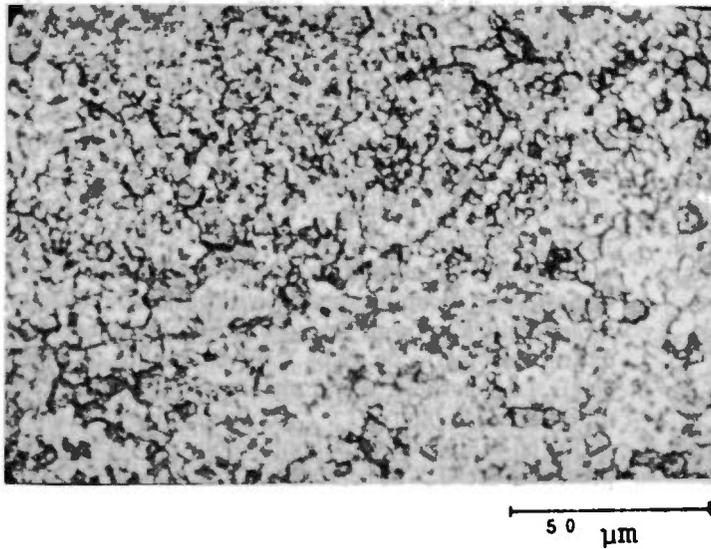


Fig. 2. Microestructura del material original.

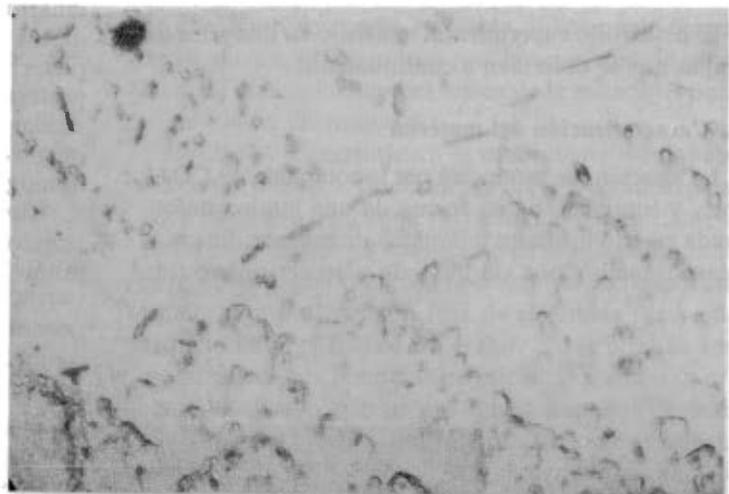


Fig. 3. Precipitados en límite de grano

electrónico de barrido se emplearon probetas recién fracturadas y probetas pulidas, utilizando en estos casos NaOH como reactivo para revelar los detalles microestructurales.

Las propiedades mecánicas a temperatura ambiente que se evaluaron fueron la dureza, el límite de cedencia (σ^0) y el alargamiento de ruptura (Δl), obteniéndose los siguientes resultados:

Dureza, 140 VHN; σ^0 , 425.1 MPa;
 Δl , 0.6%

2. Pruebas de tensión

Se utilizó una máquina *Instron* modelo TMCL. Como cámara de calentamiento se usó un horno de resistencias de Nicromel, capaz de mantener la temperatura de prueba en $+2^\circ\text{C}$ sobre una distancia de 60 a 80 milímetros. Para las pruebas se maquinaron probetas con dimensiones de acuerdo a la norma ASTM E-8, con longitud de calibre 30 mm. Las pruebas se desarrollaron dentro del rango de temperaturas de 250 a 475°C , con una velocidad típica de calentamiento de $20^\circ\text{C}/\text{min}$.

Las probetas planas se colocaban en las mordazas de la máquina *Instron*, se introducían dentro del horno previamente montado en la máquina, se aseguraban y se iniciaba el calentamiento cuidando que la expansión del tren de carga no produjese cargas excesivas de compresión sobre las probetas; esto se hacía desplazando manualmente el cabezal de la máquina hasta que la aguja del graficador no indicara carga alguna. Una vez alcanzada la temperatura de prueba prefijada se daba un tiempo de empape, el cual varió entre cero y sesenta minutos.

