

ESTUDO DA CINÉTICA DE RECRISTALIZAÇÃO DE UM AÇO MICROLIGADO PROCESSADO VIA ARB

Márcio Cesar da Silva Filho ¹
 Jefferson Fabrício Cardoso Lins ²
 Paulo Rangel Rios ³
 Ivani de Souza Bott ⁴
 Carlos Alberto Baldam ⁵

Resumo

Este trabalho têm por objetivo reportar a cinética de recristalização de um aço microligado processado via ARB e, posteriormente, recozido a 600°C por meio do modelo cinético Johnson, Mehl, Avrami e Kolmogorov (JMAK). O processo foi conduzido num único ciclo de deformação a 500°C. A etapa de recozimento foi realizada a 600°C entre 5 min e 60 min. A caracterização microestrutural das amostras utilizou as técnicas de microscopia óptica e metalografia quantitativa. Conclui-se que o modelo cinético JMAK não indica a forma de nucleação da recristalização para o aço microligado deformado severamente.

Palavras-chave: Aço microligado; Deformação plástica; Recristalização.

ESTUDY OF KINETIC OF RECRYSTALLIZATION OF MICROALLOY STEEL PROCESSED BY ARB

Abstract

This study aims to report the kinetics of recrystallization microalloyed steel processed through accumulative roll-bonding (ARB) and then annealing at 600°C using the kinetic model Johnson, Mehl, Avrami and Kolmogorov (JMAK). The process was conducted in a single cycle of deformation at 500°C. The annealing was performed at 600°C between 5 min and 60 min. The microstructural characterization of samples was performed with optical microscopy and quantitative metallography. It is concluded that the kinetic model JMAK does not indicate the form of nucleation of recrystallization in the steel microalloyed severely deformed.

Key words: Microalloyed steel; Plastic deformation; Recrystallization.

I INTRODUÇÃO

Devido às exigências de resistência mecânica cada vez maior, surgiram novas técnicas de processamento de materiais, que visam obter aços de elevada resistência por meio da aplicação de deformação plástica severa (DPS).⁽¹⁾ Entre as técnicas de DPS, atualmente desenvolvidas, encontra-se o processo ARB (*Accumulative Roll-Bonding*).⁽²⁾ O processo ARB consiste no empilhamento de duas chapas de mesma espessura e da sua posterior ligação por meio de um processo convencional de co-laminação em ciclos de deformação. O processo tem sido conduzido preferencialmente a

morno, em investigações que visaram descrever a evolução microestrutural de diversos materiais.⁽³⁾ Todos estes materiais exibiram estruturas com grãos sub-micrométricos (0,2 μm-0,7 μm) e elevados valores de limite de resistência à temperatura ambiente. O mecanismo de refinamento microestrutural em condições de DPS baseia-se na geração de uma elevada fração de contornos de grão de alto ângulo. Essa geração é o resultado de dois mecanismos: i) extensão de contornos

¹MS.c Engenheiro Metalurgista, Nuclebras Equipamentos Pesados – NUCLEP, Av. General Euclides de Oliveira Figueiredo, 200, Brisamar, Cep 23825-410, Itaguaí, RJ, Brasil. Email: marciocesar@nuclep.gov.br

²Professor Adjunto, Departamento de Engenharia Metalúrgica e Materiais, Universidade Federal Fluminense – UFF, Av. dos Trabalhadores, 420, Vila Santa Cecília, Cep 27255-250, Volta Redonda, RJ, Brasil. E-mail: jfclins@pq.cnpq.br

³Professor Titular, Departamento de Engenharia Metalúrgica e Materiais, Universidade Federal Fluminense – UFF, Av. dos Trabalhadores, 420, Vila Santa Cecília, Cep 27255-250, Volta Redonda, RJ, Brasil. E-mail: prrios@gmail.com

