

UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS
Escola de Engenharia
Programa de Pós-Graduação em Engenharia Metalúrgica, Materiais e de Minas

Paula Cibely Alves Flausino

**INFLUÊNCIA DA AMPLITUDE DE DEFORMAÇÃO E DA DEFORMAÇÃO
ACUMULADA NA EVOLUÇÃO MICROESTRUTURAL E COMPORTAMENTO
MECÂNICO DO COBRE PROCESSADO POR FORJAMENTO
MULTIDIRECIONAL**

Belo Horizonte

2021

Paula Cibely Alves Flausino

**INFLUÊNCIA DA AMPLITUDE DE DEFORMAÇÃO E DA DEFORMAÇÃO
ACUMULADA NA EVOLUÇÃO MICROESTRUTURAL E COMPORTAMENTO
MECÂNICO DO COBRE PROCESSADO POR FORJAMENTO
MULTIDIRECIONAL**

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Engenharia Metalúrgica, Materiais e de Minas da Escola de Engenharia da Universidade Federal de Minas Gerais, como requisito parcial à obtenção do título de Doutora em Engenharia Metalúrgica, Materiais e de Minas.

Área de Concentração: Metalurgia de Transformação

Orientador: Prof. Dr. Paulo Roberto Cetlin

Coorientador: Prof. Dr. Pedro Henrique Rodrigues Pereira

Belo Horizonte

2021

F587i Flausino, Paula Cibely Alves.
Influência da amplitude de deformação e da deformação acumulada na evolução microestrutural e comportamento mecânico do cobre processado por forjamento multidirecional [recurso eletrônico] / Paula Cibely Alves Flausino. - 2021.
1 recurso online (xxiii, 100 f. : il., color.) : pdf.

Orientador: Paulo Roberto Cetlin.
Coorientador: Pedro Henrique Rodrigues Pereira.

Tese (doutorado) - Universidade Federal de Minas Gerais, Escola de Engenharia.

Inclui bibliografia.
Exigências do sistema: Adobe Acrobat Reader.

1. Engenharia metalúrgica - Teses. 2. Metalurgia de Transformação - Teses. 3. Cobre - Teses. 4. Metais - Deformação - Teses. I. Cetlin, Paulo Roberto, 1946-. II. Pereira, Pedro Henrique Rodrigues. III. Universidade Federal de Minas Gerais. Escola de Engenharia. IV. Título.

CDU: 669(043)



UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS
ESCOLA DE ENGENHARIA
Programa de Pós-Graduação em Engenharia
Metalúrgica, Materiais e de Minas



Tese intitulada "**Influência da Amplitude de Deformação e da Deformação Acumulada na Evolução Microestrutural e Comportamento Mecânico do Cobre Processado por Forjamento Multidirecional**", área de concentração: Metalurgia de Transformação, apresentada pela candidata **Paula Cibely Alves Flausino**, para obtenção do grau de Doutora em Engenharia Metalúrgica, Materiais e de Minas, aprovada pela comissão examinadora constituída pelos seguintes membros:

Prof. Paulo Roberto Cetlin
Orientador - Dr. (UFMG)

Prof. Pedro Henrique Rodrigues Pereira
Coorientador - Dr. (UFMG)

Prof^a Maria Aparecida Pinto
Dr^a (UFOP)

Prof. Gilberto Henrique Tavares Álvares da Silva
Dr. (UFOP)

Prof^a Maria Teresa Paulino Aguilár
Dr^a (UFMG)

Prof^a Elaine Carballo Siqueira Corrêa
Dr^a (CEFET/MG)

Coordenador do Programa de Pós-Graduação em
Engenharia Metalúrgica, Materiais e de Minas/UFMG

Belo Horizonte, 27 de julho de 2021

*Dedico este trabalho ao meu amado filho, Francisco,
por me ensinar sobre o amor incondicional, me
fazendo abrir o coração de uma maneira que eu jamais
poderia supor.*

AGRADECIMENTOS

Primeiramente a Deus, que me guia, ilumina e fortalece. Gratidão, Senhor, por tudo que sou e que tenho.

Ao meu orientador, Professor Paulo R. Cetlin, por quem tenho profunda admiração e respeito, agradeço pelo acolhimento e valiosos ensinamentos, confiança, incentivo e presença constantes ao longo desta jornada. Gratidão por tudo, Professor!

Ao meu coorientador, Professor Pedro Henrique R. Pereira, sou muito grata por todo suporte, disponibilidade e por sempre ter palavras de otimismo, mesmo para os desafios mais complexos. Sua contribuição foi essencial para a concretização deste trabalho.

Agradeço à Professora Maria Teresa Paulino Aguilar e ao Prof. Luiz Antônio M. Nunes Branco do Departamento de Materiais e Construção da UFMG e, também, aos Professores Dagoberto Brandão Santos, Roberto Braga Figueiredo e Vicente Tadeu L. Buono do Departamento de Engenharia Metalúrgica e de Materiais da UFMG que, muito gentilmente, permitiram a utilização de equipamentos e Laboratórios.

Sou grata à Prof. Karla Balzuweit do Departamento de Física da UFMG e Coordenadora da área de Materiais do Centro de Microscopia (CM) da UFMG e ao técnico Breno Barbosa Moreira, também do CM-UFMG, pelo empenho e zelo na condução das análises por EBSD. Sou muito grata ao técnico Leonardo Meyer Reis do Departamento de Materiais e Construção da UFMG por todo suporte na realização dos processamentos mecânicos ao longo de todo este período. O apoio de vocês foi fundamental neste trabalho. Agradeço também aos técnicos Cida do PPGEM-UFMG, Samuel e Patrícia do DEMET-UFMG por toda ajuda e disponibilidade em momentos importantes.

Agradeço à Dra. Fran de Castro Bubani e seu grupo de pesquisa em CAB/CONICET, Universidad Nacional de Cuyo, Argentina, por conduzirem as análises por Microscopia Eletrônica de Transmissão.

Sou grata ao Prof. Luiz Paulo Mendonça Brandão e à Dra Talita Gama de Sousa do Instituto Militar de Engenharia (IME), pela realização das análises por DRX e pelas valiosas discussões referentes ao CMWP.

À Professora Elaine Carballo S. Corrêa do Departamento de Engenharia de Materiais do CEFET-MG, Campus I, agradeço pelo apoio na construção do perfil instrumental para análises por DRX e por permitir a utilização de equipamentos do Laboratório de Metalografia.

Sou muito grata às amigas Nayara, Maria Elisa e Luana pelas experiências compartilhadas, risadas e apoio nas horas desafiadoras. Vocês contribuíram para deixar os dias de trabalho mais leves.

Sou grata aos colegas Cleber, Natanael, Pedro Martins, Olavo e Getúlio, por toda ajuda na parte experimental deste trabalho e pela convivência agradável no dia-a-dia.

Agradeço ao DEMET-UFOP pelo afastamento integral para dedicação ao doutoramento. Agradeço especialmente aos Professores Maria Aparecida Pinto, Flávio Cassino, Danton Heleno Gameiro, Gilberto H. Tavares e Claudio Batista e aos técnicos Ana Maria, Philipe e Elenice por todo o apoio neste período.

Agradeço ao meu esposo, Alexandre, por todo amor, suporte e entendimento dos momentos de ausência.

Agradeço ao meu lindo filho, Francisco, por todo amor e carinho. Amo você!

Agradeço à minha Mãe pelas orações, amor, apoio e incentivo, fundamentais à minha educação que me abriu caminhos para transformações em minha vida. Agradeço à Tia Mirica pelo apoio, carinho e torcida. Sou imensamente grata pela ajuda especial de vocês enquanto eu me dedicava a este projeto.

Agradeço ao meu Pai e demais familiares e amigos pela torcida.

E a todos que direta ou indiretamente contribuíram na realização deste projeto, muito obrigada!!!

“Nada acontece até que algo se mova”.

Albert Einstein

RESUMO

Os processos de deformação plástica severa têm sido amplamente estudados como ferramentas para obtenção de metais e ligas metálicas com elevada resistência mecânica, por meio de refino de grão a nível submicrométrico aliado à introdução de elevada densidade de deslocamentos. Dentre os processos de SPD, o Forjamento Multidirecional (MDF) é um dos mais simples e pode ser aplicado na indústria. Neste contexto, este trabalho se propõe a avaliar a influência da amplitude de deformação ($\Delta\varepsilon$) e da deformação acumulada (ε) na evolução microestrutural e comportamento mecânico do cobre de pureza comercial (99,8%) processado à temperatura ambiente por MDF com $\Delta\varepsilon \approx 0,075, 0,15$ e $0,30$ até $\varepsilon \approx 10,8$. As análises evidenciam que a forma da curva de fluxo acumulativa é similar àquelas associadas ao processo de recuperação dinâmica, apresentando região de encruamento evidente no estágio inicial de deformação, seguida de aspecto quase estacionário da tensão de fluxo para maiores valores de ε . As alterações microestruturais induzidas pela deformação envolvem a evolução progressiva das subestruturas de deslocamentos de baixo ângulo de desorientação para alto ângulo de desorientação com a deformação crescente. Esta evolução é assistida pelo processo de recuperação dinâmica e influenciada pela formação e interseção de microbandas de cisalhamento (MSBs). Assim, o refino de grão, induzido pela deformação, ocorre de maneira progressiva e heterogênea, sendo influenciado pela amplitude de deformação empregada por passe ($\Delta\varepsilon$). O aumento de $\Delta\varepsilon$ no MDF acentua o caráter monotônico do processo resultando em maior número e interseção de MSBs, maior encruamento, maior densidade de deslocamentos, maior fração de grãos submicrométricos, menor tamanho de subestruturas e cinética de refino mais acelerada (em termos de deformação total acumulada) em comparação ao MDF de menor $\Delta\varepsilon$. Com isto, quanto maior $\Delta\varepsilon$, maior a tensão de saturação no intervalo de deformação analisado. Por outro lado, o limite de escoamento a 0,2% no recarregamento é menor que a tensão de fluxo no final do passe imediatamente anterior. Este comportamento é similar ao “efeito Bauschinger” e é mais proeminente para maiores valores de ε e $\Delta\varepsilon$ no MDF.