Cuando la probeta se fracturaba, se suspendía el calentamiento y se retiraba del horno, enfriándola (al aire) lo más rápido posible. De cada probeta se midió el alargamiento y se registró el límite de cedencia. Posteriormente se prepararon muestras para microscopía electrónica de barrido y metalografía óptica.

La primera serie de pruebas se realizó a una velocidad de deformación inicial de $6.66 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, a diferentes temperaturas, conservando constante el tiempo de empape (20 min). Una vez determinado el rango de temperaturas más promisorio, se procedió a realizar pruebas a algunas temperaturas selectas y variando la velocidad de deformación inicial; las temperaturas ensayadas fueron 450°C y 350°C . Más tarde, para estudiar el efecto de la recristalización y disolución de precipitados, se efectuaron pruebas variando los tiempos de empape.

IV. RESULTADOS EXPERIMENTALES

1. Pruebas de tensión

Pruebas preliminares

Con velocidad de deformación inicial de $6.66 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, tiempo de empape de 20 minutos y velocidad de calentamiento de $20^\circ \text{C}/\text{min}$, se realizó la serie de pruebas preliminares dentro del rango de 200 a 475°C . Los resultados obtenidos se muestran en la tabla 1.

TABLA I. Pruebas preliminares de tensión.

$$\dot{\epsilon} = 6.66 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$$

tiempo de empape: 20 min.

Prueba	Temperatura °C	σ° MPa	Δl %
1	200	55.59	6.6
2	300	72.10	33.3
3	350	42.51	58.3
4	400	33.52	71.6
5	450	21.26	100.0
6	475	13.89	88.3

En la figura 4 se muestra la forma de las curvas de flujo típicas obtenidas en este grupo de pruebas. De ellas se puede observar cómo la carga llega a un máximo, descendiendo entonces rápidamente para después hacerlo con menor rapidez. Otro aspecto notable de tales curvas (sobre todo a alta temperatura) son las ondulaciones que aparecen en la región plástica, típicas de un proceso de recristalización dinámica.

La fotografía de la figura 5 muestra el aspecto de algunas probetas después de la prueba a alta temperatura. En general se observa un angostamiento continuo hasta alcanzar la zona de fractura, misma que ocurrió en forma dúctil.

Pruebas subsecuentes

De acuerdo con los resultados anteriores, se procedió a realizar otras pruebas variando las condiciones de temperatura, velocidad de deformación inicial y tiempo de empape a fin de determinar la influencia de cada uno de estos parámetros en el alargamiento final en tensión. Los resultados obtenidos se muestran en la tabla 2.

TABLA 2. Pruebas de tensión subsecuentes

Prueba	Temp. °C	$\dot{\epsilon}$ $\text{s}^{-1} \times 10^{-3}$	Tiempo de empape min.	σ° MPa	Δl %
1	450	0.66	20	8.99	100.0
2	450	3.33	20	15.53	120.0
3	450	6.66	20	13.89	100.0
4	450	3.33	10	14.71	98.3
5	450	3.33	30	12.79	103.0
6	375	0.66	0	26.98	88.0
7	375	0.33	30	20.44	86.6
8	350	3.33	20	34.83	40.0
9	350	3.33	60	42.51	100.0
10	350	0.66	0	26.98	75.0
11	350	1.33	0	34.34	65.0
12	350	0.33	0	22.89	78.0
13	350	0.33	30	24.53	103.3
14	325	0.66	0	49.54	55.0
15	325	0.66	30	30.24	57.0

2. Observaciones microestructurales

La microestructura del material original se mostró en las figuras 1 a 3. Esta microestructura cambia notablemente por el efecto de la temperatura y la defor-

