Eleventh LACCEI Latin American and Caribbean Conference for Engineering and Technology (LACCEI'2013) "Innovation in Engineering, Technology and Education for Competitiveness and Prosperity" August 14 - 16, 2013 Cancun, Mexico.

Resitencia a la Corrosion de Aceros Inoxidables Super Duplex Tratados Termicamente

Linda Gil

Universidad Nacional Experimental Politecnica "UNEXPO", Centro de Estudios de Corrosion y Biomateriales, Puerto Ordaz, Edo. Bolivar, <u>lgil@unexpo.edu.ve</u>

Cosme Aponte

Universidad Nacional Experimental Politecnica "UNEXPO", Centro de Estudios de Corrosion y Biomateriales, Puerto Ordaz, Edo. Bolivar, cosmejan@gmail.com

ABSTRACTS

The duplex stainless steel has a good combination of mechanical properties and corrosion resistance, but when exposed to temperatures between 300 and 650 ° C and precipitates form intermetallic phases which impair the corrosion resistance. The objective of the present investigation is to evaluate the influence of heat treatment on the corrosion resistance superduplex stainless steel SAF 2507. For this we used a 32 factorial experimental design in which the parameters evaluated were the heat treatment temperature and treatment time. Microstructural characterization was performed by microscopy coupled with image analysis and corrosion was evaluated by the technique of cyclic potentiodynamic polarization curves. The significance of the results was assessed by analysis of variance (ANOVA) and the optimization of the parameters was done through the analysis of response surfaces. The results indicate that in the selected operating range, with increasing temperature and time of exposure, the material undergoes an increase in the sigma phase formation and an increase of the corrosion current density, indicating that the material is more susceptible to corrosion.

RESUMEN

El acero inoxidable dúplex posee una buena combinación de propiedades mecánicas y resistencia a la corrosión, pero cuando se expone a temperaturas entre 300 y 650°C se forman precipitados y fases intermetálicas que perjudican la resistencia a la corrosión. El objetivo de la presente investigación es evaluar la influencia del tratamiento térmico en la resistencia a la corrosión del acero inoxidable superduplex SAF 2507. Para ello se empleo un diseño experimental factorial 3², en el que los parámetros evaluados fueron la temperatura de tratamiento térmico y el tiempo de tratamiento. Se realizo la caracterización microestructural por microscopia óptica acoplada con análisis de imagen y se evaluó la corrosión a través de la técnica de curvas de polarización cíclica potenciodinámica. La significancia de los resultados se evaluó por análisis de varianza (ANOVA) y la optimización de los parámetros se hizo mediante el análisis de superficies de respuesta. Los resultados indican que en el rango de trabajo seleccionado, cuando se incrementa la temperatura y el tiempo de exposición, el material experimenta un incremento en el porcentaje de formación de fase sigma y un aumento de la densidad de corriente de corrosión, indicando que el material es más susceptible a la corrosión.

Palabras claves: corrosion, acero inoxidable, Anova, duplex, tratamiento

1. INTRODUCION

Los aceros superduplex fueron diseñados especialmente para ser utilizados en medios marinos, químicos y aplicaciones petrolíferas, en los que se requiere elevadas características mecánicas y resistencia a la corrosión en

11th Latin American and Caribbean Conference for Engineering and Technology

medios extremadamente agresivos. Estos aceros tienen muy buena combinación de propiedades mecánicas y resistencia a la corrosión (Soon,2011; Han 2010). Sin embargo, tienen el problema que se forman muchos tipos de precipitados y fases intermetálicas cuando se exponen a temperaturas mayores de 300°C, tales como las fases, α', G, R, π, τ, ε, entre 300 y 650°C, y las fases σ, χ , γ ', o carburos y nitruros de cromo por encima de 650°C, cuyas fases perjudican tanto a la resistencia a la corrosión como las propiedades mecánicas del mismo generando fallas una vez puesto este en servicio, que se traducen en el uso inadecuado del recurso humano, materia prima, equipos, etc., y a su vez elevan los costos de fabricación o producción cualquiera fuese el caso. Se presume que las posibles causas por las cuales se forman las fases mencionadas en los aceros duplex de tercera generación es por la cantidad importantes de elementos aleantes alfágenos y gammagenos que poseen en su composición química y que cuando son tratados a temperaturas mayores de 300°C precipitan formando fases intermetalicas en grandes cantidades y que no son deseadas en la estructura del acero superduplex SAF 2507.(Soon 2011).Es importante, destacar que para evitar la presencia de estas anomalías en el acero superduplex cuando es sometido a condiciones de servicio, se debe tener un cuidado muy riguroso en cuanto a los parámetros de operación. Por las razones mencionadas anteriormente, en el Centro de estudio de Corrosión y Biomateriales de la Universidad Nacional Experimental Politécnica Antonio José de Sucre Vicerrectorado puerto Ordaz, se planteo una investigación con el fin de evaluar la influencia de la temperatura y tiempo de tratamiento térmico sobre la resistencia a la corrosión y propiedades mecánicas de los aceros inoxidable superduplex SAF 2507

PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL

2.1. Fabricación de probetas

El estudio se realizó con muestras cilíndricas, obtenidas de una barra cilíndrica de acero inoxidable SAF 2507 donadas por la empresa Sandvik de Venezuela.

2.2. Tratamiento Térmico

Las muestras en estado de colada fueron tratadas térmicamente a temperaturas de 650, 775 y 900°C por tiempos de 1, 3 y 5 horas contadas una vez alcanzada la temperatura requerida en un horno Thermolyne 48000. Alcanzada dicha temperatura se mantuvo el horno con las probetas en su interior durante el tiempo escogido y cumplida esta a la temperatura seleccionada se extrajeron las muestras del horno y se enfriaron en aire.

Para cumplir con los objetivos planteados, se utilizo la metodología de diseño experimental eligiendo un diseño factorial 3^2 . Este diseño tiene la ventaja de que además de permitir analizar los efectos principales de las variables de proceso sobre las respuestas de calidad, se tiene que el análisis de las interacciones entre las variables permite vislumbrar relaciones no lineales en caso de que existan.

Para este diseño, el número de experiencias es de 9 por triplicado para un total de 27 condiciones. En la Tabla 1, se observan los intervalos de trabajo para las variables evaluadas.

	NIVELES			
VARIABLES	Bajo	Medio	Alto	
Tiempo de tratamiento (h)	1	3	5	
Temperatuta de tratamiento (°C)	650	775	900	

Tabla 1: Variables y niveles del diseño factorial 3²

2.3. Caracterización microestructural de la aleación en condición de colada y luego del tratamiento térmico

11th Latin American and Caribbean Conference for Engineering and Technology

La caracterización se llevó a cabo mediante la técnica de microscopia óptica con análisis de imágenes a las secciones transversales, para determinar la distribución y morfología de las fases presentes en muestras en condición de colada y luego de ser tratadas para las 9 condiciones del diseño experimental evaluado. Todas las muestras fueron preparadas terminando con el uso del reactivo Kalling para poder revelar la microestructura para una posterior observación y metalografía cuantitativa en un microscopio óptico Nikon Eclipse adaptado a un analizador de imágenes LECO- IA32.

2.4. Ensayos de corrosión picadura, acuerdo a la norma ASTM G-61-86

Se evaluó la resistencia a la corrosión picadura mediante la técnica de polarizacion cíclica potenciodinámica, se utilizó un medio que simula el agua de mar preparado con agua destilada al 3% en peso de NaCl. Este método considera realizar mediciones de polarización potenciodinámica a fin de determinar la susceptibilidad de un material metálico a corrosión localizada (picadura y corrosión hendidura). En esta técnica un espécimen metálico es anódicamente polarizado desde su potencial de corrosión (Ecorr) hasta que la densidad de corriente alcanza algún valor predeterminado y en este punto la dirección de barrido de potencial es reversada, y el metal es polarización. Se empleo un barrido de potencial que inicio en -250mV respecto al potencial de corrosión y finalizó a 5mA/cm2. La velocidad de barrido fue de 0.5 mV/s en el barrido anódico y de 0.17 mV/s en la dirección catódica. El potencial se reversó después de alcanzado el potencial de picadura. Para el montaje se utilizo un electrodo de referencia calomel, y contra electrodos de grafito. Mediante la aplicación de esta técnica, se determinaron de la curva de polarización tres parámetros importantes: el potencial critico de picadura (Epic), el potencial de protección o repasivación (Epro) y la diferencia entre Epic y Ecorr(Epic-Ecorr).