⁴Professora Associada, Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro – PUC-RJ, Rua Marquês de São Vicente, 225, Gávea, Cep 22451-900, Rio de Janeiro, RJ, Brasil. E-mail: bott@dcmm.puc-rio.br

⁵Professor Doutor, Departamento de Engenharia, Escola de Engenharia de Lorena, Universidade de São Paulo – USP, Polo Urbo-Industrial Gleba AI-6, sem nº, Fazenda Mondezir, Cep 12600-970, Lorena, SP, Brasil. E-mail: cabaldan@demar.eel.usp.br

pré-existentes; ii) geração de novos contornos de alto ângulo pela subdivisão dos grãos. O primeiro desses mecanismos simplesmente resulta numa extensão dos contornos em função da intensidade das tensões aplicadas e o segundo refere-se à natureza cristalográfica da deformação plástica. O principal potencial termodinâmico para a ocorrência da recristalização é a energia armazenada no processo de deformação. Quando o material é submetido a uma temperatura na qual se inicia a recuperação, é formada uma região livre de defeitos. Essa região fica circundada por um contorno de alto ângulo que tende a se propagar; sendo assim, a recristalização prossegue por crescimento desse sítio sobre a matriz. No processo ARB existem dois modelos possíveis de nucleação da recristalização: i) nucleação por migração de subcontornos; ii) modelo de nucleação por coalescimento de subgrãos. Existe uma divergência na literatura sobre a ocorrência dos mecanismos de coalescimento de subgrãos e migração de subcontornos. De acordo com a literatura, o mecanismo de migração de subcontornos aparentemente deve estar associado a altas deformações e a distribuições largas de tamanho de subgrão e a metais de baixa EDE. Por sua vez, o mecanismo de coalescimento de subgrãos aparentemente pode ser associado a distribuições largas de orientação entre os subgrãos, a deformações moderadas, temperatura de recozimento relativamente baixa e metais com alta EDE. O crescimento das regiões recristalizadas, por meio da migração de contornos de alto ângulo, continua até que os grãos recristalizados se interceptem. O deslocamento dos contornos de alto ângulo pode ser influenciado pela presença de partículas na matriz deformada. Os principais fatores que influenciam nesse processo de interação entre contornos e partículas são a dispersão e tamanho. Partículas finamente dispersas na matriz tendem a agir como barreira para a movimentação das discordâncias, impedindo a migração dos contornos. Durante o recozimento, ocorre o amolecimento dos materiais encruados. A dureza da liga às vezes pode decair cerca de 50%, sem que ocorram formação e movimentação de contornos de alto ângulo. Esse fenômeno tem sido chamado na literatura de recristalização contínua ou recristalização *in situ*. A equação de Avrami tem sido empregada na modelagem analítica da cinética global de recristalização, e é representada pela Equação 1:

$$V_v = 1 - \exp(-kt^n) \quad (1)$$

O modelo JMAK considera as seguintes hipóteses simplificadoras:

- a taxa de nucleação de novos grãos é constante; A taxa de crescimento dos novos grãos é linear;
- os novos grãos são considerados esféricos e o crescimento é isotrópico; e
- a amostra recristalizada é infinita e a nucleação ocorre de forma aleatória e homogênea.

Pode-se afirmar que cada uma das hipóteses promove certo desvio da realidade. A recristalização é normalmente descrita por uma curva sigmoideal relacionando a fração recristalizada (X_v) em função do tempo (t). Verifica-se um período de incubação referente ao tempo decorrido até o aparecimento dos primeiros grãos recristalizados, seguido de um aumento na taxa de recristalização e por fim, um decréscimo nessa taxa quando a fração recristalizada tende a 1. Esse decréscimo deve-se ao impedimento mútuo dos

grãos e à redução da força motriz para a recristalização. Por nucleação, compreende-se a etapa que envolve o aparecimento de novos grãos na estrutura deformada. O crescimento compreende a etapa em que os novos grãos nucleados vão se desenvolvendo, aumentando de tamanho e substituindo a matriz deformada.