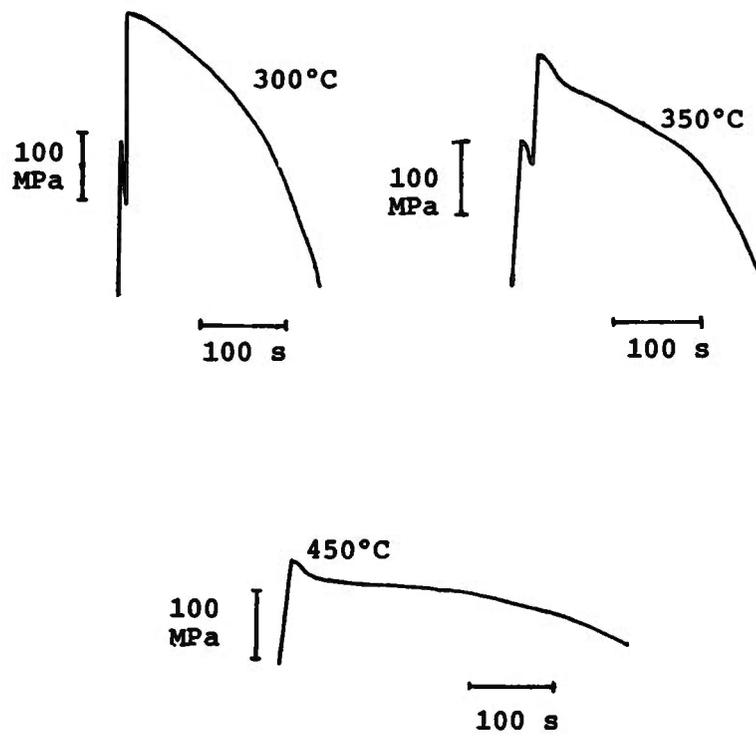


Fig. 4. Curvas de flujo típicas (esfuerzo contra tiempo) para distintas condiciones de prueba.

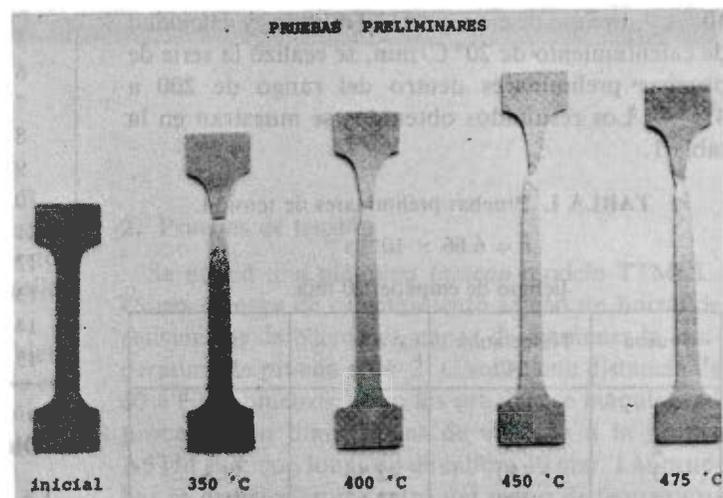
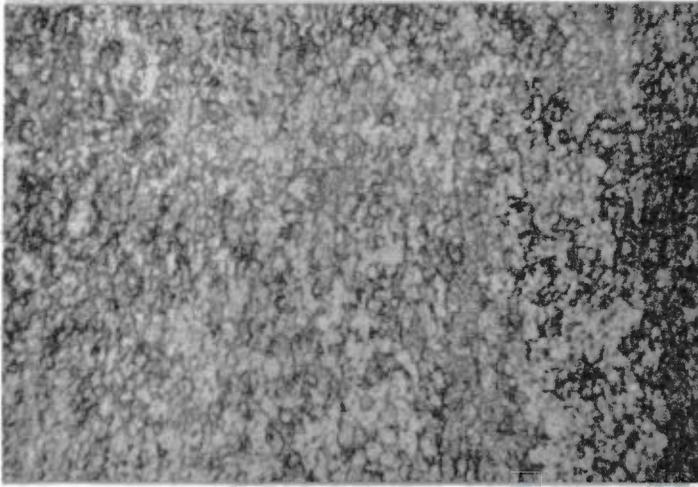
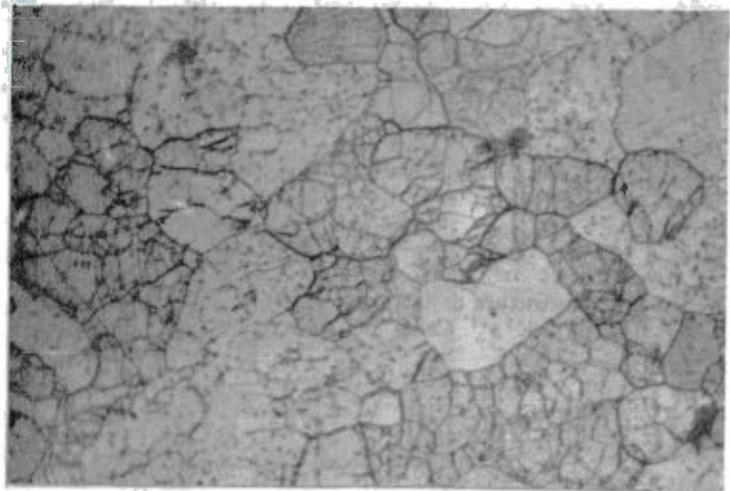