Palavras-chave: Cobre. Forjamento Multidirecional (MDF). Evolução microestrutural. Amplitudes de deformação. Recuperação dinâmica. Deformação Plástica Severa.

ABSTRACT

Severe Plastic Deformation (SPD) processes have been widely studied as tools for obtaining metals and their alloys with high mechanical strength associated with grain refining down a submicrometric size and the introduction of high dislocation density. Among these processes, Multidirectional Forging (MDF) is one of the simplest and can be readily applied in the industry. In this context, this work aims to investigate the influence of strain amplitude ($\Delta\varepsilon$) and accumulated strain (ε) on the microstructural evolution and mechanical behavior of commercial-purity copper (99.8%) processed at room temperature by Multidirectional Forging (MDF) with $\Delta\varepsilon \approx 0.075, 0.15$ and 0.30 up to $\varepsilon \approx 10.8$. The shape of the cumulative flow curves is similar to other results where dynamic recovery prevails, with a region of hardening in the initial stage of deformation and a practically stationary aspect, with a practically constant flow stress for higher values of ε . Deformation-induced microstructural changes involve the progressive evolution of dislocation structures with low disorientation angles towards structures with high disorientation. This evolution is assisted by dynamic recovery processes and is influenced by the formation and intersection of micro shear bands (MSBs). Thus, the grain refining induced by straining in MDF, occurs in a progressive and heterogeneous process and is strongly influenced by the strain amplitude per pass ($\Delta\varepsilon$). Rising $\Delta\varepsilon$ increases the “monotonic” character of MDF, involving more MSBs and their intersections, higher dislocation densities, higher fraction of sub-micrometric grains, smaller average size of substructures and an acceleration (in terms of accumulated strain) of the grain refinement kinetics, in comparison with MDF with low strain amplitudes. As a consequence, saturation stresses increase as $\Delta\varepsilon$ is raised. On the other hand, the 0.2% yield strength of the material (σ_y) is substantially below the flow stress observed at the end of the previous compression step. This behavior is similar to a “Bauschinger effect” and is more prominent for larger values of ε and $\Delta\varepsilon$ in MDF.

Keywords: Copper. Multidirectional Forging. Microstructural evolution. Strain amplitudes. Dynamic Recovery. Severe Plastic Deformation.

LISTA DE FIGURAS

Figura 1.1 - Representação esquemática do processamento por HPT.....	29
Figura 1.2 - Representação esquemática do processamento por ECAP.....	30
Figura 1.3 - Sequência de compressões ao longo dos 3 eixos ortogonais, $X \rightarrow Z \rightarrow Y$, constituindo 1 ciclo no processamento por MDF.....	30
Figura 1.4 - Variações do processamento por MDF com o uso de matriz: (a) CCDC; (b) CCDP; (c) MDCF.	32
Figura 1.5 - Representação esquemática da curva tensão x deformação para um passe/compressão durante o MDCF. Nota-se a inflexão da curva tensão x deformação logo após contato inicial da amostra com as paredes da matriz.....	33
Figura 1.6 - Evolução micro e subestrutural resultante do processamento do cobre por MDF livre de $\Delta\epsilon \approx 0.4$ à temperatura ambiente: a) MO para $\epsilon \approx 0,4$; (b) MET para $\epsilon \approx 0,4$; (c) MO para $\epsilon \approx 0,8$; (d) MET para $\epsilon \approx 0,8$; (e) Aspecto subestrutural na região destacada na Figura (d), evidenciando a formação de subestruturas de maior desorientação próximas aos contornos de grãos originais, indicados por GB; (f) MO para $\epsilon \approx 5,6$; (g) MET para $\epsilon \approx 5,6$; (h) Imagem correspondente à região destacada na Figura (g). Os números nas Figuras (e) e (h) indicam a desorientação em graus.....	34
Figura 1.7 - Efeito de ϵ (a) no tamanho de (sub)grão (d); (b) no grau de desorientação média dos (sub)grãos (Θ); e (c) na densidade de deslocações no interior do grão (ρ).....	35
Figura 1.8 - Microestrutura para deformação acumulada de (a) 1,2; (b) 2; (c) 4; (d) influência da deformação acumulada no tamanho médio de grão - D e (e) na fração de HAGBs e de grãos ultrafinos (UFG) resultantes do processamento da liga Cu-Cr-Zr na condição solubilizada e submetida ao processamento por MDF de $\Delta\epsilon \approx 0,4$ à temperatura ambiente. As linhas brancas e pretas nas Figuras a, b, c indicam, respectivamente, LAGBs e HAGBs.....	36
Figura 1.9 - Mapas de EBSD para amostras de cobre livre de oxigênio processadas por CCDC à temperatura ambiente até (a) 2 ciclos ($\epsilon \approx 5$); (b) 4 ciclos ($\epsilon \approx 10$); (c) 6 ciclos ($\epsilon \approx 15$); (d) 10 ciclos ($\epsilon \approx 25$); (e) 20 ciclos ($\epsilon \approx 50$). O tamanho médio de grão (D) e a fração de HAGBs (F_{HAGBs}) para cada condição é indicada nas Figuras.	37

Figura 1.10 - Microestrutura da liga de Al 7475 por MDF após processamento por MDF à 490°C e com taxa de deformação $3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$: (a), (a') $\Delta\epsilon \approx 0,7$; $\epsilon \approx 3,5$; (b) $\Delta\epsilon \approx 0,4$; $\epsilon \approx 3,6$. As regiões escuras correspondem a grãos finos, como evidenciado pela Figura a'. MO.....	38
Figura 1.11 - Imagens OIM. Liga de Al 7475 após $\epsilon \approx 2,4$ no processamento por MDF à 490°C e com taxa de deformação $3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$: (a) $\Delta\epsilon \approx 0,4$; (b) $\Delta\epsilon \approx 0,7$. Os diferentes níveis de escala de cinza indicam diferentes orientações cristalográficas. Os contornos brancos indicam ângulo de desorientação $2^\circ < \Theta < 4^\circ$, pretos finos indicam $4^\circ < \Theta < 15^\circ$ e contornos pretos grossos indicam $\Theta > 15^\circ$	39
Figura 1.12 - Relação entre desorientação média dos (sub)contornos induzidos pela deformação e a deformação acumulada para o cobre 99,99% de pureza processado por MDF de $\Delta\epsilon \approx 0,4$ a 195K, 300K e 473K.....	40
Figura 1.13 - Curva tensão verdadeira x deformação verdadeira de amostras recozidas de Al 1100 processadas por compressão monotônica e MDF com diferentes amplitudes de deformação.	41
Figura 1.14 - (a) Curvas tensão x deformação acumulada obtidas para o cobre 99,99% de pureza processado por MDF livre de $\Delta\epsilon \approx 0,4$ a 195K, 300K e 473K; (b) relação entre tensão de fluxo no estado quase-estacionário e tamanho de grão (D) e subgrão (d) para o cobre puro processado por MDF livre de $\Delta\epsilon \approx 0,4$ no intervalo de temperaturas 195K – 573K.	42
Figura 1.15 - Torque medido durante o HPT e o máximo torque no CHPT para (a) Ferro Armco; (b) Níquel.....	43
Figura 1.16 - Tensão de fluxo x deformação equivalente acumulada para o Al de pureza comercial processado por CCDP de $\Delta\epsilon \approx 0,78$. Os números 3, 6 e 9 indicam o número de passes e as linhas na cor azul destacam a evolução da tensão de fluxo com os passes de CCDP.....	44
Figura 1.17 - Representação esquemática da transformação de contornos da configuração “dura” para a configuração “macia”. A configuração inicial, após SPD suficiente, apresenta contornos de grão de “não-equilíbrio”, LAGBs e alta densidade de deslocações no interior do grão. Com deformação plástica adicional, a densidade de deslocações diminui, os contornos evoluem para HAGBs, adquirindo estrutura de maior equilíbrio com menor densidade de deslocações no interior do grão.	45