2 MATERIAIS E MÉTODOS

Neste trabalho, foram utilizadas chapas laminadas de aço microligado ao nióbio comercial. O material foi fornecido pela empresa Brasmetal com a composição química da chapa indicada na Tabela 1.

Tabela 1. Composição química (% p)

C	Mn	P	S	Si	N	Al	Nb
0,09	1,04	0,018	0,04	0,07	0,0044	0,039	0,036

As chapas foram cortadas em tiras de 55 x 300 mm, limpas, desengraxadas e sobrepostas. Logo após, foi realizado um aquecimento do conjunto num forno tipo Mufla a 500°C por 10/min. O processo foi conduzido num único ciclo com uma taxa de deformação da ordem de 19 s⁻¹. Para o recozimento, as amostras foram encapsuladas sob atmosfera de argônio. O tratamento térmico foi realizado a 600°C por 5 min, 10 min, 15 min, 20 min, 25 min, 30 min, 45 min e 60 min num forno tubular Lindberg Blue. A metodologia e os equipamentos utilizados encontram-se descritos detalhadamente em Silva Filho.⁽⁴⁾ As amostras foram preparadas conforme os procedimentos metalográficos tradicionais, sendo caracterizadas pela técnica de microscopia óptica. Na determinação da fração recristalizada, adotou-se a metodologia descrita por DeHoff.⁽⁵⁾ Para se calcular S_v , foram analisados os mesmos campos utilizados na contagem de X_v . Em cada campo foram traçadas dez linhas, cinco na horizontal e cinco na vertical. Em cada linha observou-se a quantidade de intersecções ocorridas entre as regiões recristalizadas e recuperadas.

3 RESULTADOS E DISCUSSÃO

A Figura 1 mostra a evolução da microestrutura após o recozimento. Nota-se que o processo de recristalização ocorre plenamente somente após 60 minutos. Além disso, nota-se também, de forma qualitativa, que a fração de área das regiões que sofreram recuperação também decresce com o aumento do tempo