Fig. 5. Probetas después de la prueba a alta temperatura.



10 μm

Fig. 6. Microestructura de la probeta deformada a 350°C y $6.66 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$.



10 μm

Fig. 7. Microestructura de una probeta deformada a 450°C y $6.66 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. Cerca de la zona de fractura.

mación. La figura 6 muestra la microestructura de una probeta deformada a 350°C, mientras que la figura 7 muestra la correspondiente a una probeta deformada a 450°C, ambas para una velocidad de deformación inicial de 6.66×10^{-3} y tiempo de empape de 20 minutos. Nótese cómo a 450°C se tiene una recrystalización completa e incluso crecimiento de

grano, pero no así para la prueba a 350°C, donde todavía se puede apreciar una condición de granos deformados cerca de la zona de fractura. Asimismo, si se comparan las microestructuras de una probeta ensayada a 350°C y velocidad de deformación igual a $6.66 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ (Fig. 6) con una deformada a la misma temperatura pero con una velocidad de deforma-

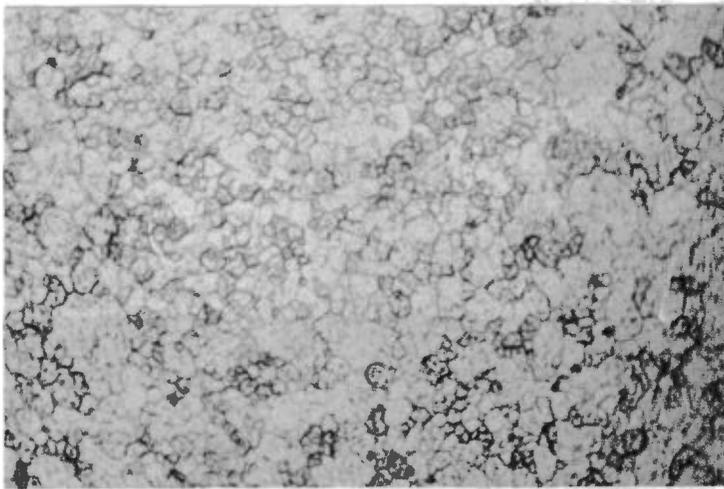
ción diez veces menor ($0.66 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$) mostrada en la figura 8, es evidente la diferencia ya que a menor velocidad de deformación se observa una microestructura de granos finos y equiaxiales, aun en la zona de fractura.

Otro rasgo relevante se refiere a la cantidad de precipitado presente después de la prueba. El material original contiene una gran cantidad de precipitados tanto en el límite de grano como en el interior de ellos (Figs. 1 a 3). La cantidad de precipitados decrece conforme aumenta la temperatura (Fig. 6) y es prácti-

camente nula para las pruebas a 450°C (Fig. 7). También hay una tendencia clara a disminuir su tamaño por efecto de la disolución.