2.5. Tratamiento estadístico de los datos

A fin de determinar el efecto de las variables del proceso investigadas (tiempo y temperatura de tratamiento térmico) así como, los intervalos de trabajo de las mismas que optimizan la microestructura y la resistencia a la corrosión de la aleación de acero inoxidable duplex SAF 2507, se utilizaron tres métodos diferentes de análisis estadístico para interpretar los datos: 1) Análisis de Varianza (ANOVA) para determinar diferencias significativas en las respuestas de cada variable independiente y sus interacciones. 2) Efectos significativos sobre las respuestas a través de gráficos de Paretto. 3) Superficies de respuesta e isocuantas para definir intervalos adecuados de trabajo. Las respuestas de calidad evaluadas mediante el diseño experimental fueron: potencial de corrosión (ECorr), potencial de picadura (Epic), potencial de protección (Epro), densidad de corriente de corrosión (icorr), fracción volumétrica de fase sigma, ferrita y austenita. El tratamiento estadístico de los datos se realizó con el programa STATGRAPHICS PLUS. Los resultados y análisis se presentarán primero para cada respuesta en forma separada y luego se combinaron estos resultados, para así decidir intervalos de trabajo en las variables de proceso, que garanticen que las respuestas de calidad se mantengan en rangos óptimos o por lo menos aceptables en condiciones de servicio.

2. RESULTADOS Y DISCUSION

2.1 Caracterizacion microestructural

La Figura 1, muestra una fotomicrográfica por microscopia óptica tomada con aumento de 1000x a la estructura inicial del en condición de colada. En esta se observan únicamente dos fases, la ferrita que está representada por las zonas oscuras y la austenita por las zonas claras, lo cual se corresponde con la microestructura del acero duplex en estado de colada. También se evidencia en dicha Figura que los granos de austenita y ferrita no posen una morfología de granos equiaxiales lo que es también típico de este tipo de aceros.



Figura 1: Fotomicrografía del acero sin ser tratado térmicamente

En la tabla 2, se presentan la fracción volumétrica de las fases austenita, ferrita y fase sigma, siendo esta ultima la fase de más importancia en este estudio. Se observa que comienza aparecer y a incrementarse esta fase en las muestras tratadas térmicamente con respecto al estado de colada. Ahora bien en la tabla 2, se aprecia claramente que la precipitación de fase sigma ocurre en mayor porcentaje a medida que se aumenta el tiempo y la temperatura de tratamiento térmico, en este caso a 5 horas y 900°C. También es importante resaltar que cuando el acero fue tratado a mayores condiciones de temperatura y tiempo, aumento el porcentaje de austenita alcanzando valores muy cercanos al obtenido en la probeta sin ser tratada térmicamente 60%, mientras que la ferrita disminuyo la fracción de volumen desde 40% hasta desaparecer totalmente con el aumento de la temperatura y el tiempo, lo cual se debe a los procesos difusivos que son fuertemente dependientes de la temperatura, es importante destacar que el mayor porcentaje de austenita y la desaparición total de la ferrita se alcanzo a la temperatura de 900°C y tiempo de 5 horas. Tanto a 600, 775 y 900°C durante 1, 3 y 5h, se observó que la ferrita se descompuso en su totalidad formando una cantidad importante de fase sigma

Condicion	%γ	%α	%σ	% b
650-1-A	56,9	39,98	-	3,12
775-1-A	56	39,91	4,09	-
900-1-A	59	-	39,5	1,5
650-3-A	51,1	39	9,9	-
775-3-A	54	-	36,19	9,81
900-3-A	59,4	-	39,7	1,2
650-5-A	51,3	39,8	8,9	-
775-5-A	54,6	-	35	10,4
900-5-A	59,4	-	39,4	1,2

Tabla 2: Porcentaje de fases del acero duplex después del tratamiento térmico.% γ: Porcentaje de Austenita, % α: Porcentaje de Ferrita, % σ: Porcentaje de Fase Sigma, % b: Porcentaje de elemento desconocido.