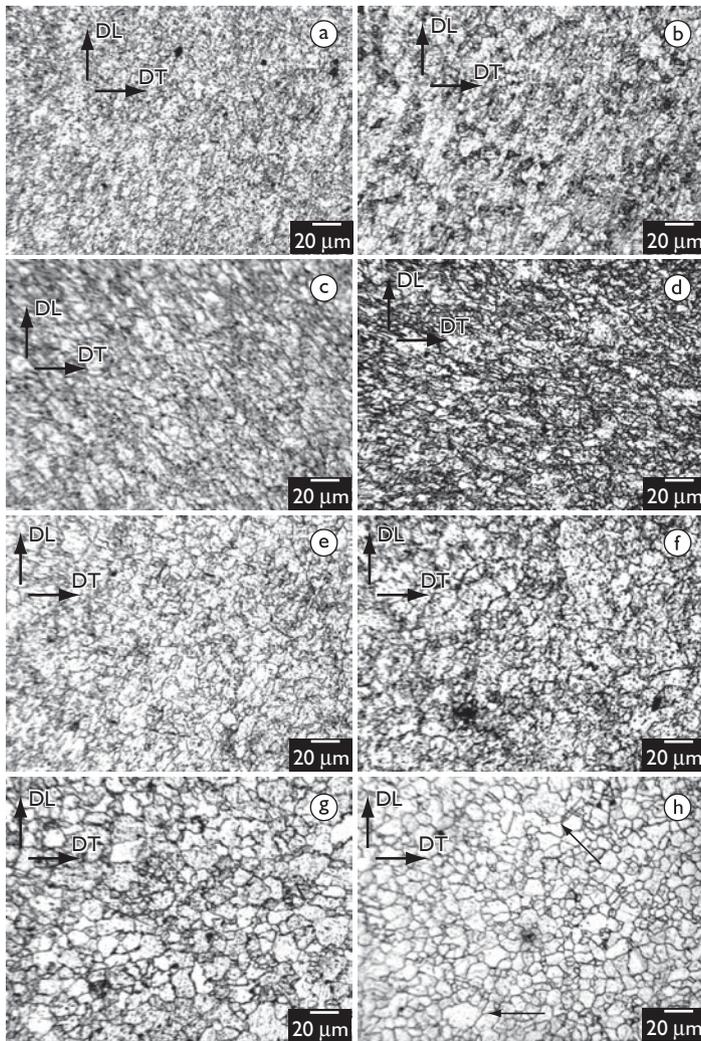


Figura 1. Seção DL-DT mostrando: (a) 5 min; (b) 10 min; (c) 15 min; (d) 20 min; (e) 25 min; (f) 30 min; (g) 45 min; (h) 60 min.

de recozimento. Este comportamento pode ser considerado como esperado para o processamento termomecânico proposto nesta investigação: à medida que a recristalização ocorre, o efeito da recuperação diminui. Quando é formada uma região livre de defeitos, fica circundada por um contorno de alto ângulo e a recristalização prossegue por crescimento desse núcleo sobre a matriz. Em condições nas quais a temperatura é constante, a recristalização primária geralmente apresenta um tempo de incubação, que pode ser associado ao processo lento de formação do núcleo. Já a ausência do período de incubação geralmente está associada à nucleação por migração de contornos pré-existentes, não havendo neste caso a necessidade de um tempo para a formação de um contorno com alta mobilidade. Observando os dados experimentais descritos na Figura 2, pode-se notar, ao serem comparados os tamanhos de grãos após 5 min e após 60 min de recozimento que o crescimento observado não é muito significativo ($\approx 22\%$), indicando o forte efeito de travamento dos contornos devido à presença de carbonetos na matriz. Silva Filho⁽⁴⁾ relata, em trabalho anterior, a evolução da dureza durante o recozimento a 600°C e verifica que os carbonetos influenciam fortemente a microestrut-

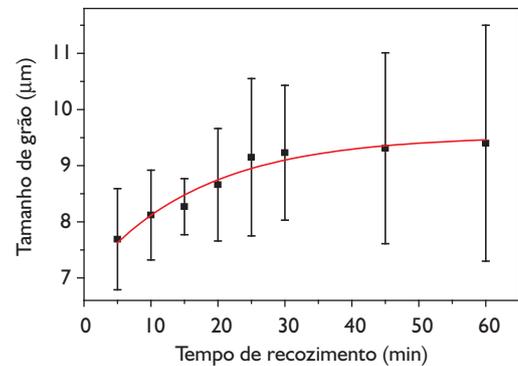


Figura 2. Evolução do tamanho de grão durante o recozimento a 600°C.

tura, retardando o início da recristalização. O tamanho de grão encontrado após 60 min de recozimento pode ser considerado bem inferior ao observado no material de partida, cerca de 40% menor. Pode-se sugerir como explicação para este resultado, que a presença de carbonetos alinhados na condição deformada contribui para que o aço durante o recozimento não alcançasse uma etapa de crescimento anormal de grão. Perrard, Deschamps e Maugis⁽⁶⁾ estudaram a influência dos carbonetos num aço microligado ao nióbio e verificaram que os carbonetos interagem com as discordâncias, servindo de barreira para a sua movimentação. Desta forma, as discordâncias acumulam-se impedindo o crescimento de grão. Assim, de acordo com o reportado na literatura, é provável que tenha ocorrido um ancoramento de contornos de grão pelos carbonetos presentes. Ermenegildo e Cota⁽⁷⁾ pesquisaram a cinética de um aço microligado e conclui que, na temperatura de 600°C, o aço apresenta uma maior capacidade de “retenção de dureza”, sendo que este fenômeno se estendeu por cerca de 900 s (15 min). Comparando com o aço estudado no presente trabalho, é possível perceber um comportamento semelhante, embora em valores absolutos a dureza seja diferente, devido à diferença entre os recozimentos utilizados. Silva Filho⁽⁴⁾ obteve um patamar de dureza que se estendeu por cerca de 1.200 s (20 min) durante o recozimento. Comparando a Figura 2, com a curva de amolecimento obtida por Silva Filho⁽⁴⁾ é possível verificar que, mesmo ocorrendo um aumento gradativo no tamanho de grão, a dureza do aço varia pouco.