El análisis por microsonda de los precipitados se realizó directamente sobre la superficie de fractura (Fig. 9) y reveló composiciones de los mismos cercanas a $\text{Mg}_2\text{Zn}_{11}$ y a $\text{Mg}_3\text{Zn}_3\text{Al}_2$, siendo estos últimos más comunes en las probetas fracturadas a altas temperaturas.

Los estudios fractográficos de las probetas que exhibieron ductilidades mayores del 50% demostraron



10 μm

Fig. 8. Microestructura de una probeta deformada a 350°C y $0.66 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. Cerca de la zona de fractura.

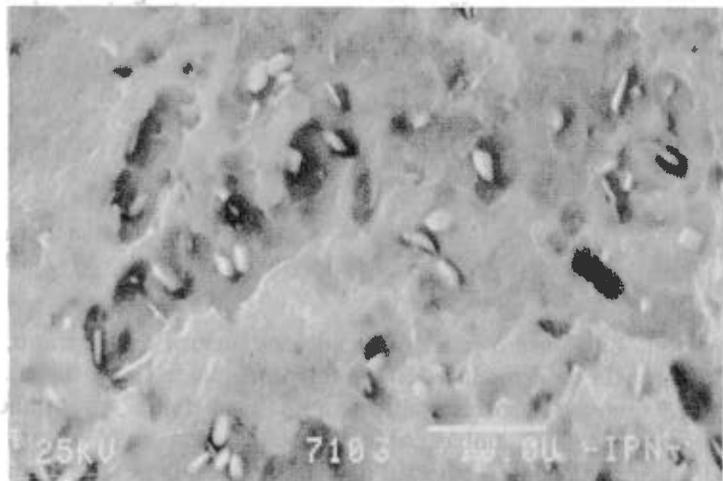


Fig. 9. Precipitados en la superficie de fractura. El marcador corresponde a 100 micras.

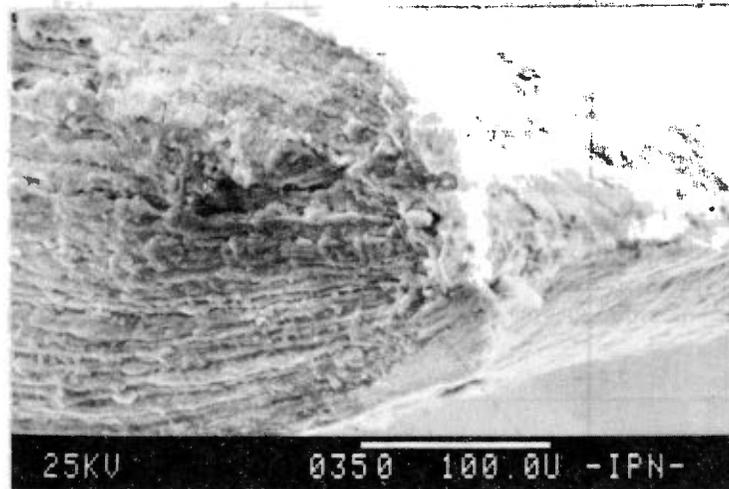


Fig. 10. Fractura a bajos aumentos de una probeta deformada a alta temperatura. El marcador corresponde a 100 micras.

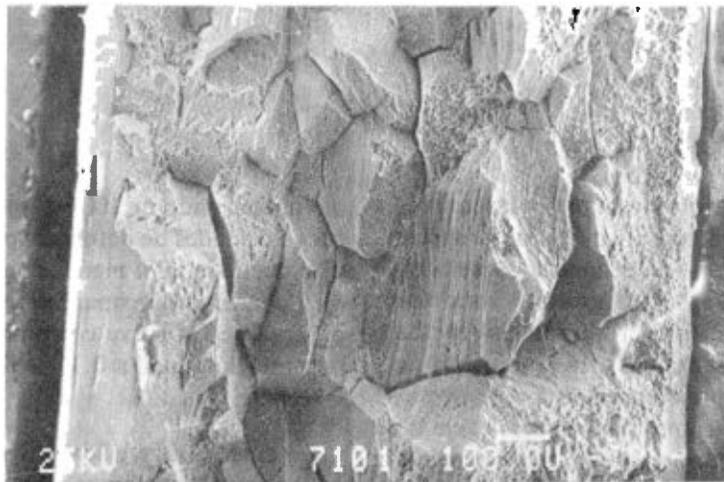


Fig. 11. Fractura del material original. El marcador corresponde a 100 micras.