La Figura 2 presenta fotomicrográfias de las microestructura a 1000X de muestras tratada térmicamente a 900°C durante 1,3 y 5h respectivamente. Se observa fase sigma con una apariencia de pequeñas islas cercanas y de color cobre. Cuando el acero es tratado térmicamente a 900°C se acelera la precipitación de las fases secundarias, causando una drástica disminución de la fracción en el volumen de la ferrita, por tanto una parte de la ferrita

contribuye a la transformación de la austenita, quien aumenta su volumen, aumentando simultáneamente la fracción del volumen de fase sigma. Es importante destacar que en los aceros duplex ensayados se pueden encontrar precipitados de varios tipos como los carburos de cromo, carburos de hierro y fase sigma, formándose preferentemente en la interfase ferrita austenita debido al mayor contenido de cromo y molibdeno, en estas regiones causado por los fenómenos de segregación.



(C) Figura 2. Fotomicrografías a 1000x (a,b,c) después del recocido a 900°C durante 1,3 y 5h respectivamente. γ: Austenita, σ: Fase sigma

2.2 Determinación de la resistencia a la corrosión de la aleación de acero inoxidable duplex SAF 2507

a) Condicion de colada antes del tratamiento térmico

La Figura 3 representa la curva de polarización cíclica potenciodinámica correspondiente a la aleación de acero inoxidable SAF 2507 en estado de colada. La tendencia termodinámica de la aleación a corroerse en el medio evaluado (NaCl al 3%), se evalúa mediante el potencial de corrosión, siendo este de -166 mV. Otro parámetro importante obtenido es la densidad de corriente de corrosión (i_{corr}), siendo este quien representa cinéticamente la tendencia del acero a ser corroído, este valor es de gran importancia, ya que es una medida de la cantidad de material que se está disolviendo, además de ser proporcional a la velocidad de corrosión. Su valor fue de 0,16 A/cm2. La curva de polarizacion cíclica potenciodinámica, refleja el comportamiento activo-pasivo del acero evaluado, en esta se evidencia la presencia de un "escalón", en la rama anódica de la curva, en el que la corriente aumenta bruscamente, con el barrido de potencial. El potencial donde ocurre dicho aumento se denomina potencial de rompimiento de la capa de óxido ó de picadura (E_{pic}) y es a dicho potencial que comienza la nucleación y la propagación de la picadura. En la Figura 3 también se observa que el lazo de histéresis es pequeño y el potencial de protección se encuentra muy cercano al potencial de rompimiento de capa pasiva, lo

que indica que la aleación en estado de colada se repasiva rápidamente, es decir que la capa pasiva se forma inmediatamente después que es deteriorada, lo cual contribuye a que la aleación sea resistente a la corrosión localizada.



Figura 3: Curva de polarización cíclica potenciodinámica del acero duplex SAF 2507 en estado de colada

b) Determinación de la resistencia a la corrosión de la aleación de acero inoxidable duplex SAF 2507 después del tratamiento térmico

En la Figura 4, se presentan las curvas de polarización cíclica potenciodinámica correspondientes a las diferentes condiciones de tiempo y temperatura.



Figura 4: Curvas de polarización cíclica potenciodinámica correspondientes a las diferentes condiciones de temperatura para 5 horas.

En la tabla 3, se muestran los valores promedios de los parámetros electroquímicos obtenidos a partir de estas curvas de las probetas ensayadas a diferentes temperaturas y tiempos de tratamiento térmico.

11th Latin American and Caribbean Conference for Engineering and Technology

Condición	icorr	Ecorr	Epic	Epro	Ecorr-Epic	Epic-Epro
	(A/cm2)	(mv)	(mv)	(mv)	(mv)	(mv)
650-1-A	0,21	-236,97	913,6	813,93	1150,57	99,67
775-1-A	0,35	-347,20	66,2	-394,63	413,40	460,83
900-1-A	0,36	-377,13	917,1	714,63	1294,23	202,47
650-3-A	0,26	-259,70	931,4	838,10	1191,10	93,30
775-3-A	0,37	-349,60	-42,2	-383,63	307,39	425,84
900-3-A	0,41	-412,20	903,0	732,00	1315,23	171,03
650-5-A	0,26	-225,93	908,3	815,77	1134,20	92,50
775-5-A	0,60	-281,60	-84,3	-365,91	365,91	450,22
900-5-A	1,56	-395,60	885,0	726,80	1280,63	158,23

Tabla 3: Parámetros electroquímicos obtenidos a partir de las curvas de polarización cíclica potenciodinámica.

