

# CHAPAS DE AÇO DO TIPO “IF” COM ESTRUTURA ULTRA-REFINADA OBTIDAS POR LAMINAÇÃO SEVERA

André Luiz de Moraes Costa <sup>(1)</sup>

Ana Carmen da Costa Reis <sup>(2)</sup>

Leo Kestens <sup>(3)</sup>

Margareth Spangler Andrade <sup>(4)</sup>

## Resumo

Ligas metálicas com grãos ultra-finos podem ser obtidas por processos baseados na deformação plástica severa do material. O processo *accumulative roll-bonding* (ARB) consiste na sucessiva laminação do material onde cada passe de laminação reduz em 50% a espessura da chapa e o passe subsequente é realizado em duas chapas superpostas obtidas no passe anterior. No presente trabalho, tiras de aço livre de intersticiais “IF” foram processadas por ARB em até 7 passes de laminação a 500°C. A microestrutura do material foi observada por microscopia de força atômica (AFM) e sua dureza foi medida por ensaios de penetração instrumentada. Ao longo do processo o tamanho de grão diminuiu e, depois de 7 passes, o material apresentou grãos quase equiaxiais com tamanho na faixa de 100~200 nm e grãos alongados com 200~400 nm de espessura e 2~5  $\mu\text{m}$  de comprimento. A dureza aumentou 140% após 7 ciclos de ARB. Estes resultados são relacionados com os mecanismos de formação de grãos ultra-finos propostos na literatura. A microscopia de força atômica mostrou-se uma ferramenta poderosa para a caracterização microestrutural de materiais ultra-refinados.

**Palavras-chave:** Grãos ultra-finos; Microscopia de força atômica; Aços livres de intersticiais; Laminação.

## Ultra-Fine Grained If-Steel Strips Obtained by Severe Rolling Process

### Abstract

In this paper the microstructure of interstitial free (IF) steel strips processed by accumulative roll bonding (ARB) were analyzed by atomic force microscopy and its hardness was evaluated by instrumented indentation tests. The ARB process consisted of the repeated warm rolling of IF steel strips where each rolling cycle was applied on two superimposed strips obtained in the previous cycle. During the process the grain size was continuously reduced. After 7 cycles the material showed elongated grains with 2~5  $\mu\text{m}$  in length and 200~400 nm in thickness and a lesser amount of quasi-equiaxial grains with size of 100~200 nm. The hardness increased by 140% after 7 roll-bonding cycles. These results are correlated with the formation mechanisms of ultra-fine grains during ARB proposed at present literature. It was shown that AFM is a powerful tool for the microstructural characterization of ultra-fine grained materials.

**Key-words:** Accumulative roll-bonding; Atomic force microscopy; Ultra-fine grained materials; IF steel.

## I INTRODUÇÃO

Os métodos mais comuns de obtenção de estruturas refinadas utilizados na indústria metalúrgica são processamentos termomecânicos envolvendo seqüências de deformação plástica e tratamento térmico. Em geral, as rotas de processamento termomecânico resultam em ligas com tamanho de grão entre 30 e 250  $\mu\text{m}$ , embora grãos na faixa de 3 a 10  $\mu\text{m}$  possam ser

obtidos através de procedimentos cuidadosamente controlados.<sup>(1)</sup>

Tendo em vista a conhecida relação de Hall-Petch, a diminuição do tamanho de grão até níveis sub-micrométricos (< 1  $\mu\text{m}$ ) oferece a perspectiva de um grande aumento da resistência mecânica de ligas comercialmente disponíveis. Dentre os processos de obtenção de ligas com grãos ultra-finos desenvolvidos até o momento, os mais adequados para futuras aplicações industriais são baseados na deformação plástica severa do material (*severe plastic deformation* - SPD). As técnicas de SPD consistem na aplicação de uma alta deformação por passe ( $\epsilon \sim 1$ )

<sup>(1)</sup> Dr., Pesquisador, Instituto do Milênio de Nanociências – CNPq; Setor de Tecnologia Metalúrgica, Fundação Centro Tecnológico de Minas Gerais – CETEC.

<sup>(2)</sup> M.Sc., Doutoranda em Ciência dos Materiais – Universidade de Ghent, Bélgica.