que la fractura ocurre dúctil (Fig. 10), en cambio, la fractura del material laminado en frío es preferentemente frágil e intergranular (Fig. 11).

V. DISCUSIÓN DE LOS RESULTADOS

Los resultados obtenidos en el presente estudio indican un máximo de ductilidad en pruebas a 450°C con velocidades de deformación iniciales de $3.33 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ (ver tabla 2). Sin embargo, la magnitud de la

ductilidad observada no puede considerarse aún de orden superplástico. Esto, de hecho, sería inesperado ya que a esta temperatura se disuelve la mayor parte de los precipitados y comienza a ocurrir crecimiento de grano (Fig. 7). Sin embargo, ductilidades muy próximas a las obtenidas a 450°C se obtuvieron a 350°C con velocidades de deformación menores ($0.33 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$), o bien con empape, encontrándose en estos casos una microestructura de granos finos recristalizados y conservando una cantidad apreciable de precipitados.

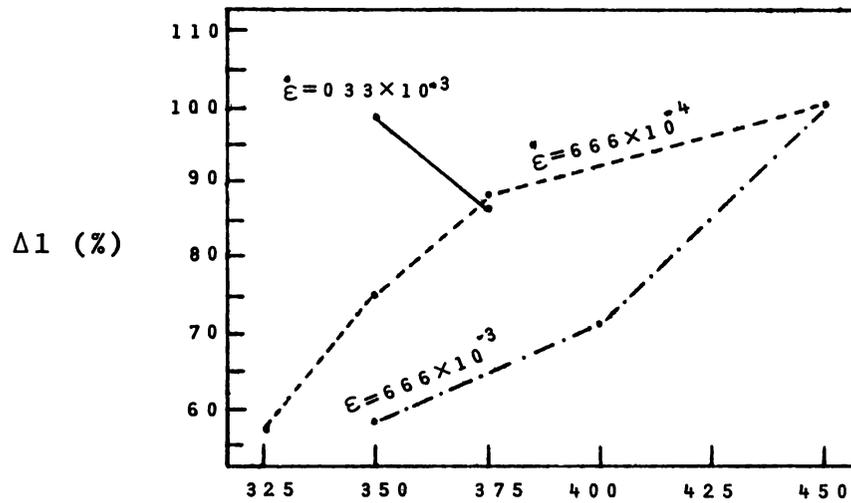


Fig. 12. Efecto de la velocidad de deformación y la temperatura en la ductilidad; a mismos tiempos de empape (20 minutos).

Como resultado de las observaciones microestructurales y los estudios fractográficos de las probetas ensayadas a 450 y 350°C, se ha encontrado que la alta ductilidad observada a 450°C está asociada más bien con un reblandecimiento producido por la alta temperatura, la recrystalización y la disolución de precipitados; mientras que en pruebas a la temperatura de 350°C, las condiciones tienden más hacia las características de un comportamiento superplástico, es decir, grano fino y equiaxial, presencia de precipitados y desarrollo mínimo de constricción.

La obtención del grano fino es producto de la recrystalización sufrida durante la deformación. Algunos detalles de este proceso y su influencia en la ductilidad a alta temperatura pueden ser observados si se analizan los siguientes efectos:

Velocidad de deformación y temperatura

Estos efectos se muestran en la Fig. 13 (construida de datos tomados de las tablas 1 y 2). En ella se tiene que el alargamiento en tensión aumenta con la temperatura, alcanzando aparentemente un valor máxi-

mo aproximado de 100%; sin embargo, para menores velocidades de deformación se consiguen las mismas ductilidades a menor temperatura, aunque también con un límite aparente, ya que, como se puede observar, en la curva correspondiente a velocidad de deformación igual a $0.33 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ el efecto parece invertirse.

