

# EXTRUSÃO A QUENTE DE LIGAS DE ALUMÍNIO NANOESTRUTURADAS EM PÓ: EFEITO DA PRECIPITAÇÃO NO CONTROLE MICROESTRUTURAL

Maurício Mhirdai Peres <sup>1</sup>  
 João Batista Fogagnolo <sup>2</sup>  
 Claudemiro Bolfarini <sup>3</sup>  
 Cláudio Shiynti Kiminami <sup>4</sup>  
 Walter José Botta <sup>5</sup>  
 Alberto Moreira Jorge <sup>6</sup>

## Resumo

É realizada a análise do efeito de precipitados no controle das alterações microestruturais em ligas de alumínio nanoestruturadas consolidadas por extrusão a quente. O estudo foi conduzido em três ligas de alumínio nanoestruturadas em pó: a) liga Al-4,5%Cu supersaturada preparada por solidificação rápida e por moagem de alta energia; b) liga Al-3,0%Fe não supersaturada e rica em precipitados, preparada por solidificação rápida via atomização a gás; e c) liga 6061 não super-saturada e rica em precipitados, preparada por solidificação rápida via atomização a gás e contendo partículas de reforço de  $\text{Si}_3\text{N}_4$ ). As três ligas foram consolidadas em grandes volumes por diferentes condições de processamento via extrusão a quente. São analisadas e discutidas as modificações ocorridas na microestrutura das ligas consolidadas em função das condições de extrusão. O efeito dos precipitados pré-existentes nas ligas não supersaturadas mostra-se ser mais efetivo para o controle do crescimento de grão. É discutido o aumento da tensão de extrusão para maiores taxas de deformação e menores temperaturas em associação com as modificações microestruturais.

**Palavras-chave:** Extrusão; Ligas de Al; Compósitos; Precipitação.

## HOT EXTRUSION OF NANOSTRUCTURED ALUMINIUM POWDER ALLOYS: PRECIPITATION EFFECT ON THE MICROSTRUCTURE CONTROL

### Abstract

Three nanostructured aluminium-powder alloys were utilized as follows: a) supersaturated Al-4.5%Cu prepared by rapid solidification and mechanical-alloying; b) non-supersaturated Al-3.0%Fe, rich in precipitates, prepared by rapid solidification via gas atomization; and c) non-supersaturated 6061 Al alloy, rich in precipitates, prepared by rapid solidification via gas atomization and reinforced with  $\text{Si}_3\text{N}_4$  particles). The three different alloys were consolidated into bulk material under various processing conditions via hot extrusion. The microstructure modifications of the consolidated alloys as a function of the extrusion conditions were discussed and investigated. The effect of the pre-existent precipitates from non-supersaturated alloys is shown to be more effective to grain growth controlling. The increase in the extrusion-load with the increase of extrusion-rate and decrease of temperature are discussed in association with the modification in the microstructures.

**Key words:** Extrusion; Al-alloys; Composites; Precipitation.

<sup>1</sup>Doutor, Departamento de Engenharia de Materiais, Universidade Federal de São Carlos, Via Washington Luis, Km 235, São Carlos, SP, Brasil. E-mail: peresmm@yahoo.com.br

<sup>2</sup>Doutor, Universidade São Francisco, Itatiba, SP, Brasil. E-mail: joao.fogagnolo@saofrancisco.edu.br

<sup>3</sup>Doutor, Departamento de Engenharia de Materiais, Universidade Federal de São Carlos, Via Washington Luis, Km 235, São Carlos, SP, Brasil. E-mail: cbolfa@power.ufscar.br

<sup>4</sup>Doutor, Departamento de Engenharia de Materiais, Universidade Federal de São Carlos, Via Washington Luis, Km 235, São Carlos, SP, Brasil. E-mail: kiminami@power.ufscar.br

<sup>5</sup>Doutor, Departamento de Engenharia de Materiais, Universidade Federal de São Carlos, Via Washington Luis, Km 235, São Carlos, SP, Brasil. E-mail: wjbotta@power.ufscar.br

<sup>6</sup>Doutor, Departamento de Engenharia de Materiais, Universidade Federal de São Carlos, Via Washington Luis, Km 235, São Carlos, SP, Brasil. E-mail: moreira@power.ufscar.br