<sup>(3)</sup> PhD., Professor do Departamento de Metalurgia e Ciência dos Materiais – Universidade de Ghent, Bélgica.

<sup>(4)</sup> Dr., Pesquisador Pleno, Setor de Tecnologia Metalúrgica, Fundação Centro Tecnológico de Minas Gerais – CETEC.

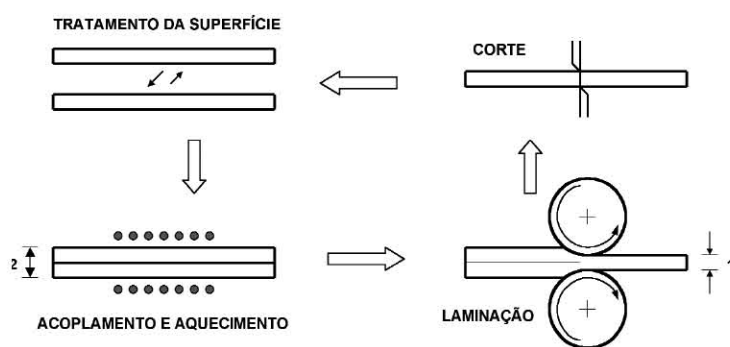


Figura 1. Representação esquemática do processo ARB.

resultando ao final de poucos passes uma deformação verdadeira total  $\varepsilon > 4$ .<sup>(2)</sup>

Recentemente, Saito et al.<sup>(3)</sup> e Tsuji et al.<sup>(4)</sup> desenvolveram um processo SPD para a produção de chapas chamado *Accumulative Roll-Bonding* (ARB). O processo ARB consiste na laminação sucessiva do material, sob uma temperatura moderada, onde cada passe de laminação reduz pela metade a espessura da chapa e o passe subsequente é realizado sobre duas tiras superpostas da chapa obtida na laminação anterior (Figura 1). Comparado com outras técnicas de SPD, o processo ARB é o que apresenta maior potencial para aplicação em grande escala de produção<sup>(5)</sup> e tem sido principalmente investigado como uma rota de processamento de chapas de aços livres de intersticiais (*interstitial free* - IF).<sup>(3-9)</sup>

A estrutura de grãos ultra-finos dos materiais processados por ARB tem sido estudada por técnicas avançadas de microscopia eletrônica de transmissão<sup>(5,6)</sup> e de varredura.<sup>(7,8,10)</sup> No presente trabalho a caracterização microestrutural de tiras de um aço IF processadas por ARB foi realizada através da Microscopia de Força Atômica (AFM). Além disso, medidas de dureza foram feitas utilizando um equipamento de penetração instrumentada.

## 2 PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

Duas tiras medindo 250 mm de comprimento, 25 mm de largura e 1 mm de espessura foram obtidas a partir de uma chapa de aço IF ao titânio (24 ppm C, 21 ppm N, 443 ppm Ti) industrialmente fabricada por processos de laminação a quente,

Reagente	Fórmula	Tempo de ataque (s)
Nital	Ácido nítrico + etanol (solução 1%)	3 a 15
Villela	5ml de ácido clorídrico + 1g de ácido pícrico + 100ml de etanol	3
Água régia	20ml de água dest. + 20ml de ácido clorídrico + 20ml de ácido nítrico + 10ml ácido fluorídrico	15

Tabela 1. Ataques químicos utilizados na preparação das amostras usadas no AFM.

laminação a frio e recozimento. As tiras foram superpostas e laminadas a 500°C com 50% de redução, sem lubrificação. A tira resultante foi dividida ao meio e as superfícies das duas metades foram escovadas a fim de remover-se o óxido formado, e limpas com acetona. As duas metades foram novamente superpostas e laminadas com o processo sendo repetido por 7 vezes. A espessura da chapa inicial é reduzida para  $1/2^n$ , sendo  $n$  o número de ciclos de laminação. Assim, após 7 ciclos a tira final é formada por 128 camadas onde cada camada tem em torno de 7,8  $\mu\text{m}$  de espessura, sendo a deformação total de von Mises  $\varepsilon_{VM} = 5,6$ .