Lo anterior es explicable, ya que a alta temperatura la recrystalización es muy rápida y el crecimiento de grano ocurre con facilidad al no haber partículas de segunda fase que lo limiten; mientras tanto, a bajas temperaturas y velocidades de deformación menores, se puede conseguir una recrystalización total conservando por lo menos parte de los precipitados. El hecho de no alcanzar altas deformaciones podría deberse al estado inicial del material, especialmente la cantidad de deformación en frío y tamaño y cantidad de precipitados.

Tiempo de empape

En general, para todas las pruebas, dar un tiempo de empape antes de aplicar la carga mejoró la ductili-

dad como puede apreciarse en la figura 13 (construida a partir de datos de la tabla 2). Observaciones de la microestructura llevan a pensar que el efecto favorable del empape en la ductilidad a menores temperaturas (350°C) consiste en permitir que la recrystalización progrese adecuadamente hasta proveer un grano fino y estable, pero conservando los precipitados al ser su disolución más lenta a la menor temperatura.

Es conveniente remarcar que en el presente trabajo no se observó un comportamiento superplástico a pesar de haber ensayado un buen número de combina-

ciones de velocidades de deformación y temperatura; de ahí que se sugiera enfocar la búsqueda de superplasticidad analizando y variando el procesamiento previo del material. Este hecho puede encontrar razón en los dos argumentos siguientes: primero, trabajos previos¹⁻² donde sí se ha observado la superplasticidad, reportan que el material ha sido introducido a las pruebas en una condición de homogeneización previa y con alta deformación en frío a fin de obtener subgranos de alrededor de 0.5 micras de tamaño y favorecer la precipitación durante el calenta-