Figura 1.18 - Gráfico referente à relação de Hall-Petch para o cobre processado por até 3 ciclos de CCDC de $\Delta\varepsilon \approx 0,8$	46
Figura 1.19 – (a) Curva tensão x ciclos de deformação para amostras de cobre recozidas e submetidas a diferentes amplitudes de deformação cíclica – tração/compressão; (b) Curva tensão x ciclos de deformação para amostras de cobre pré-deformadas (33,3% de redução de área) submetidas a diferentes amplitudes de deformação cíclica por tração/compressão.	48
Figura 1.20 - Dependência da estrutura de deslocamentos com a história de carregamento para amostras de cobre previamente deformada 20% por tração (a) e submetida a carregamento cíclico de amplitude $1,9 \times 10^{-3}$ (b); e com microestrutura inicial recozida (c) seguida de carregamento cíclico de amplitude de deformação $1,9 \times 10^{-4}$ (d).	49
Figura 1.21 - (a) Aspecto subestrutural de amostra processada por ECAP, sendo possível observar (1) estrutura equiaxial ultrafina e (2) bandas de cisalhamento lamelares; (b) Subestrutura do cobre processado por ECAP e submetido a teste de fadiga com alta amplitude de deformação (no trabalho dos autores considerada entre 0,02 a -0,005): estrutura celular relativamente equiaxial com considerável grau de desorientação.	50
Figura 1.22 - Microestrutura heterogênea do cobre processado por ECAP e submetido a teste de fadiga de baixa amplitude de deformação ($\sim 0,001$). Existem regiões de: (a) estrutura de células e subgrãos similares à obtida no teste de fadiga com maior amplitude de deformação; (b) estrutura lamelar remanescente do processamento por ECAP e (c) paredes dipolares de deslocamentos nos grãos maiores.	51
Figura 1.23 - Representação esquemática da evolução microestrutural no processamento por ECAP. (a) LAGBs difusos dominam para poucos (~ 2) passes; (b) transição para HAGBs; (c) microestrutura estabilizada. Note que o tamanho médio de grão estabiliza após poucos passes.	52
Figura 1.24 - Mapas de orientação para o Ni processado por HPT monotônico e cíclico. (a) $\Delta\varepsilon \approx 0,5$; $\varepsilon \approx 4$; (b) $\Delta\varepsilon \approx 0,5$; $\varepsilon \approx 16$; (c) $\Delta\varepsilon \approx 0,5$; $\varepsilon \approx 64$; (d) $\Delta\varepsilon \approx 4$; $\varepsilon \approx 4$; (e) $\Delta\varepsilon \approx 4$; $\varepsilon \approx 16$; (f) $\Delta\varepsilon \approx 4$; $\varepsilon \approx 64$; (g) HPT monotônico, $\varepsilon \approx 63$. As linhas brancas correspondem a contornos de $2^\circ < \Theta < 15^\circ$ e as linhas pretas evidenciam contornos de $\Theta > 15^\circ$	54
Figura 1.25 - (a) Tamanho dos elementos estruturais do níquel em função de ε ; (b) razão entre o comprimento de HAGBs e LAGBs.	55

Figura 1.26 - Detalhe da curva de torque medido durante o HPT cíclico do Ni com diferentes valores de amplitude de deformação. O decréscimo no torque após mudança na direção de cisalhamento (+ e -) é indicado.	56
Figura 1.27 - (a) Curva tensão x deformação à temperatura ambiente. As análises por MET foram realizadas em amostras submetidas a deformações do ponto A até E. As imagens (b), (c) e (d) mostram estruturas típicas dos pontos A, C e D, respectivamente. (e) Evolução da densidade de deslocamentos em função da deformação à temperatura ambiente. A densidade de deslocamentos inclui deslocamentos nos subcontornos e dentro das células.....	57
Figura 1.28 - Curva tensão-deformação verdadeiras para compressão monotônica das amostras: An, An + ECAP, An + ECAP + MAC e para o processamento por MAC do Al processado por ECAP.....	59
Figura 1.29 - Mapas de contornos de grão e desorientação para as amostras: (a) An, (b) An+ECAP, (c) An+ECAP+LSA-MAC referentes às condições de processamento apresentadas na Figura 1.15.....	59
Figura 1.30 - Fluxograma de trabalho. O número de ciclos envolvido em cada amplitude refere-se a uma deformação acumulada $\epsilon \approx 0,9, 1,8, 3,6, 7,2$ e $10,8$	60
Figura 1.31 – Matriz empregada no processamento por MDF de $\Delta\epsilon \approx 0,075$. Área da sessão transversal do canal: $13,00 \times 12,52 \text{ mm}^2$	62
Figura 1.32 - Esquema de amostragem para análise microestrutural.....	64
Figure 2.1 - Schematic representation of the specimen plane (highlighted in red) evaluated in the microstructural analyses.....	77
Figure 2.2 - True stress – true strain curves for a Cu specimen processed through 48 cycles of MDF with $\Delta\epsilon \approx 0.075$. The envelope of the individual SS curves is represented in red and the inset refers to the 10th cycle.....	79
Figure 2.3 - OM images of Cu specimens after (a) annealing and further processing by MDF with $\Delta\epsilon \approx 0.075$ up to accumulated strains of (b) 0.9, (c) 1.8, (d) 3.6, (e) 7.2 and (f) 10.8.	80
Figure 2.4 - OIM images for (a) the annealed material and the Cu samples processed by MDF with $\Delta\epsilon \approx 0.075$ up to accumulated strains of (b) 0.9, (c) 1.8, (d) 3.6, (e) 7.2 and (f) 10.8.	81

Figure 2.5 - Boundary maps and fractions of LAGBs and HAGBs for (a) the annealed material and the Cu samples processed by MDF with $\Delta\varepsilon \approx 0.075$ up to accumulated strains of (b) 0.9, (c) 1.8, (d) 3.6, (e) 7.2 and (f) 10.8.....	82
Figure 2.6 - Plots of grain size and fraction of HAGBs as a function of cumulative strain for the annealed metal and the Cu specimens processed by LSA-MDF up to total strains of 0.9, 1.8, 3.6, 7.2 and 10.8. Nevertheless, the fraction of sub- micrometric grains monotonically increases with increasing MDF cycles and reaches $\sim 12\%$ after 48 cycles.....	83
Figure 2.7 - TEM images for the Cu samples processed by MDF with $\Delta\varepsilon \approx 0.075$ up to accumulated strains of (a) 0.9, (b) 1.8, (c) 3.6, (d) 7.2 and (e) 10.8.....	84
Figure 2.8 - Plots of crystallite size and microstrain as a function of cumulative strain for the annealed metal and the Cu specimens processed by LSA-MDF up to total strains of 0.9, 1.8, 3.6, 7.2 and 10.8.	85
Figure 2.9 - Yield strength vs $d^{-1/2}$ for Cu processed by LSA-MDF and ECAP [41,45,50–52] using different strain amplitudes. The numbers inside the data points correspond to the number of cycles.....	87
Figure 2.10 - Grain size (d) vs cumulative strain for Cu specimens processed either by ECAP or MDF with different values of $\Delta\varepsilon$ [18,22,41,45,49–52].....	89
Figure 3.1- Individual and cumulative flow stress curves for Cu specimens processed through a) MDF _{0.15} , b) MDF _{0.30} and c) MDF _{0.075} [23], MDF _{0.15} , and MDF _{0.30}	102
Figure 3.2 - OM images for Cu specimens after processing through MDF _{0.15} and MDF _{0.30} up to accumulated strains of a,b) 0.9, c,d) 1.8, e,f) 3.6, and g,h) 10.8.	104
Figure 3.3 - OIM images for Cu specimens after processing through MDF _{0.15} and MDF _{0.30} up to accumulated strains of a,b) 0.9, c,d) 1.8, e,f) 3.6, and g,h) 10.8.	105
Figure 3.4 - Boundary maps and fractions of boundaries for copper after processing by MDF _{0.15} and MDF _{0.30} up to total strains of a,b) 0.9, c,d) 1.8, e,f) 3.6, and g,h) 10.8.	106
Figure 3.5 - Plots of a) grain size (D) and b) fraction of submicrometric grains ($f_{D\leq 1}$) as a function of ε and $\Delta\varepsilon$ for copper after MDF _{0.075} [23], MDF _{0.15} , and MDF _{0.30}	107

Figure 3.6 - TEM images for copper processed through MDF0.15 or MDF0.30 up to accumulated strains of a,e) 0.9, b,f) 1.8, c,g) 3.6, and d,h) 10.8.	108
Figure 3.7 - a) Cell/subgrain size and b) dislocation density for copper processed up to 24 cycles of MDF _{0.15} and 12 cycles of MDF _{0.30} . Data for MDF [23] were also included.....	109
Figure 3.8 - EBSD pattern quality maps of copper at comparable total strains after a,b) 4 and 48 MDF _{0.075} cycles, c,d) 2 and 24 MDF _{0.15} cycles, and e,f) 1 and 12 MDF _{0.30} cycles.	111
Figure 3.9 - a) Yield strength versus $D^{-1/2}$, b) yield strength versus d^{-1} , and c) saturation flow stress versus d^{-1} for Cu specimens processed through MDF _{0.075} [23], MDF _{0.15} , and MDF _{0.30} . The numbers inside the markers correspond to the number of cycles.....	114
Figure 3.10 - Schematic representations of the microstructures of copper a) after annealing followed by MDF processing up to $\epsilon \approx 10.8$ with b) $\Delta\epsilon \approx 0.075$ or c) $\Delta\epsilon \approx 0.30$	116

LISTA DE TABELAS

Tabela 1.1 - Evolução de propriedades mecânicas, tamanho de grão, fração de HAGBs e microdureza para o cobre livre de oxigênio de alta condutividade processado CCDC de $\Delta\varepsilon \approx 0.8$	45
Tabela 1.2 - Condições de processamento por MDF envolvidas no presente estudo.	63
Table 2.1: Yield strength, grain size and fraction of HAGBs for copper processed by MDF or ECAP at RT for various values of ε and $\Delta\varepsilon$	86