A fração recristalizada foi mensurada ao longo de cada tempo estudado e calculados os valores de $\ln(-\ln(1-V_v))$ e $\ln(t)$. Após a plotagem dos pontos, efetuou-se uma regressão linear para obter a reta que melhor se ajustava aos resultados. Traçada a reta e obtida a sua equação, foi

possível a obtenção dos valores de n e k da equação de JMAK: 1,07 e $4,5 \times 10^{-4}$, respectivamente. Estes valores diferem dos que indicariam saturação de sítios e taxa de nucleação constante; portanto, o método não pode ser usado para inferir sobre a forma de nucleação dos novos grãos. Este fato pode estar relacionado com as hipóteses simplificadoras do modelo, que nem sempre se ajustam aos casos reais. É possível concluir que o modelo JMAK fornece uma análise qualitativa da cinética de recristalização do aço micro-ligado diferindo do comportamento real, como evidenciado pelos valores obtidos de n e k . Perrard, Deschamps e Maugis⁽⁶⁾ modelaram experimentalmente como os carbonetos influenciariam na recristalização. Nota-se que os resultados obtidos pelo modelo, são semelhantes aos resultados experimentais obtidos nesta investigação, indicados na Figura 3 e indicam a ocorrência de saturação de sítios no processo de nucleação do aço. A Equação 2 representa a curva sigmoidal (Figura 3) obtida a partir de dados experimentais para o aço processado via ARB e recozido a 600°C:

$$V_v = 1 - \exp(4,5 \times 10^{-4} \times t^{1,017}) \quad (2)$$

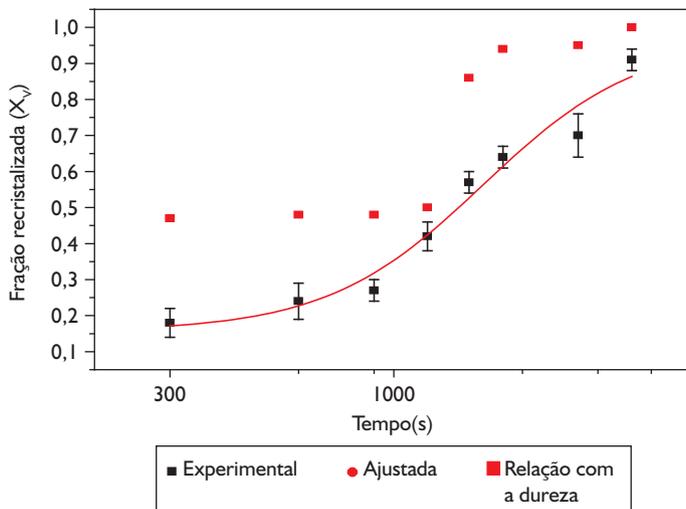


Figura 3. Curva obtida a partir dos valores de n e k .