## I INTRODUÇÃO

O estudo para a produção de ligas nanoestruturadas de alumínio tem sido o foco de muitas pesquisas devido ao seu alto potencial em termos de propriedades físicas e mecânicas.<sup>(1-2)</sup> Nesse aspecto, os processos metalúrgicos de solidificação rápida<sup>(3)</sup> e de moagem de alta energia<sup>(4)</sup> mostram-se bastante efetivos para a preparação de ligas metálicas nanoestruturadas em pó, assim como para a preparação de ligas de materiais compósitos nanoestruturados em pó. O desenvolvimento de processos de consolidação de ligas nanoestruturadas em pó, visando a obtenção de materiais nanoestruturados de maior volume, é de enorme interesse tecnológico de maneira a preservar toda ou parte de suas propriedades mecânicas especiais. O processo de extrusão a quente é um dos mais efetivos processos de consolidação de materiais em pó<sup>(5)</sup> e pode ser usado com sucesso para a produção de ligas nanoestruturadas de grande volume com propriedades mecânicas equivalentes.<sup>(6)</sup> No presente estudo é analisada a influência de duas variáveis principais do processamento por extrusão a quente (temperatura e velocidade de extrusão) na microestrutura e nas propriedades mecânicas de materiais consolidados a partir das ligas nanoestruturadas em pó de Al-3,0Fe, Al-4,5Cu e 6061-(5,0%Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>).