LISTA DE NOTAÇÕES

SPD	<i>Severe Plastic Deformation</i> – Deformação Plástica Severa
LAGBs	<i>Low Angle Grain Boundaries</i> – Contornos de grão de baixo ângulo de desorientação
HAGBs	<i>High Angle Grain Boundaries</i> - Contornos de grão de alto ângulo de desorientação
MDF	<i>Multi-Directional Forging</i> – Forjamento Multidirecional
MAC	<i>Multi-Axial Compression</i> - Compressão Multiaxial
MAF	<i>Multi-Axial Forging</i> – Forjamento Multiaxial
MDF _{0,075}	MDF de $\Delta\varepsilon \approx 0,075$
MDF _{0,15}	MDF de $\Delta\varepsilon \approx 0,15$
MDF _{0,30}	MDF de $\Delta\varepsilon \approx 0,30$
LSA-MDF	<i>Low Strain Amplitude</i> – MDF
CCDP	<i>Confined Channel Die Pressing</i>
CCDC	<i>Cyclic Channel Die Compression</i>
MDCF	<i>Multi-Directional Confining Forging</i>
ECAP	<i>Equal Channel Angular Pressing</i> - Extrusão Angular em Canais Iguais
HPT	<i>High Pressure Torsion</i> - Torção sob Elevada Pressão
CEC	<i>Cyclic Extrusion and Compression</i> - Compressão e Extrusão Cíclicas
HE	<i>Hydrostatic Extrusion</i> – Extrusão Hidrostática
TE	<i>Twist Extrusion</i>
MSBs	Microbandas de Cisalhamento
DRX	Difração de Raios X

EBSD	<i>Electron BackScatter Diffraction</i> – Difração de Elétrons Retroespalhados
CFC	Cúbica de Corpo Centrado
HC	Hexagonal Compacta
FEG	<i>Field Emission Gun</i> - Canhão de elétrons por emissão de campo
F _{HAGBs}	Fração de contornos de alto ângulo de desorientação
An	Amostra na condição recozida
IPF	<i>Inverse Pole Figure</i> - Figura de Polo Inversa
MEV	Microscópio Eletrônico de Varredura
MET	Microscópio Eletrônico de Transmissão
MO	Microscópio Óptico
OFHC	<i>Oxygen-Free High-Conductivity Copper</i> - Cobre Livre de Oxigênio de Alta Condutividade
MSEA	<i>Materials Science and Engineering A</i>
CEFET-MG	Centro Federal de Educação Tecnológica de Minas Gerais
CAB	Centro Atômico de Bariloche
IME	Instituto Militar de Engenharia
CMWP	<i>Convolutional Multiple Whole Profile</i>
RT	<i>Room Temperature</i> – Temperatura Ambiente
ϵ	Deformação verdadeira
$\Delta\epsilon$	Amplitude de deformação plástica
D	Tamanho médio de grão
σ_y	Tensão de escoamento
σ_0	Limite de escoamento médio de cada grão isolado no espaço
k_y	Efeito endurecedor dos contornos de grão
t	Espessura do disco de HPT

r	Raio do Disco de HPT
Ω	Ângulo de rotação no HPT
H_i	Altura inicial da amostra de MDF
H_f	Altura final da amostra de MDF
σ_{sfS}	tensão de saturação por encruamento na deformação cíclica
σ_s	tensão de saturação por encruamento na deformação monotônica
A	Constante que depende da energia de falha de empilhamento
n	Constante que depende da energia de falha de empilhamento
d	Tamanho de célula-subgrão
λ	Comprimento de onda
ρ	Densidade de deslocações
Φ	Ângulo interno de interseção entre canais na matriz de ECAP
ψ	Ângulo associado ao arco externo de curvatura no ponto onde os canais se interceptam na matriz de ECAP
Θ	Grau de desorientação média entre grãos

ESTRUTURA DA TESE

A presente tese é composta de 4 capítulos.

No Capítulo 1 são apresentados: a contextualização do tema; objetivos; revisão da literatura, que compreende alguns dos conceitos fundamentais envolvidos no presente trabalho; e uma breve descrição dos procedimentos experimentais empregados nesta investigação.

Os Capítulos 2 e 3 são compostos, respectivamente, pelos os artigos 1 e 2, cujo título e periódico em que foram publicados são indicados a seguir. Tais publicações correspondem a trabalhos elaborados a partir dos resultados advindos deste estudo e, deste modo, são apresentados neste documento com texto e figuras reproduzidos da maneira como foram publicados nos respectivos periódicos.

- Artigo 1: “*Microstructural evolution and mechanical behavior of copper processed by low strain amplitude multi-directional forging*”, publicado no periódico *Materials Science and Engineering A*.
- Artigo 2: “*Influence of Strain Amplitude on the Microstructural Evolution and Flow Properties of Copper Processed by Multidirectional Forging*” publicado no periódico *Advanced Engineering Materials*.

O Capítulo 4 compreende as conclusões finais e inclui sugestões para trabalhos futuros.

SUMÁRIO

CAPÍTULO 1 – INTRODUÇÃO	24
1.1 Contextualização, Motivação e Originalidade	24
1.2 Objetivos	26
1.3 Revisão Bibliográfica	27
1.3.1 <i>Deformação Plástica Severa</i>	27
1.3.2 <i>O Processamento por MDF</i>	31
1.3.2.1 <i>Evolução Microestrutural no Processamento por MDF</i>	33
1.3.2.2 <i>Comportamento Mecânico</i>	40
1.3.3 <i>Efeito do Caminho de Deformação</i>	46
1.4 Procedimento Experimental	60
1.4.1 <i>Material</i>	61
1.4.2 <i>Métodos Experimentais</i>	61
1.4.2.1 <i>Processamento por MDF</i>	61
1.4.2.2 <i>Caracterização</i>	63
1.5 Referências	65
CAPÍTULO 2 - ARTIGO 1: MICROSTRUCTURAL EVOLUTION AND MECHANICAL BEHAVIOR OF COPPER PROCESSED BY LOW STRAIN AMPLITUDE MULTI-DIRECTIONAL FORGING	74
2.1 Abstract	74
2.2 Introduction	74
2.3 Experimental Procedure	76

2.4 Results	78
2.5 Discussion	85
2.5.1 <i>Mechanical properties in LSA-MDF</i>	85
2.5.2 <i>Microstructural evolution in LSA-MDF</i>	88
2.6 Summary and Conclusions	90
2.7 Acknowledgments	91
2.8 Data Availability	91
2.9 References	91

CAPÍTULO 3 – ARTIGO 2 - INFLUENCE OF STRAIN AMPLITUDE ON THE MICROSTRUCTURAL EVOLUTION AND FLOW PROPERTIES OF COPPER PROCESSED BY MULTIDIRECTIONAL FORGING99

3.1 Abstract	99
3.2 Introduction	99
3.3 Results	101
3.3.1 <i>Stress–Strain Behavior</i>	101
3.3.2 <i>Deformation Microstructures</i>	103
3.4 Discussion	109
3.4.1 <i>Grain Refinement</i>	109
3.4.2 <i>Flow Properties and Bauschinger Effect</i>	112
3.5 Conclusions	116
3.6 Experimental Section	117

3.7 Acknowledgements.....	119
3.8 Conflict of Interest.....	119
3.9 References	119
CAPÍTULO 4 – CONSIDERAÇÕES FINAIS.....	122
4.1 Conclusões Gerais	122
4.2 Sugestões para Trabalhos Futuros	123

CAPÍTULO 1 – INTRODUÇÃO

1.1 Contextualização, Motivação e Originalidade

O desenvolvimento de metais com elevada resistência mecânica e ductilidade tem sido um desafio para a engenharia de materiais. Metais mais resistentes podem, por exemplo, tornar componentes mais leves, resultando em redução do consumo de matéria-prima e tornando máquinas e veículos energeticamente mais eficientes [1,2], fatores interessantes do ponto de vista econômico e ambiental.

Embora as propriedades mecânicas dos metais sejam determinadas por diversos fatores, o tamanho médio de grão desempenha um importante papel, o que tem motivado interesse de pesquisadores nos processos de Deformação Plástica Severa (SPD - *Severe Plastic Deformation*), capazes de produzir metais de grãos ultrafinos, a partir da aplicação de elevado grau de deformação a uma temperatura relativamente baixa, sem que ocorram alterações na área da seção transversal da amostra [3]. Apesar de os mecanismos envolvidos no refino de grão pelos processos de SPD ainda não estejam totalmente compreendidos, o modelo mais comumente aceito é baseado na fragmentação dos grãos originais por contornos formados por deslocamentos introduzidas pelo trabalho plástico [4]. Após deformação suficiente, as deslocamentos se organizam em subestruturas com baixo ângulo de desorientação (LAGBs – *Low Angle Grain Boundaries*) que, com o aumento da deformação, progressivamente evoluem para grãos ultrafinos separados por contornos de alto ângulo de desorientação (HAGBs – *High Angle Grain Boundaries*) [5,6]. Esta evolução é reportada em alguns trabalhos como Recristalização Dinâmica Contínua [7–13], sendo assistida pelo processo de recuperação dinâmica [8,10]. Assim, com elevada abundância de contornos de grão e alta densidade de deslocamentos, nos processos de SPD o aumento de resistência é considerado resultado da contribuição conjunta dos contornos de grão (HAGBs), pela equação de Hall-Petch, e das deslocamentos (livres ou organizadas em LAGBs) [14], como destacado em alguns trabalhos [15–18].

Dentre os processos de SPD, o Forjamento Multidirecional (*Multi-Directional Forging* – MDF) [7,19,20], também conhecido como Compressão Multiaxial (*Multi-Axial Compression* – MAC) [21–23] ou Forjamento Multiaxial (*Multi-Axial Forging* – MAF) [15,19–21], é um dos métodos mais simples [24]. Neste processo, cada ciclo envolve compressões múltiplas de amostra em

forma de paralelepípedo ao longo dos três eixos ortogonais, impondo-se quantidade idêntica de deformação a cada passe [19], podendo ser realizado por meio de compressões livres [9,10,12,22] ou com emprego de matrizes [18,19,25]. O MDF apresenta a vantagem de permitir a análise da curva tensão-deformação do material durante o processamento e tem potencial para aplicações industriais, justificado não apenas pela possibilidade do emprego de amostras de maiores dimensões, mas também pela simplicidade do processo, que pode ser realizado em uma máquina convencional de forja, empregando-se diferentes taxas de deformação e temperaturas homólogas [7]. O processo é normalmente conduzido com amplitude de deformação por passe ($\Delta\varepsilon$) variando entre $\sim 0,4$ [9–12,26] e $\sim 0,8$ [18–20,24,25,27,28], embora o processamento por MDF com $\Delta\varepsilon \leq 0,1$, a partir deste ponto denominado LSA-MDF (*Low Strain Amplitude* - MDF ou MDF de baixa amplitude de deformação), também seja observado em alguns trabalhos [22,23,29–37] e se apresenta como uma alternativa para o processamento de materiais difíceis de deformar à temperatura ambiente, como metais de estrutura cristalina hexagonal compacta (HC) com limitado número de sistemas de deslizamento [30,31].