Após cada ciclo, amostras do material foram cortadas e embutidas de maneira que as superfícies preparadas para observação fossem normais à direção transversal. As amostras foram lixadas, polidas com solução de diamante até 0,25  $\mu\text{m}$ , polidas com solução de sílica coloidal de 0,04  $\mu\text{m}$  (OPS) e atacadas quimicamente como indicado na Tabela 1.

As amostras foram observadas por microscopia ótica e microscopia de força atômica em um microscópio de varredura por sonda Dimension 3000™, da Digital Instruments Inc., operado no modo de contato intermitente. Após análise via AFM, as amostras foram novamente polidas com OPS para medição da dureza via ensaios de penetração instrumentada realizados com um ultra-micro durômetro Shimadzu DHU-W201S, de acordo com a norma ISO 14577-1.<sup>(11)</sup> Foram efetuados 5 ensaios em cada amostra sob uma carga de 0,5 N.

## 3 RESULTADOS E DISCUSSÃO

A microestrutura do material antes do processamento é mostrada na Figura 2. Os grãos são equiaxiais com tamanho médio de 15  $\mu\text{m}$ . A Figura 3 mostra uma micrografia ótica do material obtido com 1 passe de ARB e atacado com Nital. Na parte superior da Figura 3a observa-se a linha de ligação entre as duas tiras iniciais, localizada no centro da nova tira. Os grãos são alongados na direção da laminação e com tamanho na faixa de 30 a 100  $\mu\text{m}$  (Figura 3b). Nas bordas (superfície das tiras) o material é bastante deformado e não houve revelação dos grãos (Figura 3c).

Ao longo de todo o processamento

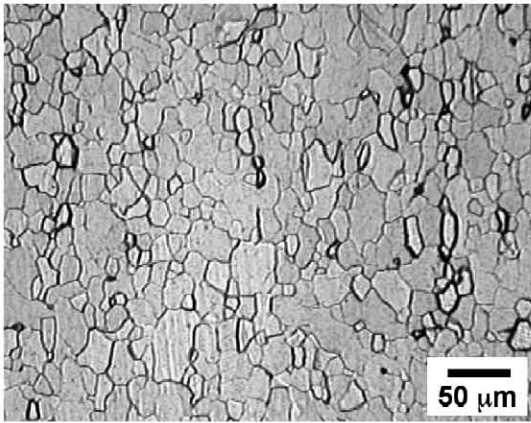


Figura 2. Microestrutura do material antes do processamento. Ataque: Nital.

ocorreu a união (*bonding*) das tiras na laminação, ou seja, após cada ciclo um material compacto foi obtido. Na Figura 4 é mostrada uma tira obtida após 5 passes de ARB composta por 32 camadas, onde cada camada tem aproximadamente 30  $\mu\text{m}$  de espessura. Observa-se que as junções obtidas nos primeiros passes tornaram-se intermitentes e menos visíveis enquanto a linha central, obtida no último passe, é bem evidente (Figura 3a). Isto ocorre porque o que se observa nas junções são inclusões de óxido que, ao longo do processo, vão sendo incorporadas à estrutura. O ataque químico revela a deformação do material em torno das inclusões, porém não é mais possível, através da microscopia ótica, a observação da estrutura dos grãos (Figura 4b).

Para observação por AFM, a preparação metalográfica das amostras compreendeu três diferentes acabamentos: a) ataque com Água Régia, b) somente até polimento mecânico até OPS e c) ataque com Vilella, cf. Tabela I. Na Figura 5 são apresentadas imagens da amostra processada até 6 passes e atacada com água régia. A região observada está equidistante do centro e da superfície da tira e possui grãos muito achatados com espessura entre 100 e 400 nm e comprimento de até 5  $\mu\text{m}$ . Com este tipo de ataque, cada grão apresenta um contraste diferente na superfície, o qual pode estar relacionado com sua orientação cristalográfica.

A Figura 6 apresenta imagens do material processado até 5 passes e cuja preparação metalográfica foi somente até o polimento mecânico com OPS. Neste tipo de preparação os grãos sofreram um ataque químico-mecânico preferencial, de acordo com suas orientações cristalográficas, o que proporcionou

o contraste observado. Esta preparação metalográfica também indica que o processo ARB não induziu uma forte orientação preferencial dos grãos. Observa-se, ainda, que há uma diferença morfológica entre os grãos localizados próximos à superfície (Figura 6b) e os grãos encontrados no interior da tira (Figura 6a). Os grãos superficiais são quase equiaxiais com tamanho inferior a 1  $\mu\text{m}$  enquanto no centro os grãos são alongados com até 3  $\mu\text{m}$  de comprimento.