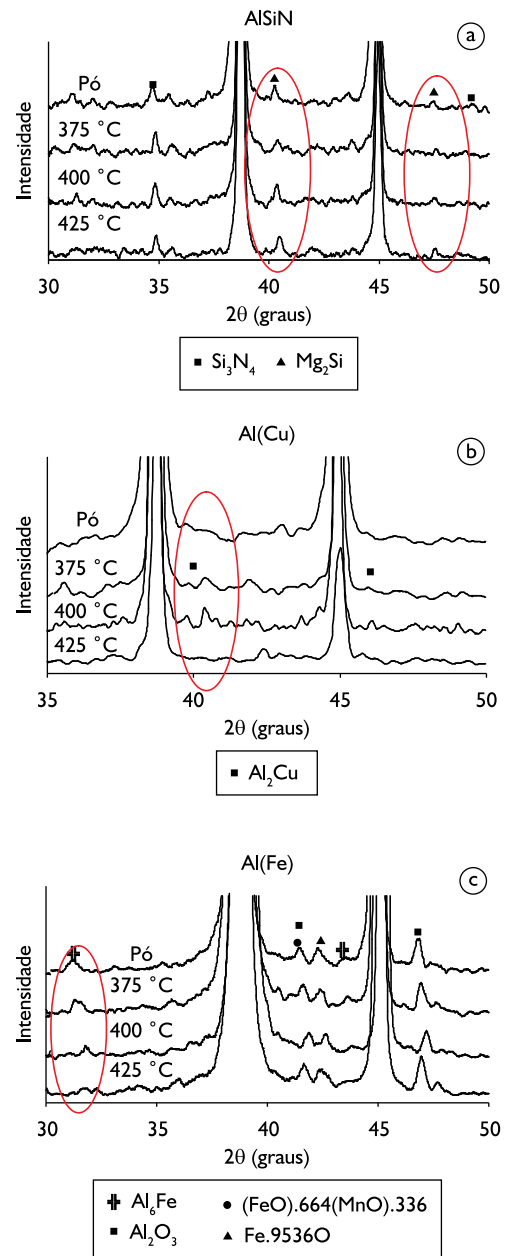
## 2 MATERIAIS E MÉTODOS

Foram consolidadas as seguintes ligas em pó em grandes volumes: a) liga Al-4,5%Cu supersaturada (referida como Al(Cu) no presente trabalho), preparada por moagem de alta energia a partir de partículas de pó de alumínio e de cobre puras; b) liga não-supersaturada de alumínio (AA6061) com 5,0% em peso de partículas de reforço de nitreto de silício (Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>), produzida previamente por moagem de alta energia a partir de partículas de AA6061 e de partículas de Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> (referida como AlSiN no presente trabalho); e c) uma liga Al-3,0%Fe (referida como Al(Fe) no presente trabalho), preparada por atomização e rica em precipitados de Al<sub>6</sub>Fe. Maiores detalhes sobre a fabricação dessas ligas em pó são descritos por Fogagnolo *et al.*<sup>(7)</sup> Como primeira etapa, antes de cada extrusão, os pós nanoestruturados de cada liga foram compactados a frio (25°C) para a obtenção de pré-formas cilíndricas com diâmetro de 26,2 mm e densidade relativa de 0,96. A segunda etapa foi a consolidação por extrusão a quente das pré-formas nas temperaturas de 375°C, 400°C e 425°C e nas velocidades de extrusão de 1,0 mm/min, 15,0 mm/min e 30,0 mm/min, totalizando nove condições de processamento termomecânico com razão de redução de 10:1. As ligas em pó e os materiais extrudados foram caracterizados por difração de raios X (DRX) através de um difratômetro Rigaku com radiação K $\alpha$ -Cu. Foram realizadas observações microestruturais por meio da técnica de microscopia eletrônica de transmissão (MET) com um microscópio Philips CM-120 incluindo a análise de padrões de difração de elétrons por área selecionada (SAEDP) e também a análise por microscopia eletrônica de varredura (MEV), em um microscópio Philips TMP XL-30. Os tamanhos médios dos grãos nanométricos foram estimados por medidas do alargamento dos picos de difração de raios X do alumínio com o uso de uma equação modificada de Scherrer seguindo a metodologia

de Hall-Williamson.<sup>(8)</sup> As propriedades mecânicas dos materiais consolidados foram obtidas por ensaios de compressão à temperatura ambiente (25°C) em um equipamento de ensaios universal Instron 5500R com velocidade de compressão de 0,5 mm/min.

## 3 RESULTADOS E DISCUSSÃO

A Figura 1 mostra os picos de difração de raios X (DRX) de amostras extrudadas para as três diferentes temperaturas estudadas.



**Figura 1.** Difrátogramas de DRX dos materiais em pó e dos materiais extrudados sob diferentes temperaturas de extrusão: a) AlSiN; b) Al(Cu); e c) Al(Fe).

Pela Figura 1a podem ser observados picos de difração referentes à presença de uma matriz de Al- $\alpha$  em solução sólida, de precipitados  $Mg_2Si$  e da fase  $Si_3N_4$  proveniente das partículas de reforço na liga AlSiN.

A Figura 1b (liga Al(Cu)) indica picos de difração referentes à fase Al- $\alpha$  em solução sólida supersaturada de cobre na matriz Al- $\alpha$  para a liga em pó. A presença de picos de  $Al_2Cu$  deve-se à precipitação durante as extrusões nas temperaturas de extrusão de 375°C e 400°C, porém para a liga extrudada a 425°C a fase  $Al_2Cu$  não foi detectada por DRX, sendo possível o maior limite de solubilidade nessa temperatura ter promovido alguma dissolução do cobre na matriz Al- $\alpha$  e, conseqüentemente, uma porcentagem de precipitados  $Al_2Cu$  abaixo do limite de detecção do equipamento de DRX (menor que 5,0%).

A Figura 1c (liga Al(Fe)) mostra picos indicativos da presença das fases Al- $\alpha$  (matriz) e  $Al_6Fe$ .

Para todos os casos, é relevante notar a considerável redução de espessura dos picos de Al- $\alpha$  com o uso de temperaturas de extrusão maiores, indicando a predominância de grãos altamente refinados de Al- $\alpha$  no pó inicial. Esse efeito é mais pronunciado na liga Al(Cu), sugerindo um maior crescimento de grão durante as extrusões a quente. Outro comportamento relevante apresentado foi a redução dos picos de  $Mg_2Si$  com o uso de temperaturas maiores de extrusão, indicando o aumento do tamanho desses precipitados. Para a liga Al(Cu), tanto a largura como a intensidade do pico da fase  $Al_2Cu$  diminuíram com o aumento da temperatura de extrusão, indicando o crescimento e a dissolução desses precipitados. Para a liga Al(Fe), o uso de temperaturas de extrusão maiores promoveu apenas uma leve redução da espessura do pico principal de Al- $\alpha$ , indicando haver um mecanismo mais efetivo no controle ao crescimento de grão, havendo também um efeito de contração dos picos da fase  $Al_6Fe$  consequentes do crescimento ou da dissolução desses precipitados.