Diversos estudos [9,11,18,19,35,38,39] mostram que com as múltiplas deformações impostas sob direções ortogonais entre si a cada passe, diferentes estruturas de deformação poderão se desenvolver a partir de diferentes condições de processamento no MDF, influenciando diretamente as propriedades mecânicas dos materiais. Em trabalho pioneiro com Al processado por MDF livre com $\Delta\varepsilon$ variando entre 0,075 e 0,33, ARMSTRONG *et al.* (1982) [38] mostraram que o material encrua mais em carregamento monotônico do que quando deformado ciclicamente; além disso, verifica-se saturação na tensão de fluxo após alguns ciclos de MDF, sendo tanto maior a tensão de saturação quanto maior a amplitude de deformação. Para o cobre OFHC processado à temperatura ambiente por até 3 ciclos de CCDC (*Cyclic Channel Die Compression*, variação do processamento por MDF que envolve o emprego de matriz que restringe fluxo do material em uma direção) com $\Delta\varepsilon \approx 0,8$, KUMAR e RAGHU (2015) [18] mostraram que o limite de escoamento aumenta até o segundo ciclo e diminui no terceiro, o que estaria relacionado à evolução microestrutural. Por outro lado, analisando a influência da amplitude de deformação, SITDIKOV *et al.* [40] mostraram, no processamento da liga de Al 7475 por MDF $\Delta\varepsilon \approx 0,4$ e $0,7$ à 490°C (taxa de deformação $3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$), que maior valor de $\Delta\varepsilon$ resulta em maior densidade de contornos induzidos pela deformação e menor tamanho médio de grãos. De modo análogo, no processamento da liga de Mg AZ31 por LSA-MDF de $\Delta\varepsilon \approx 0,05$ e $0,1$, YANG *et al.* [35] mostraram que $\Delta\varepsilon \approx 0,1$ resulta em maior densidade de maclas finas homogeneamente distribuídas e maior tensão de fluxo quando comparado a $\Delta\varepsilon \approx 0,05$.

Com base nas colocações anteriores, verifica-se que o MDF, com uma metodologia de processo simples, apresenta-se como um processo de SPD de elevada versatilidade, com potencial para ser reproduzido em escala industrial. Para isto, o conhecimento sobre a influência de variáveis de processo, como ε e $\Delta\varepsilon$, na evolução microestrutural do material processado por MDF é fundamental para determinação da melhor rota de processo, que permita a obtenção de propriedades adequadas a cada aplicação, a um menor custo. Apesar disto, poucas investigações têm sido dedicadas à análise da influência da amplitude de deformação ε , no que tange à influência da deformação acumulada, a maioria dos trabalhos que envolvem o processamento de metais de estrutura cúbica de corpo centrado por MDF empregam amplitude de deformação $> 0,4$. Neste contexto, este estudo tem o objetivo de analisar a influência de ε e $\Delta\varepsilon$ na evolução microestrutural e comportamento mecânico do cobre 99,8% de pureza processado por MDF de $\Delta\varepsilon \approx 0,075, 0,15$ e $0,30$ à temperatura ambiente.

1.2 Objetivos

Compreender a influência da deformação acumulada e da amplitude de deformação na evolução microestrutural e comportamento mecânico do cobre 99,8% de pureza submetido ao processamento por MDF à temperatura ambiente.

Para tal, os seguintes objetivos específicos foram estabelecidos:

- Estudar a influência da deformação acumulada na evolução microestrutural e no comportamento mecânico resultante do processamento por MDF de $\Delta\varepsilon \approx 0,075, 0,15$ e $0,30$ em amostras processadas por condições idênticas de deformação acumulada $\varepsilon \approx 0,9, 1,8, 3,6, 7,2$ e $10,8$;
- Investigar o efeito da amplitude de deformação na evolução microestrutural e no comportamento mecânico do cobre processado por MDF a partir da comparação dos resultados obtidos para amostras submetidas ao processamento com $\Delta\varepsilon \approx 0,075, 0,15$ e $0,30$ em condições equivalentes de deformação acumulada.

1.3 Revisão Bibliográfica

Neste trabalho propõe-se a compreender a influência da amplitude de deformação e da deformação acumulada nas propriedades mecânicas e evolução microestrutural do cobre de pureza comercial submetido ao processamento mecânico por Forjamento Multidirecional (MDF, *Multi-Directional Forging*). Para tal, considera-se importante a compreensão dos fundamentos mecânicos envolvidos no MDF e sua influência nas propriedades mecânicas e microestrutura dos materiais. Neste sentido, será apresentada, a seguir, breve revisão da literatura, onde serão apresentados temas considerados relevantes para este estudo: Deformação Plástica Severa (item 1.3.1), com ênfase no processo MDF (item 1.3.2) e, considerando que o MDF guarda semelhanças com deformações cíclicas, será apresentado no item 1.3.3 o Efeito do Caminho de Deformação na evolução microestrutural e propriedades mecânicas de alguns metais.

1.3.1 Deformação Plástica Severa

É sabido que em baixas temperaturas homólogas o limite de escoamento (σ_y) dos metais policristalinos está relacionado com o tamanho médio de grão, D , segundo a equação de Hall-Petch (Equação 1.1) [41], sendo a resistência mecânica tanto maior quanto menor for D . Este fato evidencia ser o refino de grão uma importante ferramenta para controle e otimização das propriedades mecânicas dos materiais metálicos [4], o que tem motivado interesse em processos que sejam capazes de produzir metais com tamanho de grão na escala submicrométrica ($0,1\mu\text{m} < D < 1\mu\text{m}$) e nanométrica ($D < 100\text{nm}$) [3,42].

$$\sigma_y = \sigma_0 + k_y D^{-1/2} \quad (1.1)$$

Em que: σ_0 representa o limite de escoamento médio de cada grão isolado no espaço e k_y é uma constante que representa o efeito endurecedor dos contornos de grão.

Para converter uma microestrutura de granulação grosseira em ultrafina é necessário impor grandes níveis de deformação, introduzindo, assim, elevada densidade de deslocações [43]. Estas se arranjam em configurações de baixa energia, como subestruturas de baixo ângulo de desorientação (LAGBs – *Low Angle Grain Boundary*), promovendo a subdivisão gradual do grão original pelos (sub)contornos emergentes [12]. Com o progresso da deformação, a densidade de deslocações nos subcontornos aumenta, sua espessura diminui e a desorientação

entre células/subgrãos vizinhos aumenta; com isto, os LAGBs (de desorientação, $\Theta \leq 15^\circ$) gradualmente evoluem para contornos de alto ângulo de desorientação (HAGBs – *High Angle Grain Boundary*, $\Theta > 15^\circ$), resultando em refino de grão [14,44]. Esta evolução é reportada em alguns trabalhos como Recristalização Dinâmica Contínua [7–13], sendo assistida pelo processo de recuperação dinâmica [8,10]. Vale mencionar que, em um certo nível de deformação, tanto células e subgrãos (LAGBs) como grãos, delimitados por HAGBs, coexistem, sendo o aumento de resistência considerado resultado da contribuição conjunta das deslocamentos (livres ou organizadas em LAGBs) e dos contornos de grão (HAGBs), pela equação de Hall-Petch [14]. Com isto, as propriedades mecânicas dos materiais processados por SPD serão influenciadas pela quantidade e balanço entre LAGBs e HAGBs [13].

Na prática, os processos convencionais de conformação mecânica, como laminação e trefilação por exemplo, provocam redução da área da seção transversal do material. Assim, a deformação máxima imposta por estes processos é limitada pela baixa conformabilidade das ligas metálicas à temperatura ambiente, dificultando a obtenção de estrutura ultrafina [3]. Em consequência destas limitações, grande atenção tem sido dedicada aos processos de deformação plástica severa (SPD – *Severe Plastic Deformation*) que permitem a imposição de elevado grau de deformação, a uma temperatura relativamente baixa, sem que ocorram alterações significativas na área da seção transversal da amostra, possibilitando o processamento de diferentes metais e ligas e obtenção de grãos na escala submicrométrica e nanométrica [3,43] pelo processo de recristalização dinâmica contínua [7–13].

A primeira tentativa para introduzir princípios científicos nos procedimentos, agora conhecidos como SPD, vieram do trabalho do Professor P.W. Bridgman, na Universidade de Harvard a partir dos anos de 1930, que propôs o processamento de metais por meio de esforços combinados de compressão e torção [45]. Esta abordagem, posteriormente desenvolvida na antiga União Soviética, evoluiu para o processo atualmente conhecido como *High Pressure Torsion* (HPT - Torção sob Elevada Pressão) [45] e consiste em deformar um disco fino por meio de torção sob elevada pressão [46], como representado esquematicamente na Figura 1.1 [47]. A deformação (ϵ) imposta ao disco depende de sua espessura (t) e raio (r), bem como do ângulo de rotação (Ω), sendo dada por: $\epsilon = (\Omega r) / (t \sqrt{3})$. Atualmente o HPT é considerado como uma das técnicas mais eficientes para o refino de grão; entretanto, o HPT apresenta restrição no tamanho das amostras, que tipicamente tem 10~15mm de diâmetro e ~1mm de espessura [4].