Imagens de amostras preparadas com o ataque Vilella são apresentadas na Figura 7. Este reagente atacou os contornos de grão permitindo uma excelente visualização da microestrutura. Na Figura 7a observa-se que em regiões no centro da amostra muitos grãos, embora alongados, são pequenos com comprimento entre 0,2 e 1  $\mu\text{m}$ . Nas imagens obtidas apenas com polimento OPS (Figura 5) estes grãos pequenos não foram detectados devido a vários destes contornos de grãos serem possivelmente de baixo ângulo. As imagens da Figura 7b mostram mais claramente a morfologia quase equiaxial dos grãos próximos à superfície, a maioria deles apresentando tamanho em torno de 300 nm de espessura e 1  $\mu\text{m}$  de comprimento.

Segundo Tsuji e colaboradores,<sup>(7)</sup> a estrutura de grãos ultra-finos se forma por subdivisão dos grãos e subsequente recuperação, um processo chamado "recristalização in situ". Nas Figuras 6a e 7a parece, de fato, que muitos pequenos grãos resultam da subdivisão de grãos maiores e, por isso, mantém quase a mesma orientação cristalográfica.

Observações mais detalhadas ao longo da espessura das tiras mostraram que a subdivisão dos grãos ocorre principalmente

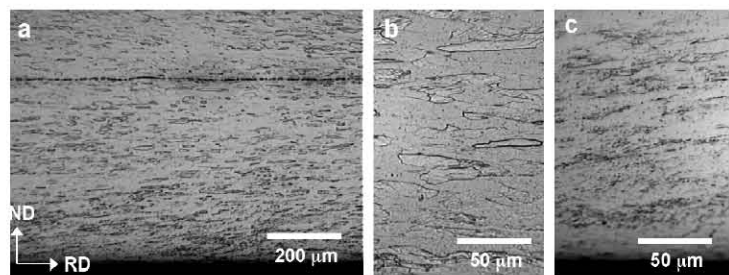


Figura 3. Micrografias óticas da amostra processada por 1 passe de ARB: (a) visão geral, (b) e (c) detalhe das regiões no centro e próximo à superfície. Ataque: Nital. (RD - direção de laminação, ND - direção normal à RD).

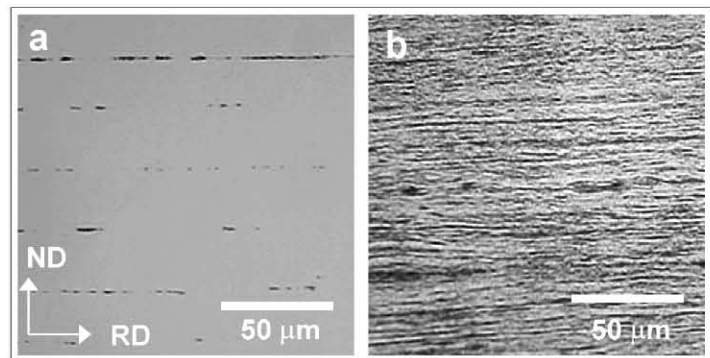


Figura 4. Micrografia ótica da amostra processada por 5 passes de ARB. (a) sem ataque, (b) ataque: Nital.

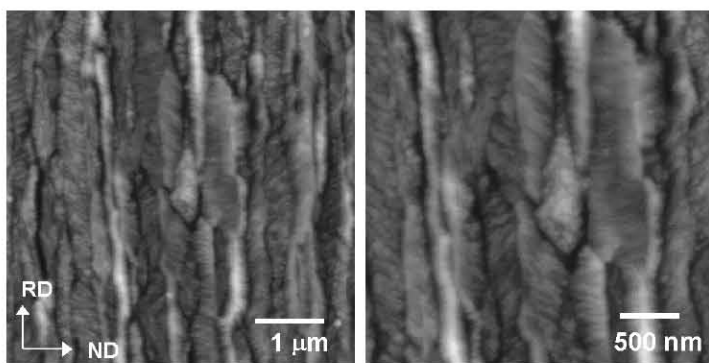


Figura 5. Imagens de AFM da amostra processada por 6 passes de ARB. Ataque: água régia.