A Figura 2 mostra os resultados obtidos (metodologia de Hall-Williamson<sup>(6)</sup>) para o tamanho médio de grão da matriz Al- $\alpha$  das três ligas de alumínio analisadas, tanto para as ligas na forma de pó como para as ligas consolidadas por extrusão, em função da temperatura de extrusão. O valor indicado a 25°C corresponde ao tamanho médio de grão das ligas em pó. Os dados obtidos foram adicionados no gráfico e foi traçada uma curva de tendência representando o comportamento aproximado do tamanho de grão médio para cada temperatura de extrusão, desde 25°C até 425°C ou temperaturas superiores. Considerando-se uma temperatura crítica de extrusão, a partir da qual ocorra um aumento significativo na taxa de crescimento de grão, observa-se que o tamanho médio de grão aumenta rapidamente com o emprego de temperaturas de extrusão acima de um valor crítico de temperatura. Os materiais extrudados a 425°C apresentam tamanho médio de grão de 360 nm para a liga AlSiN, de 840 nm para a liga Al(Cu) e de 70 nm para a liga Al(Fe). A Figura 2 indica que o comportamento do crescimento do tamanho médio de grão dos materiais correspondentes a cada temperatura de extrusão é similar, porém há uma diferença marcante entre as taxas de crescimento de grão dessas ligas. Embora os tamanhos médios dos grãos das ligas em pó a 25°C são muito próximos (entre 22 a 40nm), conforme indicado na Figura 2, é importante levar em consideração que os estado microestrutu-

rais iniciais das ligas são bastante distintos entre si. A liga Al(Cu) é livre de precipitados pois as partículas de cobre estão totalmente em solução sólida na matriz Al- $\alpha$ , enquanto que as ligas AlSiN e Al(Fe) são ricas em precipitados. Com o uso da temperatura de extrusão mais elevada, os precipitados pré-existent nas ligas AlSiN e Al(Fe) atuam efetivamente como barreiras ao crescimento de grão da matriz, mas as partículas responsáveis pelo ancoramento dos contornos de grão na liga Al(Cu) não estão presentes inicialmente e precipitam durante o processamento. Após uma certa temperatura os precipitados de  $Al_2Cu$  são dissolvidos e, novamente, não podem atuar como elementos ancoradores de contornos de grão, permitindo assim uma taxa de crescimento de grão mais elevada nos materiais consolidados a partir do pó da liga Al(Cu).