Se observa que el acero inoxidable presenta valores de potenciales de corrosión a circuito abierto (E_{corr}) más negativos, a medida que el acero es tratado a mayores temperaturas en el intervalo de trabajo seleccionado. Lo cual implica que el acero es menos resistente a la corrosión.

También se observa en la tabla 3, que la densidad corriente de corrosión (icorr) determinada, resulta ser más grande en magnitud a medida que el acero es tratado a mayores temperaturas en el intervalo de trabajo seleccionado, esto permite evaluar la cinética del proceso, ya que la densidad de corriente se correlaciona con la velocidad de corrosión, permitiendo conocer el tiempo en que ocurre esta y por ende poder determinar la vida útil del acero estudiado. El aumento de icorr puede estar directamente relacionada con las posibles celdas galvánicas locales que se forman en el material causadas por las diferencias en la actividad electroquímica que provocan la disolución de la matriz. Esta disolución está asociada al movimiento de electrones y por consiguiente a la corriente de corrosión. Se presume que las partículas de fase sigma y otras fases secundarias se comportan como cátodos, tendiendo a la disolución de las zonas que pierden los elementos que, le confieren la propiedad anticorrosiva al metal, y se comportan como ánodos, constituyéndose el proceso de corrosión galvánica (Soon 2011). Otro factor a considerar es la relación de área, la relación de área catódica a área anódica es un factor crítico en corrosión (Han 2010; Zang 2009)). Tomando en cuenta lo anterior, se asume que cuando ocurre la transformación de ferrita a fase sigma, se lleva a cabo un cambio en la morfología, es decir, las partículas de ferrita se fragmentan en varias partículas y forman gran cantidad de fase sigma aumentando el área catódica. En la tabla 3 se encuentra tabulada la diferencia entre el potencial de picadura (Epic) y el potencial de protección (Epro) de las muestras. Se observa que cuando el acero es tratado entre 650 y 900°C durante 1, 3 y 5 horas, la diferencia entre el potencial de picadura y el potencial de protección aumenta, lo cual indica que el acero es susceptible a formar picadura, sin embargo la corrosión picadura no avanza, ya que el potencial de protección se encuentra cerca del potencial de picadura y es mayor al potencial de corrosión, (área del lazo de histéresis más pequeña), coincidiendo con el tercer criterio utilizado por Norris, (2001).

3.2. Análisis estadístico de las variables seleccionadas para el diseño experimental

Para evaluar si los parámetros de proceso tiempo y temperatura tienen un efecto significativo sobre el porcentaje de fase sigma formado en el acero estudiado, se realizo un análisis de varianza (ANOVA), presentándose en la Figura 5 el grafico de Pareto correspondiente, el cual es un histograma de frecuencia para el porcentaje de fase sigma, allí se observa claramente que los dos factores influyentes significativamente sobre la respuesta son la temperatura y el tiempo cuando estos varían en los intervalos considerados en la presente investigación, ya que

estos cruzan la línea de rechazo a un nivel de confianza de 95%, mientras que la interacción de ambos factores no causa efectos significativos.



Figura 5: Diagrama de Pareto con el resultado de la ANOVA para % fase sigma

En la Figura 6 se presenta la superficie de respuesta del porcentaje de fase sigma en función de la temperatura y el tiempo. En esta superficie se observa que en el intervalo de trabajo seleccionado al aumentar la temperatura de 650 a 900°C el porcentaje de fase sigma aumenta a cualquier condición de tiempo, donde el mayor porcentaje de fase sigma (55%) se obtuvo a la temperatura de 900°C y a un tiempo de 5horas. Los valores óptimos de tratamiento térmico donde se obtiene el menor % de fase sigma y por ende la mejor resistencia la corrosión son a la temperatura de 650°C y un tiempo de 1hr.



Figura 6: Superficie de respuesta del % fase sigma en función de la temperatura y el tiempo

En la Figura 7 se presenta el histograma de frecuencia para el potencial de corrosión (Ecorr) y para la densidad de corriente de corrosión (icorr), donde se observa que para Ecorr la temperatura es el factor que ofrece diferencias significativas, cuando esta varía en los intervalos considerados en la presente investigación. En la Figura 7 se observa que para el icor el efecto de la temperatura, tiempo y la interacción de ambos factores, supera la región de rechazo, o sea, que se espera que sean estas variables las variaciones estadísticamente significativas sobre la densidad de corriente de corrosión, cuando ellas varíen en el intervalo de trabajo que se eligió para cada una en la presente investigación.