Winning e Schafer⁽⁸⁾ estudaram a influência da recristalização nas propriedades mecânicas, utilizando-se da formulação que correlaciona a fração recristalizada com a dureza. Esta formulação é descrita pela Equação 3:

$$\frac{H_{V(to)} - H_{V(t)}}{H_{V(to)} - H_{V(tend)}} \quad (3)$$

onde $H_{V(to)}$ é a dureza na condição inicial, $H_{V(t)}$ é a dureza nos diferentes tempos de recozimento e $H_{V(tend)}$ é a dureza após a recristalização estar completa (considerou-se a dureza após 60 min de tratamento). De acordo com o indicado na Figura 5, não há uma boa correlação entre os valores de fração recristalizada obtidos pela Equação 3 e os medidos experimentalmente. Isto acontece devido a esta equação ser uma simplificação do que ocorre na microestrutura, não sendo adequada para prever o comportamento de materiais contendo partículas dispersas. Para materiais contendo partículas, durante a recristalização, têm sido desenvol-

vidos outros métodos de modelagem. Em seu trabalho, Rath⁽⁹⁾ correlaciona a fração recristalizada com o caminho microestrutural percorrido pelo material, conforme descrito na Equação 4:

$$S_v = (1 - \exp(-Kt^n)) \times Bt^m \quad (4)$$

onde k , n , B e m são constantes do material e S_v a fração de área por unidade de volume. A modelagem do caminho microestrutural é descrita pela Na Equação 5:

$$S_v = C \times (1 - V_v)^q \quad (5)$$

onde q é uma constante utilizada para descrever o tipo de nucleação, sendo $2/3$ para saturação de sítios e $4/3$ para a nucleação constante e C é uma constante referente ao fator geométrico de crescimento.

No presente trabalho são obtidos dois perfis de curva: um relativo a S_v em função do tempo e outro relativo a S_v em função de X_v . Utilizando-se os dados das constantes, obtidas pelo traçado de Avrami as curvas podem ser ajustadas aos pontos experimentais, por meio do programa Origin. Estes gráficos estão representados nas Figuras 4 e 5. É possível observar destes gráficos que ocorre uma pequena discrepância entre os

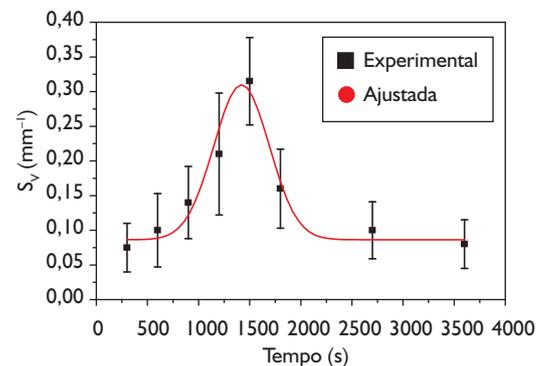


Figura 4. Gráfico de S_v x tempo (s).

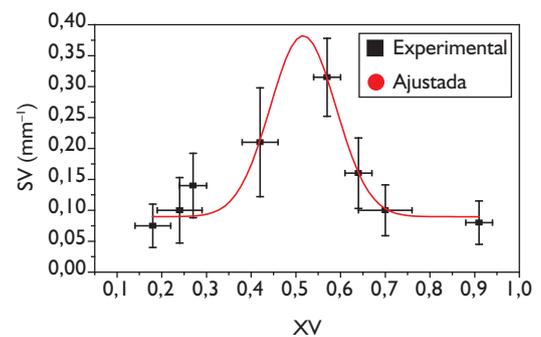


Figura 5. Gráfico de S_v x X_v .

valores ajustados e os valores experimentais, embora ambos apresentem o mesmo comportamento. Não é possível encontrar na literatura científica dados disponíveis relativos ao aço microligado ao nióbio envolvendo o processo ARB. A área interfacial por unidade de volume cresce até a ocorrência do *impingement*, que significa que começa a ocorrer interação entre os núcleos em crescimento. Observando a Figura 4, verifica-se que o início do *impingement* ocorre no tempo de recozimento igual a 25 min (1.500 s). Comparando este resultado com a curva de amolecimento obtida por Silva Filho,⁽⁴⁾ verifica-se que, neste tempo, ocorre um decréscimo de dureza, indicando o fim do primeiro patamar. Baseado na equação que gera o gráfico da Figura 5, tem-se a seguinte formulação:

Aplicando a função logarítmica nos membros da Equação 6 obtém-se:

$$\log(S_v) = \log(Bt^m) \quad (6)$$

Ao se reescrever a Equação 6, tem-se (Equação 7):

$$\log(S_v) = m \log(t) + \log(B) \quad (7)$$

A partir da linearização, por meio do programa Origin, para obtenção da curva descrita na Figura 7, são obtidos os seguintes valores para as constantes da Equação 6: $m = 1,04$ e $B = 1,27$. Substituindo-se os valores obtidos de k , n , B e m na Equação 4, obtém-se o caminho microestrutural para o aço microligado ao nióbio processado via ARB e, posteriormente, recozido a 600°C , como pode ser colocado pela Equação 8.

$$S_v = \{1 - \exp[4,5 \times 10^{-4} \times (t^{1,17})]\} \times 1,27 \times (t^{1,04}) \quad (8)$$

Oliveira et al.⁽¹⁰⁾ desenvolveram um código em 3D para a recristalização, utilizando o método de autômato celular. Observando os resultados obtidos por Oliveira et al.,⁽¹⁰⁾ em relação a X_v em função do tempo, é possível notar uma grande concordância entre as hipóteses e os resultados experimentais relativos ao aço microligado ao nióbio processado via ARB. Enquanto os resultados obtidos analiticamente e por simulação indicam um perfil de curva S_v versus X_v parabólico, os resultados experimentais para o aço microligado indicam como melhor ajuste um perfil gaussiano. Possivelmente, estas diferenças ocorrem devido às hipóteses adotadas no modelo. Um destas hipóteses é a de que, durante o processo de nucleação da recristalização, os sítios não sofrem nenhum *impingement*. Vandermeer, Masura e Rath⁽¹¹⁾ propõem que a aparente simetria da curva ajustada representa o crescimento com formas constantes durante a evolução microestrutural. Neste trabalho citam que essa forma de simetria do gráfico indicaria uma nucleação do tipo saturação de sítios.⁽¹⁰⁾ Com base nestas observações⁽¹⁰⁾ pode-se afirmar que a forma de nucleação da recristalização para o aço microligado ao nióbio é a saturação por sítios. A literatura reporta que o início do *impingement* marca o fim da recristalização primária. Deste ponto em diante, o crescimento de grão pode ocorrer de forma contínua (normal) ou preferencial (anormal). Observando-se a seta indicada na Figura 1, pode-se notar que, após 60 min de recozimento, aparece uma indicação do início da ocorrência do crescimento de grão preferencial. Esta hipótese de crescimento de grão preferencial, explicaria o maior desvio-

padrão observado na Figura 2. Dunn e Walter⁽¹²⁾ estudaram a ocorrência da recristalização secundária, num ferro de alta pureza e verificaram que a presença de partículas finas e limitações impostas pela espessura do material podem reforçar o efeito da recristalização secundária. Embora não existam estudos realizados para o aço microligado processado via ARB, as hipóteses apresentadas para a ocorrência da recristalização secundária são viáveis de acordo com a literatura atual. Outra possibilidade para explicar a elevação do desvio-padrão nas medições do tamanho de grão em tempos superiores a 25 min pode ser a presença de alguns carbonetos concentrados nos contornos de alguns grãos. Sendo assim, enquanto alguns grãos podem crescer livremente (ou com um travamento menor), outros sofrem um maior efeito de travamento dos contornos, aumentando o desvio nas medições. A concentração de carbonetos em determinadas regiões das amostras também serviriam para explicar os elevados desvios na dureza obtidos por Silva Filho⁽⁴⁾. Desta forma, a distribuição e o tamanho das partículas também poderiam influenciar nos desvios observados.