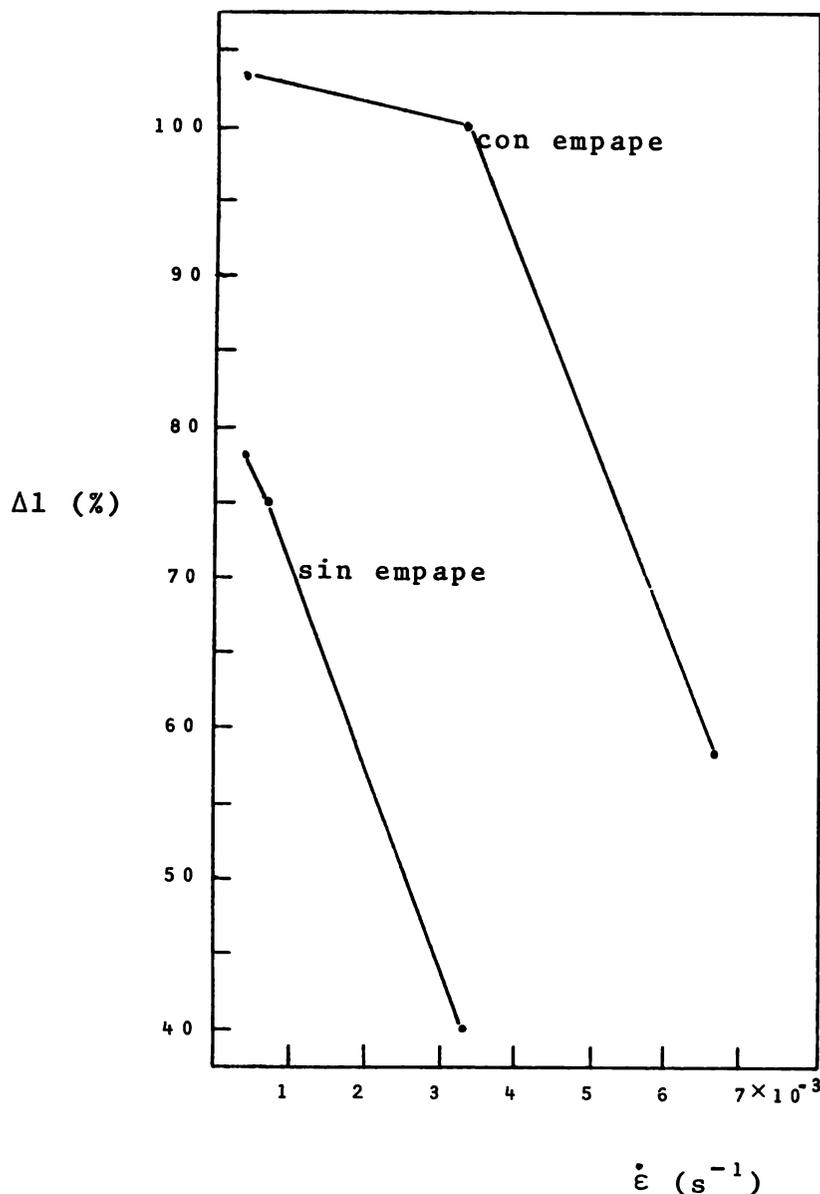


Fig. 13. Efecto del tiempo de empape en la ductilidad a 350°C.

miento y el empape previos a la prueba; segundo, el tamaño de grano es usualmente estabilizado por una gran fracción en volumen (30 a 40%) de partículas de segunda fase,⁵ con tamaño aproximadamente igual al de grano recristalizado.

Es evidente que ambas características no se encuentran en el material usado en este trabajo y que son muy difíciles de conseguir durante la etapa de deformación, aun cubriendo una amplia gama de combinaciones de velocidad de deformación y temperatura. Es más probable obtener estas condiciones mediante un tratamiento previo adecuado del material.

Por lo anterior es necesario modificar la condición inicial del material usado en la experimentación si se desea conseguir una ductilidad mayor. De acuerdo a las observaciones realizadas en este estudio, dichas condiciones deben implicar las siguientes etapas: (1) tratamiento de envejecido total a fin de obtener la mayor cantidad de precipitados posible; (2) homogeneización que permita obtener precipitación durante la deformación, y (3) fuerte deformación en frío que origine un tamaño de grano muy fino y menor al tamaño de los precipitados.

VI. CONCLUSIONES

1. Es posible obtener alargamientos en tensión de 120% en la aleación Al-7Zn-2Mg deformada en frío y envejecida, pero sin llegar a un comportamiento propiamente superplástico.
2. La ductilidad en caliente es mejorada para todas las velocidades de deformación y temperaturas en-

sayadas, cuando se dan tiempos de empape mayores a 20 minutos y menores a una hora.

3. Se puede obtener por recristalización un tamaño de grano fino y equiaxial (aproximadamente 10 micras) durante deformación a alta temperatura.
4. El crecimiento de grano y disolución de precipitados asociados con el trabajo en caliente provocan que la ductilidad no pueda incrementarse en el rango de temperaturas y velocidades de deformación usadas en esta experimentación.
5. Los cambios microestructurales descritos sugieren que se debe estudiar el tratamiento previo del material para diseñar un proceso que permita observar un comportamiento superplástico en la aleación Al-7Zn-2Mg.

Reconocimientos

Agradecemos al Dr. R. Rioja (ALCOA) la donación de la aleación de aluminio. Uno de los autores (J.L.G.V) agradece al CONACyT y al IPN (PIFI) el apoyo recibido durante la realización de este trabajo. El trabajo fue realizado bajo los auspicios de la DGI-IPN, proyecto clave 84071 (1984).

REFERENCIAS

1. Bricknell, H. y J.W. Edington. *Met. Trans.*, 7A (1976), 153.
2. Towler, B., C. P. Cutler y J.W. Edington. *J. Inst. Metals*, 101 (1973), 332.
3. Alden T. H.: "Review of Topics in Superplasticity". *Treatise on Materials Science and Technology*, Vol. 6. Ed. R. J.
5. Edington J. W., *Met. Trans.*, 13A (1982), 703.
6. Arieli A. y A. K. Mukherjee. *Met. Trans.*, 13A (1982), 717.