Figura 7: Diagrama de Pareto con el resultado de la ANOVA para: A) Ecorr. B) icorr

En la Figura 8 se presentan las superficies de respuesta. Se observa que para Ecorr, en esta superficie se pone en evidenciar que, en el intervalo de condiciones estudiadas, que al aumentar la temperatura de 650 a 900°C el potencial de corrosión se hace más negativo a cualquier condición de tiempo, eso quiere decir que el acero estudiado se hace menos resistente a la corrosión. Como se evidencia en la Figura, el potencial de corrosión más negativo (E=-410 mv), se obtiene a la temperatura de 900°C y 1 hora, mientras que el potencial más noble (E=-210mv) se obtiene a 650°C y entre 1 y 5 horas, lo que implica que bajo estas condiciones el acero es más resistente a la corrosión. Es importante aclarar que aunque entre 1 y 5 horas, el acero posee el potencial de corrosión menos negativo, por cuestiones económicas se recomienda que este sea calentado durante 1 hora. En la Figura 8b correspondiente a icorr se pone en evidencia que, en el intervalo de condiciones estudiadas, al aumentar la temperatura de 650 a 900°C aumenta la densidad de corriente de corrosión a cualquier condición de tiempo. La menor densidad de corriente de corrosión (i_{corr}) es de 0.30 μ A/cm² y se obtiene a una temperatura de 650°C y es quién garantiza el mejor comportamiento del acero evitando, es decir, que la vida útil de este sea más prolongada ya que la densidad de corriente es la más baja y por ende hace que la velocidad de corrosión sea la menor.



Figura 8: Superficie de respuesta para: A) el Potencial de Corrosión (Ecorr) y B) Densidad de Corriente de corrosión (icorr)).

CONCLUSIONES

- A mayor temperatura y tiempo en el rango de trabajo seleccionado, la precipitación de fase sigma es considerablemente mayor alcanzando un valor máximo muy cercano al 40% para 900C y un tiempo de 5 horas.
- Las variables independientes (temperatura y tiempo) tienen un efecto significativo sobre las variables dependientes ($\% \sigma$, icorr, Ecorr). A medida que el acero es tratado a condiciones de tiempo y temperatura mayores, la resistencia a la resistencia a la corrosión disminuye.
- La densidad de corriente de corrosión (icorr) se incrementa con el tiempo y temperatura, por lo que el acero es menos resistente a la corrosión, debido a la presencia de fase sigma.

REFERENCES

- Cvijovic Z. and Radenkovic G. (2006). "Microstructure and pitting corrosion resistance of annealed duplex stainless steel". Corrosion Science, Vol. 48, pp 3887–3906
- Han Y. (2011)." Influence of Sigma Phase Precipitation on Pitting Corrosion of 2507 Super-Duplex Stainless Steel": Materials Science Forum, Vol. 658, pp380-388.
- Norris L.y otros (2001). "Cyclic Polarizatión and Non-Destructive Evaluatión of Laser Induced Surface improvement on Steel and aluminum substrate". *Corrosion*. Paper Nº 01573.
- Soon K., Seok J. and Sun L., "Effects of solution heat-treatment and nitrogen in shielding gas on the resistance to pitting corrosion of hyper duplex stainless steel welds". *Corrosion Science*, Vol.53, pp1939–1947.
- Zang L., Zhang W., Jiang Y., Deng B., Sun D. (2009)."Influence of annealing treatment on the corrosion resistance of lean duplex stainless steel 2101". *Electrochimica Acta*, Vol.54 (23), pp 5387-5 392.

Autorización y Renuncia

Los autores; LINDA GIL Y COSME APONTE autorizan a LACCEI para publicar el escrito en los procedimientos de la conferencia. Ni LACCEI ni los editores no son responsables ni por el contenido ni por las implicaciones de lo que esta expresado en el escrito.

Authorization and Disclaimer

The authors; **LINDA GIL Y COSME APONTE** authorize LACCEI to publish the paper in the conference proceedings. Neither LACCEI nor the editors are responsible either for the content or for the implications of what is expressed in the paper