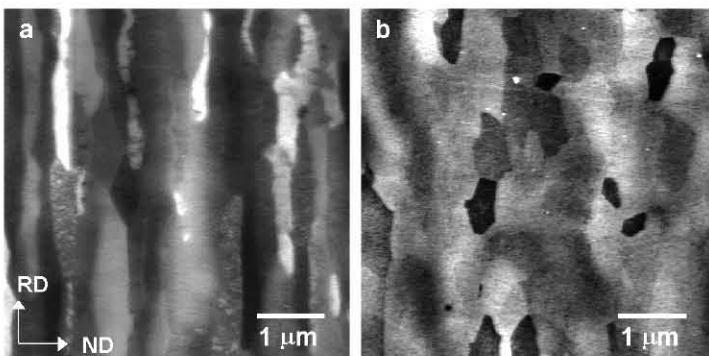


Figura 6. Imagens de AFM do material após 5 passes de ARB mostrando regiões (a) no centro e (b) próximo à superfície. Preparação: polimento com OPS.

próximo à superfície das tiras em consequência da tensão de cisalhamento proveniente do atrito do material com o cilindro de laminação.<sup>(12)</sup> O posterior empilhamento coloca os grãos ultrafinos no centro da nova tira. Entretanto, esta estrutura de grãos é instável e, no passe subsequente, os grãos quase equiaxiais tornam-se alongados e a textura muda daquela típica de cisalhamento para aquela de compressão com deformação plana.<sup>(9,13)</sup> Assim, observa-se grãos alongados no centro e quase equiaxiais na superfície, mesmo após 7 ciclos de ARB. Apesar disso, foi verificado que após três ciclos de ARB a espessura máxima dos grãos é de 600 nm.<sup>(14)</sup>

Na Figura 8 são mostradas inclusões de óxidos na amostra após 7 passes de ARB. Na Figura 8a apenas uma linha de inclusões,

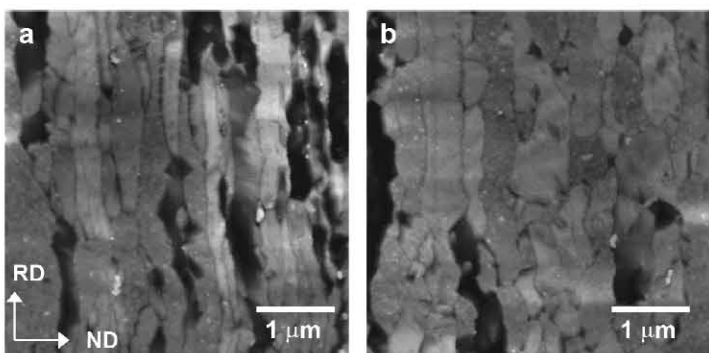


Figura 7. Imagens de AFM do material após 5 passes de ARB mostrando regiões (a) no centro e (b) próximo à superfície. Ataque: Villela.

indicada pela seta, é observada, apesar de que, depois de 7 ciclos de ARB, a espessura da tira inicial foi reduzida para 7,8 μm. Isso indica que as outras inclusões, formadas nos primeiros passes de ARB, se dissolveram na estrutura ao longo do processo. Na Figura 8b é evidenciada a deformação do material, mais dúctil, em torno das partículas de óxido. Desta forma, apesar dos problemas de união associados com a oxidação, as inclusões dissolvidas na estrutura podem também contribuir para o aumento da resistência mecânica do material.

A Figura 9 mostra um gráfico com as curvas obtidas no ensaio de penetração instrumentada tipo carga-descarga. A dureza Martens (HM) ou universal inclui as componentes de deformações elástica e plástica e é definida como a força aplicada  $P$  dividida pela área de contato entre o penetrador e o material. No caso do penetrador Berkovich (pirâmide triangular), tem-se que  $HM = P/26,43h^2$ , onde  $h$  é a profundidade máxima da penetração.