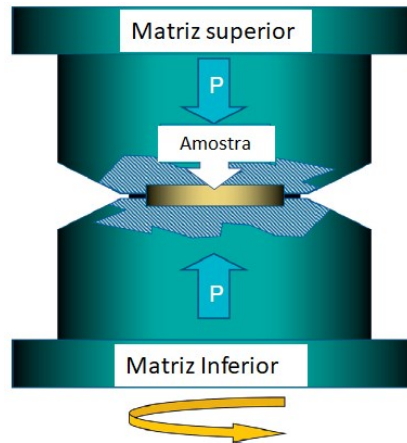


Figura 1.1 - Representação esquemática do processamento por HPT.

Adaptado de [47]

Um segundo importante desenvolvimento foi o processamento por Extrusão Angular em Canais Iguais (ECAP - *Equal Channel Angular Pressing*) em 1972, proveniente do trabalho do Dr V. M. Segal e colaboradores em Minsk na antiga União Soviética [3]. Neste processo, o tarugo é deformado por cisalhamento simples ao atravessar a região de interseção entre os canais da matriz que apresentam seção transversal igual e se interceptam segundo determinado ângulo [3,4], como mostrado na Figura 1.2. A área da seção transversal do tarugo permanece inalterada durante o processamento, permitindo o acúmulo de elevado nível de deformação, cujo valor é função do ângulo de interseção entre canais (Φ) e do arco externo de curvatura (Ψ) onde os canais se interceptam, sendo calculada por $\epsilon = \{2 \cot [0,5 (\Phi + \Psi)] + \Psi \operatorname{cosec} [0,5 (\Phi + \Psi)]\} / \sqrt{3}$ [4]. Além do projeto de matrizes, variações no processo envolvem rotação do tarugo em torno do próprio eixo entre passes, levando a diferentes rotas e resultados em termos de textura e microestrutura [3].

Além do HPT e ECAP, o MDF [2,7,19,20,48], também conhecido como *Multi-Axial Compression* – MAC [21–23] ou *Multi-Axial Forging* – MAF [15,19–21] está entre as principais técnicas de SPD em estudo pela comunidade científica [7]. O MDF consiste em compressões ou forjamentos múltiplos de amostra em forma de paralelepípedo ao longo de seus três eixos ortogonais [3,24] (Figura 1.3), sendo a deformação, a cada compressão, calculada por: $\epsilon = \ln(H_i/H_f)$ onde H_i e H_f são altura inicial e final da amostra, respectivamente [7]. Este processo, em estudo na presente pesquisa, será discutido em mais detalhes no item 1.3.2.

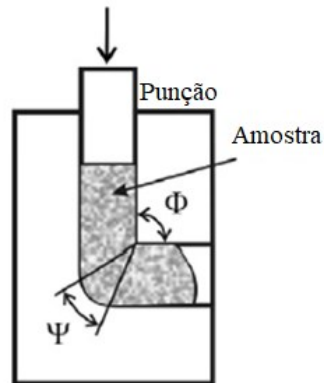


Figura 1.2 - Representação esquemática do processamento por ECAP.
Adaptado de [7].

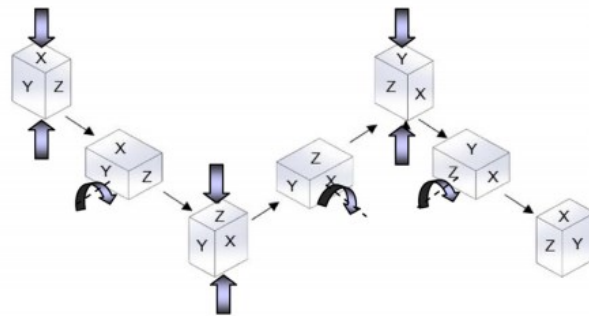


Figura 1.3 - Sequência de compressões ao longo dos 3 eixos ortogonais, $X \rightarrow Z \rightarrow Y$, constituindo 1 ciclo no processamento por MDF.
Adaptado de [22].

Nota-se que os processos HPT, ECAP e MDF diferem entre si em vários aspectos, como, por exemplo, no caráter monotônico do processo, no princípio físico de operação e no tamanho das amostras envolvidas [49], sendo ECAP e MDF normalmente empregados para o processamento de amostras de maiores dimensões [50]. Vale mencionar que, embora resulte em menor refino de grão quando comparado ao HPT [4] ou ECAP [51], o MDF apresenta algumas vantagens, como a possibilidade de obtenção e análise das curvas tensão x deformação para cada incremento de deformação e o seu potencial para aplicações industriais, justificado não apenas pela possibilidade do emprego de amostras de maiores dimensões, mas também pela simplicidade do processo, que pode ser realizado em uma máquina convencional de forja empregando-se diferentes taxas de deformação e temperaturas homólogas [7].

1.3.2 O Processamento por MDF

Como previamente apresentado no item 1.3.1, o MDF é conceitualmente simples [24] e pode ser realizado por meio de compressões livres [9,10,12,22,38] ou com emprego de matrizes [15,18,24,25,52]. A cada ciclo, representado na Figura 1.3, a amostra é submetida a 3 compressões/forjamentos sequenciais ao longo dos eixos ortogonais, alterando-se em 90° a direção da deformação aplicada entre as múltiplas compressões [21] e impondo-se quantidade idêntica de deformação a cada passe [18]. O processo é projetado de modo que ao final de cada ciclo a amostra retome suas dimensões originais ao longo dos eixos X, Y e Z.

No MDF livre, sem o emprego de matrizes, após a deformação as superfícies laterais ficam abauladas, resultando em irregularidades e vários tipos de distorções que podem causar desalinhamento do corpo de prova em relação ao eixo de processamento e dificuldades na determinação de medidas instantâneas da amostra [22,53]. Com isto, a curva tensão x deformação resultante do processamento não descreve adequadamente o comportamento mecânico do material [53], tornando necessária a usinagem das faces para dar sequência ao processo [22,24,38,53]. Este retrabalho envolvido na usinagem, e conseqüente perda de material, pode ser minimizado/evitado pelo emprego de matrizes que restrinjam o fluxo de material [18,52].

No que tange ao uso de matrizes, verificam-se na literatura variações do processamento por MDF como o *Cyclic Channel Die Compression* (CCDC) [18,19,24], *Confined Channel Die Pressing* (CCDP) [15,51,54,55] e o MDF confinado (*Multi-Directional Confining Forging - MDCF*) [29,52,56]. Embora o CCDC e o CCDP envolvam compressões em estado plano de deformação, tais processos diferem entre si no confinamento da amostra pela matriz. Enquanto no CCDC, esquematizado na Figura 1.4a, o canal da matriz é composto por duas paredes paralelas, resultando em confinamento da amostra em uma direção e permitindo o abaulamento em outra, no CCDP, Figura 1.4b, o confinamento ocorre em duas direções ortogonais à direção de compressão. Por outro lado, no MDF confinado, processo em análise na presente pesquisa, de modo semelhante ao MDF livre, a expansão lateral da amostra ocorre inicialmente nas duas direções ortogonais à direção de compressão até o contato do abaulamento lateral com as paredes da matriz (Figura 1.4c), permitindo a determinação adequada das curvas tensão x deformação a cada passe [52].

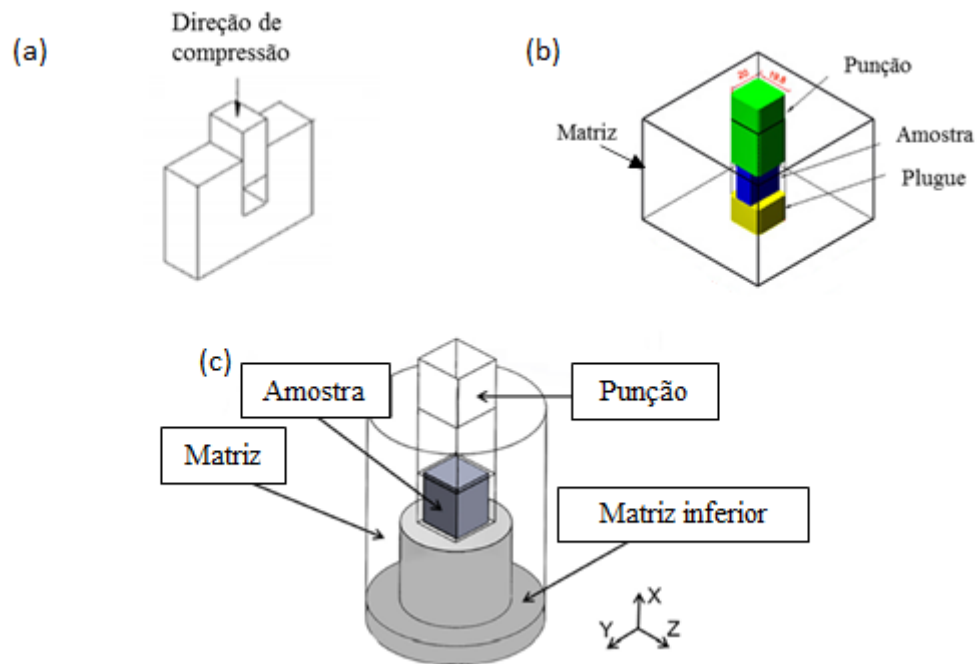


Figura 1.4 - Variações do processamento por MDF com o uso de matriz: (a) CCDC; (b) CCDP; (c) MDCF.