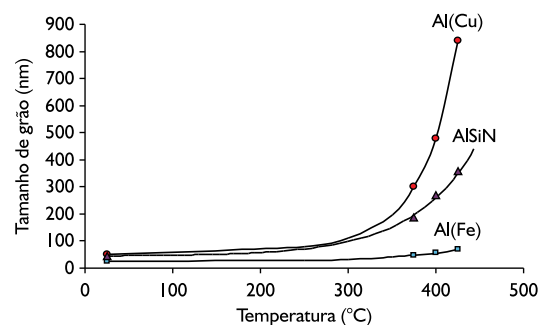
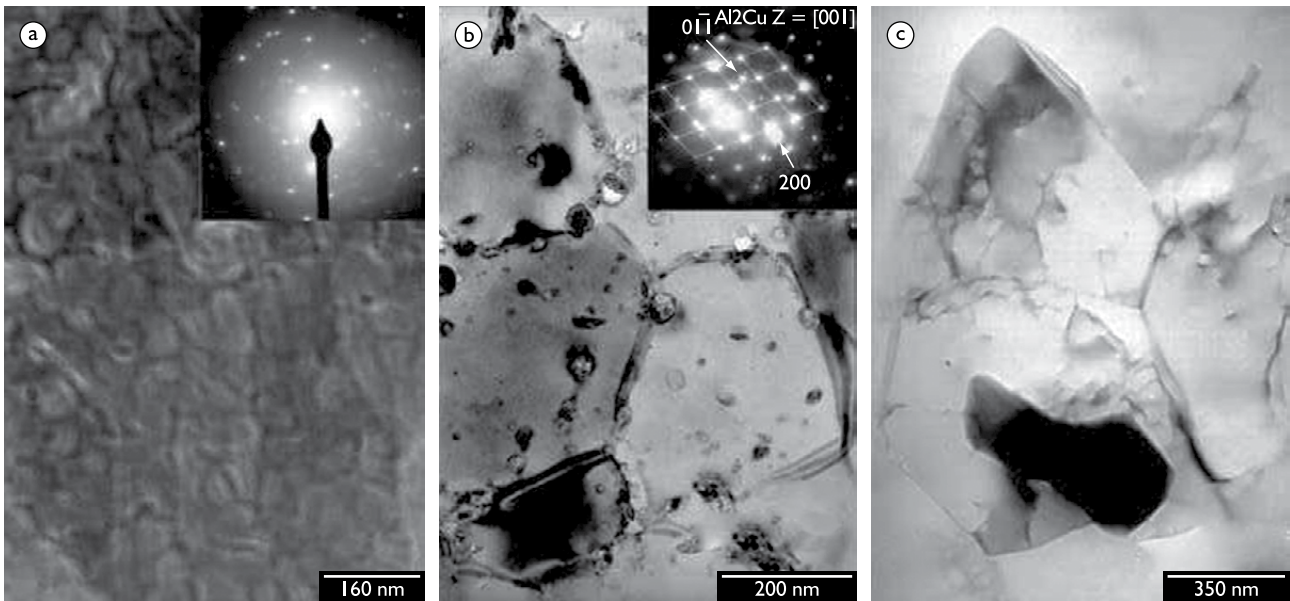


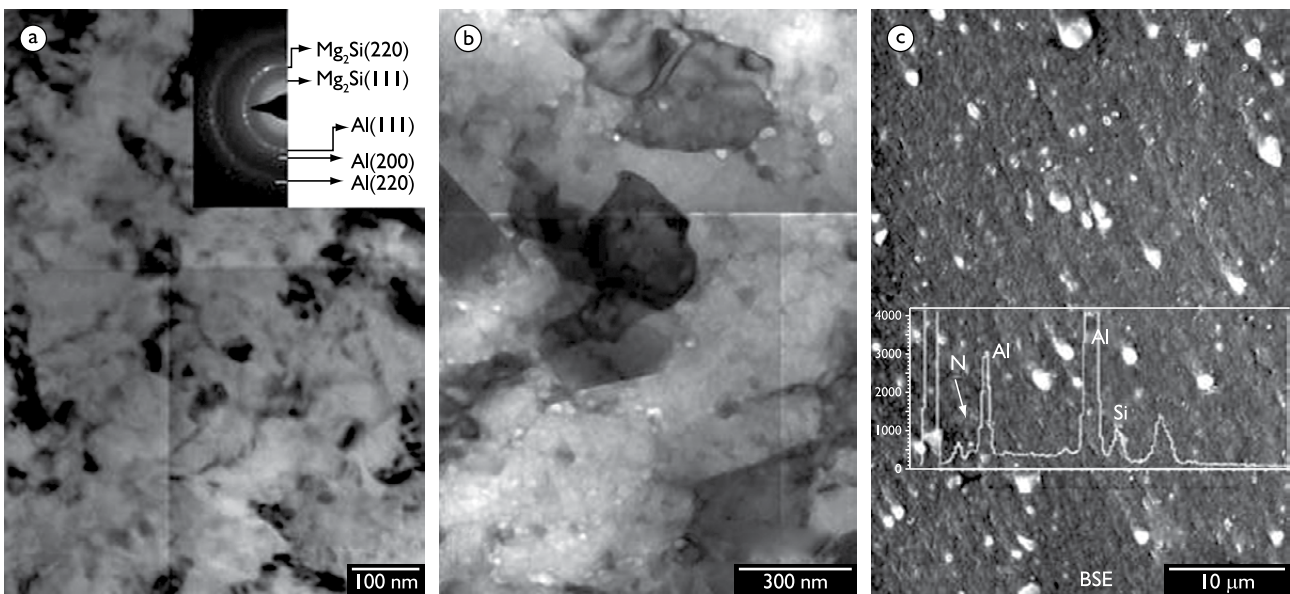
Figura 2. Dependência do tamanho médio de grão com a temperatura de extrusão das ligas AlSiN, Al(Cu) e Al(Fe).