Com os valores de  $h$ , a dureza Martens foi calculada como 900, 1880, e 2170 MPa para o material como recebido e processado por 1 e 7 passes de ARB, respectivamente. Isto evidencia o significativo aumento na resistência mecânica obtido com o processo ARB e está em acordo com os resultados de Reis e colaboradores.<sup>(8)</sup> que observaram um grande aumento na microdureza Vickers. Observa-se na Figura 9 que as curvas da amostra processada por 1 passe apresentam maior dispersão do que as curvas obtidas nas amostras do material como recebido e processado por 7 passes. Como as penetrações foram realizadas ao longo da espessura da chapa em regiões livres das inclusões de óxido mais evidentes, o espalhamento dos dados indica que a microestrutura é mais heterogênea na amostra processada por 1 passe. De fato, as curvas que forneceram os maiores valores de dureza foram obtidas próximas à superfície, na região de maior deformação.

#### 4 CONCLUSÕES

O processo ARB é um método promissor para a confecção de chapas metálicas com estrutura ultra-refinada e elevada resistência mecânica. A microscopia de força atômica mostrou-se uma ferramenta

poderosa na caracterização da estrutura de grãos ultra-finos. Os diferentes métodos de preparação das amostras revelaram interessantes aspectos da estrutura, sendo que o reagente Villela atacou os contornos de grão e forneceu as melhores imagens para observação da morfologia e do tamanho dos grãos. Ao longo do processo o tamanho de grão diminuiu e o material, após de 7 passes de ARB, apresentou grãos com 200~400 nm de espessura e de 2~5  $\mu\text{m}$  de comprimento. A dureza do aço IF aumentou 140% após 7 ciclos de ARB.

### Agradecimentos

Os autores agradecem ao CNPq/TIB pelo apoio financeiro e ao Dr. J.M.C. Vilela pela colaboração e sugestões. A.L.M. Costa agradece ao Instituto do Milênio de Nanociências / CNPq pela bolsa de pesquisa.

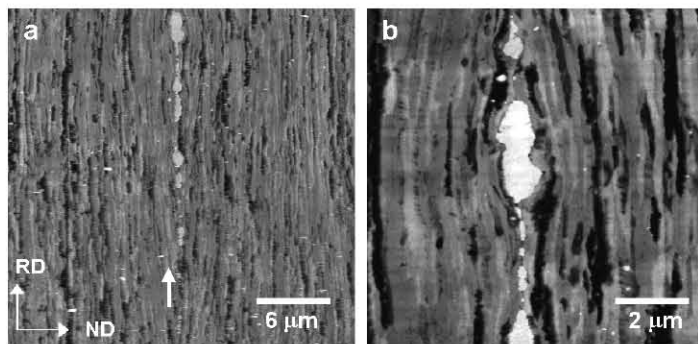


Figura 8. Imagens de AFM do material após 7 passes de ARB mostrando inclusões de óxido numa região próxima ao centro. Ataque: Villela.

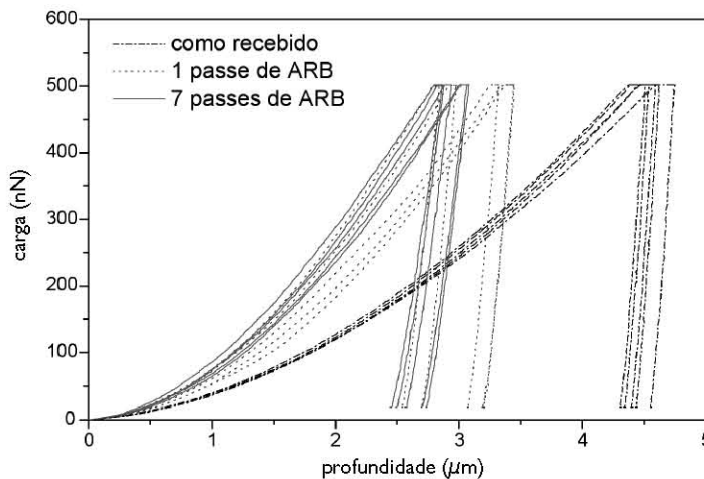


Figura 9. Curvas obtidas no ensaio de penetração instrumentada.