Adaptado de (a) [24]; (b) [15]; (c) [52].

Tanto no CCDP [15] como MDCF [52], as paredes da matriz restringem, a partir de certo ponto do processo, o fluxo plástico da amostra e impõem um estado triaxial de tensões, resultando em rápido aumento da tensão após contato inicial da amostra com as paredes da matriz, como representado esquematicamente para o MDCF, na Figura 1.5, pela curva AB [52]. Considerando-se que no MDCF a ausência de confinamento resultaria no comportamento representado pela curva AC (Figura 1.5), o efeito da compressão confinada é desconsiderado para análise do comportamento mecânico do material [52]. De acordo com ALMEIDA *et al.* (2020) [52], o MDCF pode ser considerado rota preferencial para o processamento por MDF, pois além de apresentar caminho de deformação semelhante ao MDF livre, é simples, prático, rápido, elimina a necessidade de re-usinagem da amostra após cada compressão e permite a adequada determinação da curva de fluxo para cada compressão.

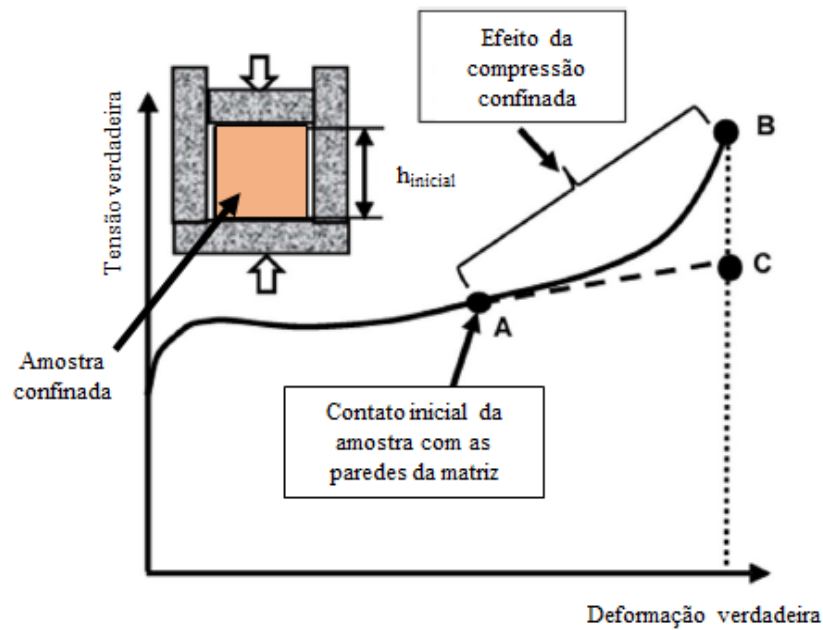


Figura 1.5 - Representação esquemática da curva tensão x deformação para um teste/compressão durante o MDCF. Nota-se a inflexão da curva tensão x deformação logo após contato inicial da amostra com as paredes da matriz.

Adaptado de [52].

1.3.2.1 Evolução Microestrutural no Processamento por MDF

As pesquisas referentes ao MDF são conduzidas com grande variedade de metais e ligas, inclusive materiais difíceis de deformar, como metais de estrutura cristalina hexagonal compacta (HC) com limitado número de sistemas de deslizamento [30,31]. O processo é normalmente conduzido em temperatura homóloga variando entre 0,1 a 0,5 [4,22] e com $\Delta\varepsilon$ entre $\sim 0,4$ [2,9–12,26] e $\sim 0,8$ [18–20,24,25,27,28,51], sendo também verificados trabalhos envolvendo $\Delta\varepsilon \leq 0,1$ [22,23,52,30–37], a partir deste ponto denominado LSA-MDF [52] (*Low Strain Amplitude* - MDF ou MDF de baixa amplitude de deformação).

O efeito da deformação acumulada (ε) na evolução micro e subestrutural do cobre processado a 300K por MDF livre de $\Delta\varepsilon \approx 0,4$ [12] pode ser verificada nas Figuras 1.6 e 1.7. Por microscopia óptica (MO), nota-se, já nos passes iniciais ($\varepsilon \approx 0,4$, Figura 1.6a e $\varepsilon \approx 0,8$, Figura 1.6c), a formação de microbandas (MSBs), consideradas regiões planares de cisalhamento localizado, que cortam o grão original [7]. Quando observadas ao Microscópio Eletrônico de Transmissão (MET), verifica-se que tais MSBs são delimitadas por paredes densas de deslocamentos [8,12], como mostrado na Figura 1.6b e 1.6d para $\varepsilon \approx 0,4$ e 0,8, respectivamente.

As alterações no caminho de deformação com as múltiplas compressões resultam na operação de vários sistemas de deslizamento e, assim, as MSBs se multiplicam e se cruzam mutuamente, resultando na subdivisão do grão original em microvolumes [7], sendo possível observar microestrutura refinada e aproximadamente equiaxial para $\epsilon \approx 5,6$ (Figura 1.6f) [12]. As análises por MET evidenciam que tal refino observado por MO está associado à evolução de densa subestrutura de deslocações, introduzidas pelo trabalho plástico, resultando na fragmentação do grão original pelo aumento e interseção de subcontornos/MSBs, com a formação de (sub)grãos, cujo tamanho diminui e o grau de desorientação média (Θ) aumenta gradualmente com a deformação acumulada, como pode ser verificado na Figura 1.7a e 1.7b, respectivamente. Para $\epsilon \approx 5,6$ (Figura 1.6g), é possível notar a formação de novos grãos aproximadamente equiaxiais, alguns com baixa densidade de deslocações em seu interior, levando a um decréscimo na densidade média de deslocações (Figura 1.7c) [12].

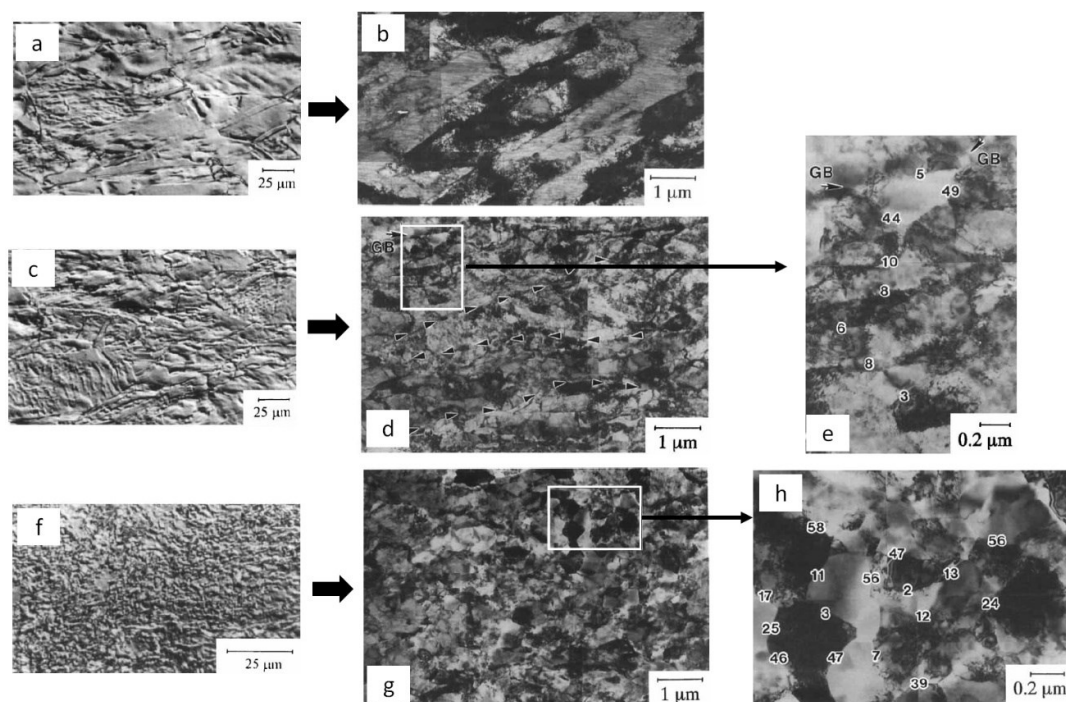


Figura 1.6 – Evolução micro e subestrutural resultante do processamento do cobre por MDF livre de $\Delta\epsilon \approx 0.4$ à temperatura ambiente: a) MO para $\epsilon \approx 0,4$; (b) MET para $\epsilon \approx 0,4$; (c) MO para $\epsilon \approx 0,8$; (d) MET para $\epsilon \approx 0,8$; (e) Aspecto subestrutural na região destacada na Figura (d), evidenciando a formação de subestruturas de maior desorientação próximas aos contornos de grãos originais, indicados por GB; (f) MO para $\epsilon \approx 5,6$; (g) MET para $\epsilon \approx 5,6$; (h) Imagem correspondente à região destacada na Figura (g). Os números nas Figuras (e) e (h) indicam a desorientação em graus.

Adaptado de [12].

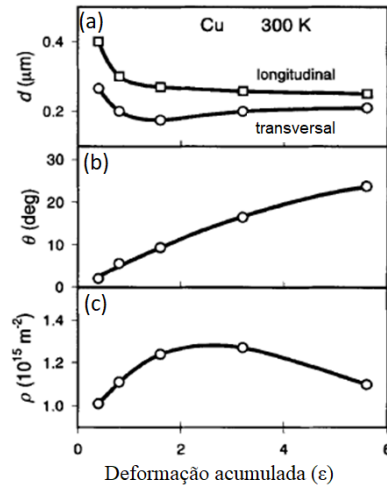


Figura 1.7 - Efeito de ϵ (a) no tamanho de (sub)grão (d); (b) no grau de desorientação média dos (sub)grãos (Θ); e (c) na densidade de deslocações no interior do grão (ρ).