A Figura 3a (Al(Cu)), a Figura 4a (AlSiN) e a Figura 5a (Al(Fe)) apresentam imagens obtidas por MET de microestruturas representativas das ligas de alumínio em pó contendo os respectivos padrões de difração de elétrons por área selecionada (SAEDP), mostrando o padrão de difração correspondente à fase Al- $\alpha$ , além de ser observado grãos de dimensões nanométricas (próximos a 50nm para as três as ligas). A Figura 3a não indica a presença de precipitados, concordando com o resultado obtido por DRX da Figura 1b.

A Figura 4a e a Figura 5a também revelam a presença de pequenos precipitados, especialmente localizados nos contornos de grão, sendo indexados por SAEDP e correspondendo às fases  $Mg_2Si$  e  $Al_6Fe$ , respectivamente, concordando com os resultados obtidos por DRX da Figura 1a e da Figura 1c. A Figura 4a indica que o tamanho médio dos precipitados  $Mg_2Si$  é de 22 nm aproximadamente e corresponde a 6,0% de fração volumétrica, enquanto o tamanho médio dos precipitados  $Al_6Fe$  é de 15 nm aproximadamente e corresponde a 8,0% de fração volumétrica.



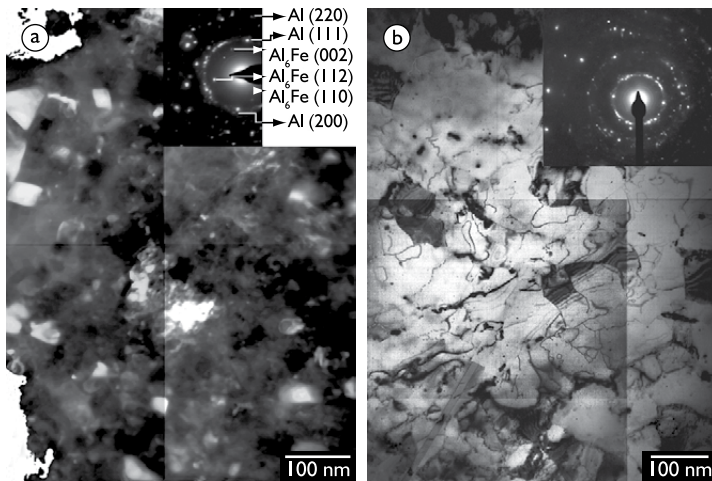
**Figura 3.** Imagens microestruturais de MET por campo claro e SAEDP da liga Al(Cu): a) liga em pó; b) liga extrudada a 375°C e 30mm/min; e c) liga extrudada a 425°C e 30 mm/min.



**Figura 4.** (a e b) Imagens microestruturais de MET por campo claro e SAEDP da liga AlSiN: a) liga em pó; b) liga extrudada a 425°C e 30 mm/min; e c) Imagens de MEV-BSE mostrando as partículas de reforço (claras) de  $\text{Si}_3\text{N}_4$  e o espectro de EDS correspondente.

A Figura 3b (Al(Cu)), a Figura 4b (AlSiN) e a Figura 5b (Al(Fe)) mostram imagens de MET por campo claro das ligas de alumínio extrudadas a 30 mm/min. O tamanho médio dos grãos apresentados nessas figuras estão em concordância com os resultados obtidos com a equação modificada de Scherrer e pela metodologia de Hall-Williamson, pelos picos de difração de raios X, conforme mostrado na Figura 2. As principais características microestruturais observadas pelas Figuras 3b, 4b e 5b são: (i) a Figura 3b corresponde à microestrutura do material processado à temperatura de extrusão de 375°C, mostrando um SAEDP típico das partículas, com a zona [011] do Al superposto pelo eixo de zona [011] de  $\text{Al}_2\text{Cu}$  e, mostra também, que os locais