### REFERÊNCIAS

- HUMPHREYS, F.J.; PRANGNELL, P.B.; PRIESTNER, R. Fine-grained alloys by thermomechanical processing. **Current Opinion in Solid State and Materials Science**, v. 5, n. 1, p. 15-21, Jan. 2001.
- VALIEV, R.Z.; ISLAMGALIEV, R.K.; ALEXANDROV, I.V. Bulk nanostructured materials from severe plastic deformation. **Progress in Materials Science**, v. 45, n. 2, p. 103-189, Mar. 2000.
- SAITO, Y.; UTSUNOMIYA, H.; TSUJI, N.; SAKAI, Y. Novel ultra-high straining process for bulk materials - development of the accumulative roll-bonding (ARB) process. **Acta Materialia**, v. 47, n. 2, p. 579-583, Jan. 1999.
- TSUJI, N.; SAITO, Y.; LEE, S.H.; MINAMINO, Y. ARB (accumulative roll-bonding) and other new techniques to produce bulk ultrafine grained materials. **Advanced Engineering Materials**, v. 5, n. 5, p. 338-344, May 2003.
- HAN, B.Q.; YUE, S. Processing of ultrafine ferrite steels. **Journal of Materials Processing and Technology**, v. 136, n. 1-3, p. 100-104, May 2003.
- TSUJI, N.; SAITO, Y.; UTSUNOMIYA, H.; TANIGAWA, S. Ultra-fine grained bulk steel produced by accumulative roll-bonding (ARB) process. **Scripta Materialia**, v. 40, n. 7, p. 795-800, Mar. 1999.
- TSUJI, N.; YTO, Y.; SAITO, Y.; MINAMINO, Y. Strength and ductility of ultrafine grained aluminum and iron produced by ARB and annealing. **Scripta Materialia**, v. 47, n. 12, p. 893-899, Dec. 2002.
- REIS, A.C.C.; TOLLENEER, I.; BARBE, L.; KESTENS, L. Ultra grain refinement of Fe-based alloys by accumulated roll bonding. In: INTERNATIONAL CONFERENCE ON NANOMATERIALS BY SEVERE PLASTIC DEFORMATION, 2., Viena: 2002. **Proceedings...** Weinheim: John Wiley & Sons, 2002. p. 530-536.
- KESTENS, L.; REIS, A.C.C.; HOUBAERT, Y. The role of surface shear during accumulative roll bonding of an interstitial free steel. In: INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON ULTRAFINE GRAINED MATERIALS, 3., 2004, Charlotte. **Proceedings...** Charlotte: TMS, 2004. p. 285-290.
- TSUJI, N.; UEJI, R.; MINAMINO, Y. Nanoscale crystallographic analysis of ultrafine grained IF steel fabricated by ARB process, **Scripta Materialia**, v. 47, n. 2, p. 69-76, July 2002.

11. INTERNATIONAL ORGANIZATION FOR STANDARDIZATION. **ISO 14577-1**: Metallic materials - Instrumented indentation test for hardness and materials parameters - Part 1: Test method, 2002. Geneva: 2002.
12. LEE, S.H.; SAITO, Y.; TSUJI, N.; UTSUNOMIYA, H.; SAKAI, T.: Role of shear strain in ultragrain refinement by accumulative roll-bonding (ARB) process, **Scripta Materialia**, v. 46, n. 4, p. 281-285, Feb. 2002.
13. REIS A.C.C.; KESTENS L.; JONAS J.J. Cross-sectional texture gradients in interstitial free steels processed by accumulated roll bonding, In: INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON ULTRAFINE GRAINED STRUCTURES, 2., 2003, Geelong. **Proceedings...** Victoria: IMEA, 2003. 1 CD.
14. COSTA, A.L.M.; REIS, A.C.C.; KESTENS, L.; ANDRADE, M.S. Ultra grain refinement and hardening of IF-steel during accumulative roll-bonding. **Materials Science and Engineering**. Aceito para publicação.

Recebido em: 28/02/05

Aceito em: 21/09/05

Proveniente de: CONGRESSO ANUAL DA ABM - INTERNACIONAL, 59., 2004, São Paulo - SP. São Paulo : ABM, 2004.