4 CONCLUSÕES

Após 60 min de recozimento observa-se uma microestrutura totalmente recristalizada com tamanho de grão aproximadamente 40% menor do que na condição inicial. O aço microligado apresenta um crescimento de grão pouco significativo entre os tempos de 5 min e 60 min de recozimento. Durante os cinco primeiros minutos de recozimento o tamanho de grão praticamente dobra de tamanho. Com base no modelo JMAK, são determinadas as constantes do material. Devido às hipóteses simplificadoras adotadas, pode-se afirmar que o modelo JMAK não pode indicar com certeza o mecanismo de nucleação da recristalização. Verifica-se que o *impingement* ocorre aproximadamente aos 25 min de recozimento.

Agradecimentos

Os autores deste trabalho agradecem à empresa BRASMETAL, que gentilmente forneceu o material. Agradecimentos também são devidos à CAPES e ao CNPq (Processos 400609/2004-05 e 470589/2007-8, respectivamente), pelo apoio financeiro.

REFERÊNCIAS

- 1 VALIEV, R.Z. Nanostructuring of metals by severe plastic deformation for advanced properties. *Nature Materials*, v. 3, p. 511-6, 2004.
- 2 SAITO, Y.; UTSUNOMIYA, H.; TSUJI, N.; SAKAI, T. Novel ultra-high strain process for bulk material development of the accumulative roll-bonding (ARB) process. *Acta Materialia*, v. 47, n. 2, p. 579- 583, 1999.
- 3 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, 2002.
- 4 SILVA FILHO, M.C.; LINS, J.C.F.; RIOS, P.R.; BOTT, I.S. Caracterização microestrutural de um aço microligado estabilizado ao nióbio processado via ARB e posteriormente recozido a 600°C. In: CONGRESSO ANUAL DA ABM, 63., 2008, Santos, SP. *Anais...* São Paulo: ABM, 2008. p. 3038-47.
- 5 DEHOFF, R.T. Annealing processes recovery, recrystallization and grain growth. In: HANSEN, N.; JUUL, J. D.; LEFFERS, T.; RALPH, B. (Eds.). *Annealing processes: recovery, recrystallization and grain growth*. Roskilde, Denmark : Risø National Laboratory, 1986. p. 35-52.
- 6 PERRARD, F.; DESCHAMPS, A.; MAUGIS, P. Modeling the precipitation of NbC on dislocation in α -Fe. *Acta Materialia*, v. 55, n. 4, p. 1255-66, 2007.
- 7 ERMENEGILDO, T. F. C.; COTA, A. B. Efeito do nióbio na cinética de revenimento de aços baixo carbono. *Revista Escola de Minas*, v. 60, n. 3, p. 551-6, 2007.
- 8 WINNING, M.; SCHAFER, C. Influencing recrystallization behavior by mechanical loads. *Materials Science and Engineering A*, v. 419, n. 1-2, p. 18-24, Mar. 2006.
- 9 RATH, B.B. Kinetics of nucleation growth process. *Material Science and Engineering B*, v. 32, n. 3, p. 101-6, July 1995.
- 10 OLIVEIRA, V.T.; OLIVEIRA, L.P.; RIOS, P.R.; CASTRO, J.A. Desenvolvimento de um código em 3D para simular a recristalização pelo método do autômato celular. *Tecnologia em Metalurgia e Materiais*, v. 2, n. 4, p. 24-39, abr.-jun. 2006.
- 11 VANDERMEER, R.; MASURA, R.A.; RATH, B.B. Microstructural paths of shape-preserved nucleation and growth transformations. *Acta Metallurgica et Materialia*, v. 39, n. 3, p. 383-9, 1991.
- 12 DUN C.G., WALTER J.L. On secondary recrystallization in high-purity alpha iron. *Transaction of the Metallurgical Society of AIME*, v. 221, p. 413-4, 1961.

Recebido em: 10/11/2009

Aceito em: 18/11/2009