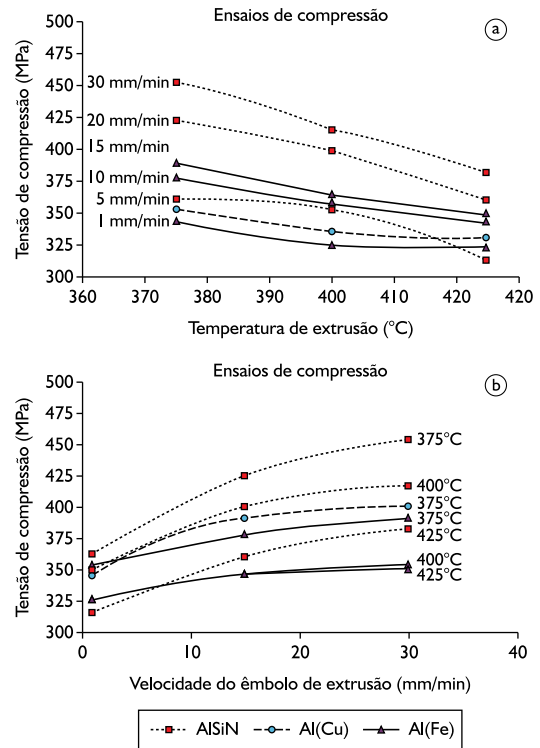
preferenciais de nucleação desses precipitados é intragranular, além de pequenos precipitados atuando como ancorados nos contornos de grão; (ii) a Figura 4b corresponde à microestrutura da liga AlSiN processada sob a maior temperatura de extrusão, 425°C, e revela a presença de precipitados de  $\text{Mg}_2\text{Si}$  servindo como possíveis ancoradores dos contornos grão e assim atuando no controle do crescimento de grão. As partículas de reforço de  $\text{Si}_3\text{N}_4$  na liga AlSiN podem ser observadas na Figura 4c através de imagens de elétrons retroespalhados (BSE) obtidas por



**Figura 5.** Imagens microestruturais de MET por campo claro e SAEDP da liga Al(Fe): a) liga em pó contendo partículas de intermetálicos  $Al_6Fe$ ; e b) liga extrudada a  $425^\circ C$  e 30 mm/min.

MEV, além do seu respectivo EDS, apresentando-se homogeneamente distribuídas, o que também contribui para uma melhoria das propriedades mecânicas da liga; (iii) a Figura 3c (AlCu) e a Figura 5b (Al(Fe)) mostram a ausência de precipitados nos materiais consolidados sob a temperatura de extrusão mais elevada,  $425^\circ C$ , porém verifica-se a presença de precipitados nos materiais quando consolidados em temperaturas de extrusão menores para a liga Al(Cu) (Figura 3b) e no pó antes das extrusões do Al(Fe), indicando uma possível dissolução desses precipitados quando processados a  $425^\circ C$  (resultando que concorda plenamente com as análises de DRX mostradas na Figura 1b e na Figura 1c. Dessa maneira, as análises por MET confirmam a ocorrência do crescimento de grão dessas ligas de alumínio nanoestruturadas durante o processo de extrusão.

A Figura 6a mostra a dependência da resistência à compressão no regime estacionário,  $\sigma_{ss}$ , realizado à temperatura ambiente ( $25^\circ C$ ), em relação a cada temperatura de extrusão das ligas consolidadas. Quando as ligas de alumínio nanoestruturadas em pó foram extrudadas a  $375^\circ C$ , os materiais consolidados apresentaram uma resistência razoavelmente alta, primeiro devido ao menor crescimento de grão durante a extrusão nessa temperatura, como também devido ao efeito de endurecimento gerado pelos precipitados em cada liga e, em especial, para a liga Al(Cu) a um possível efeito de endurecimento por solução sólida de Cu na matriz de Al- $\alpha$ . Entretanto, quando utilizadas temperaturas de extrusão mais elevadas, a resistência dos materiais consolidados é reduzida. Isso é resultado tanto do crescimento de grão da matriz como do crescimento demasiado dos precipitados. O crescimento dos precipitados leva à perda de coesão com a rede da matriz reduzindo o efeito de endurecimento por precipitação. É importante notar o efeito das partículas de reforço de  $Si_3N_4$  na liga AlSiN, pois mesmo considerando o crescimento de grão durante o processo de extrusão a quente, a resistência mecânica dessa liga AlSiN é sempre maior quando comparada às ligas Al(Cu) e Al(Fe) sob as mesmas condições de processamento termomecânico.



**Figura 6.** Resistência à compressão no regime estacionário,  $\sigma_{ss}$ , das ligas extrudadas: a) em função da temperatura de extrusão; e b) em função da velocidade do êmbolo durante a extrusão.

A Figura 6b indica a dependência da resistência à compressão do regime estacionário,  $\sigma_{ss}$ , realizado à temperatura ambiente ( $25^\circ C$ ), em relação à velocidade do êmbolo durante as extrusões. A resistência sob compressão de cada liga tende a ser maior com o uso de velocidades de extrusão mais elevadas, pois ocorre uma maior velocidade da aplicação de pressão e de deformação cisalhante entre as partículas durante a extrusão gerando um maior encruamento. Porém, de maneira geral, velocidades do êmbolo acima de 15,0 mm/min não promoveram melhorias significativas nas propriedades mecânicas das ligas extrudadas, sendo mais pronunciado para a liga Al(Cu). Isso ocorre pois o aumento da taxa de deformação na extrusão está relacionado com um efeito competitivo entre o endurecimento através do aumento da densidade de discordâncias (encruamento) e o aumento da porcentagem de defeitos na estrutura que fragilizam o material.

## 4 CONCLUSÃO

Precipitados pré-existentes de  $Mg_2Si$  na liga AlSiN (compósito) e precipitados pré-existentes de  $Al_6Fe$  na liga Al(Fe) são bastante efetivos para auxiliar no controle ao crescimento dos grãos

da matriz Al- $\alpha$  durante as consolidações por extrusão a quente e assim permitiram a produção dessas ligas com boas propriedades mecânicas. Houve a precipitação de Al<sub>2</sub>Cu na liga Al(Cu) supersaturada após consolidações por extrusão a 375°C e a 400°C, porém a ausência de precipitados após a extrusão a 425°C indica um comportamento singular nessa liga. Considerando que o pó inicial estava livre de precipitados, a liga Al(Cu) nanoestruturada é a menos efetiva em termos de controle ao crescimento dos grãos da matriz. Para a liga AlSiN extrudada (compósito), a combinação

entre grãos altamente refinados somados à presença de partículas de reforço de Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> é a mais eficiente no aumento do limite de resistência sob compressão quando comparada às demais ligas avaliadas.

### Agradecimentos

Os autores agradecem ao CNPq e à FAPESP pelo suporte financeiro.

### REFERÊNCIAS

- 1 PEREPEZKO, J. H. *et al.* Amorphization and nanostructure synthesis in Al alloys. *Intermetallics*, v. 10, n. 11-12, p. 1079-88, Nov. 2002.
- 2 BOTTA FILHO, W. J. *et al.* Consolidation of partially amorphous aluminium-alloy powders by severe plastic deformation. *Materials Science Engineering A*, v. 375-377, p. 936-41, July 2004.
- 3 HONG, S. J. *et al.* Size-dependent structure and properties of rapidly solidified aluminum alloy powders. *Scripta Materialia*, v. 45, n. 12, p. 1341-7, Dec. 2001.
- 4 SURYANARAYANA, C. Mechanical alloying and milling. *Progress in Materials Science*, v. 46, p. 1-184, 2001.
- 5 ROBERTS, P. R.; FERGUSON, B. L. Extrusion of metal powders. *International Materials Reviews*, v. 36, n. 2, p. 62-79, 1991.
- 6 PERES, M. M. *et al.* Hot extrusion of nanostructured Al alloy powder: extrusion ratio and temperature effect on the microstructure and mechanical properties. *Materials Science Forum*, v. 570, p. 91-6, Feb. 2008.
- 7 FOGAGNOLO, J. B. *et al.* Effect of mechanical alloying on the morphology, microstructure and properties of aluminium matrix composite powders. *Materials Science Engineering A*, v. 342, n. 1-2, p. 131-143, Feb. 2003.
- 8 LU, L.; LAI, M. O. *Mechanical alloying*. Boston: Kluwer Academic, 1998.

Recebido em: 21/11/2009

Aprovado em: 22/11/2010