Adaptado de [12].

A importância das MSBs na evolução e refino microestrutural foi destacada em trabalho recente de SAKAI *et al.* (2014) [7] e é frequentemente associada à formação de grãos ultrafinos em processos de SPD como MDF e ECAP de diversos metais e ligas em diferentes temperaturas [7,8,10–12,27,39,57–61]. A recuperação dinâmica também tem importante papel no desenvolvimento de novos grãos, assistindo o rearranjo de deslocações nas microbandas e a melhoria da forma e estrutura interna dos (sub)contornos induzidos pela deformação [39].

Na Figura 1.6e, nota-se que o aumento de desorientação dos subcontornos ocorre mais rapidamente nas vizinhanças dos contornos de grão originais quando comparado ao interior dos grãos [9,12]. Isto pode estar relacionado ao fato que, próximo à região do contorno, a restrição imposta à deformação pelo grão vizinho é maior que longe desse contorno e mais sistemas de deslizamento são acionados em relação ao centro do grão, resultando em rápido desenvolvimento de gradientes de deformação na região dos contornos de grão originais [7]. Com isto, o processo de Recristalização Dinâmica Contínua pode envolver a formação de microestrutura do tipo *necklace-like* [7], que consiste em uma cadeia de grãos ultrafinos ao redor do grão grosseiro original remanescente, como mostrado na Figura 1.8c, extraída do trabalho de SHAKHOVA *et al.* (2014) [11], envolvendo o processamento da liga solubilizada Cu-Cr-Zr por MDF de $\Delta\epsilon \approx 0,4$ à 300K.

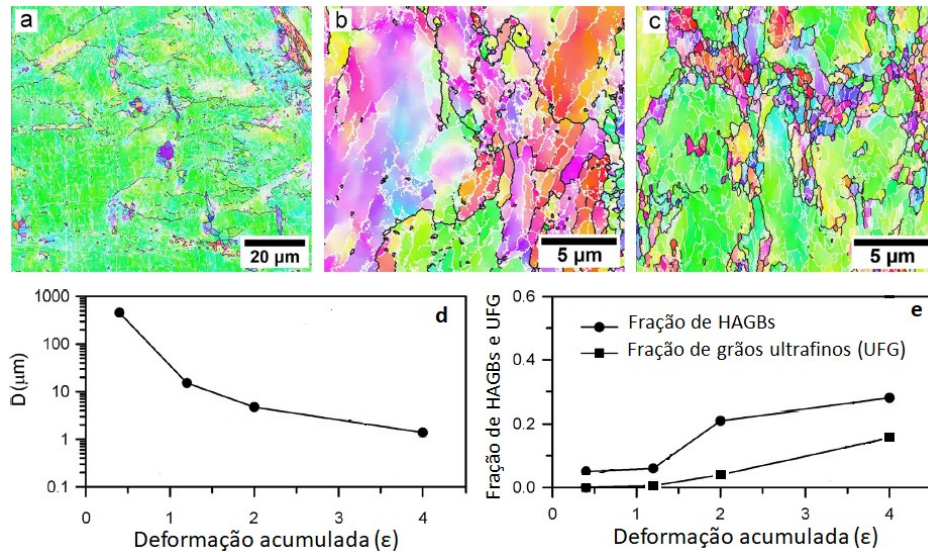


Figura 1.8– Microestrutura para deformação acumulada de (a) 1,2; (b) 2; (c) 4; (d) influência da deformação acumulada no tamanho médio de grão - D e (e) na fração de HAGBs e de grãos ultrafinos (UFG) resultantes do processamento da liga Cu-Cr-Zr na condição solubilizada e submetida ao processamento por MDF de $\Delta\varepsilon \approx 0,4$ à temperatura ambiente. As linhas brancas e pretas nas Figuras a, b, c indicam, respectivamente, LAGBs e HAGBs.

Adaptado de [11].

Por meio da Figura 1.8, SHAKHOVA *et al.* (2014) [11] evidenciam, ainda, que o refino de grão resultante do trabalho plástico decorre do aumento gradual da desorientação dos subcontornos do tipo LAGBs, introduzidos no estágio inicial de deformação, para HAGBs com o aumento de ε (Figuras 1.8a, 1.8b e 1.8c) [11]. De acordo com os autores [11], a formação de grãos submicrométricos ocorre para $\varepsilon \approx 2$ (Figura 1.8e), resultando em redução do tamanho médio de grão em aproximadamente duas ordens de grandeza (Figura 1.8d); a partir deste ponto há um aumento progressivo na fração de grãos ultrafinos com o número de ciclos (Figura 1.8e), resultando em tamanho de médio de grão $\sim 1,4\mu\text{m}$ para $\varepsilon \approx 4$ (Figura 1.8d). Apesar deste refino de grão evidente, a microestrutura de deformação é heterogênea (Figura 1.8c), sendo possível verificar regiões grosseiras remanescentes do grão original, subdivididas por LAGBs, resultando em fração de HAGBs $< 40\%$ para $\varepsilon \approx 4$ (Figura 1.8e) [11].

Tal heterogeneidade microestrutural é também reportada em trabalho de SALISHCHEV *et al.* (2010) [27], envolvendo o processamento de amostras de cobre livre de oxigênio por CCDC de amplitude de deformação $\sim 2,5$ por ciclo à temperatura ambiente. De acordo com os autores [27], mesmo para $5 \leq \varepsilon \leq 15$ (2-6 ciclos, representado pelas Figuras 1.9a, 1.9b e 1.9c), verifica-

se microestrutura heterogênea, com regiões grosseiras subdivididas por densa rede de LAGBs, resultando em fração significativa destes. O tamanho médio de grão (D), que inicialmente é $\sim 15\mu\text{m}$, é reduzido para $2,55\mu\text{m}$ após 2 ciclos (Figura 1.9a) e chega a $1,02\mu\text{m}$ para $\epsilon \approx 50$ (20 ciclos, Figura 1.9e), enquanto a fração de HAGBs (F_{HAGBs}) aumenta monotonicamente chegando a 50% para $\epsilon \approx 50$. Por outro lado, KUMAR e RAGHU [18] reportaram $F_{\text{HAGBs}} \approx 78\%$ após processamento do cobre livre de oxigênio de alta condutividade por 3 ciclos de CCDC com $\Delta\epsilon \approx 0.8$ ($\epsilon \approx 7.2$) resultando em redução do tamanho médio de grão de $\sim 58\mu\text{m}$ na condição inicial para $\sim 3,27\mu\text{m}$, $2,25\mu\text{m}$ e $1,95\mu\text{m}$ após 1, 2 e 3 ciclos, respectivamente.

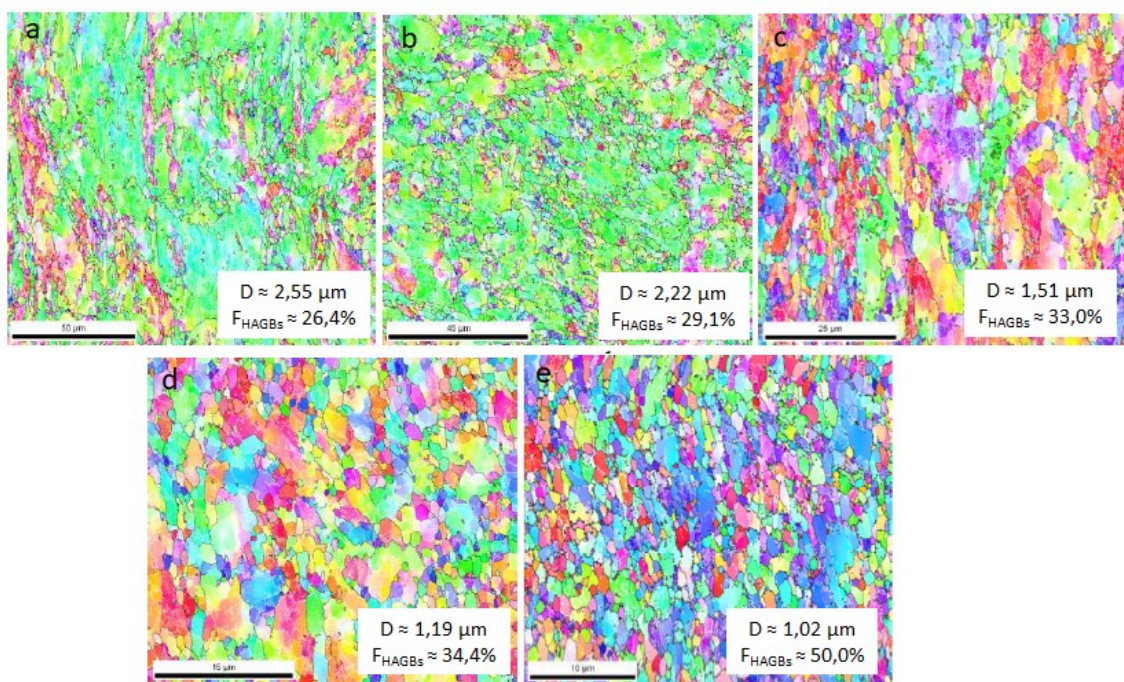


Figura 1.9 - Mapas de EBSD para amostras de cobre livre de oxigênio processadas por CCDC à temperatura ambiente até (a) 2 ciclos ($\epsilon \approx 5$); (b) 4 ciclos ($\epsilon \approx 10$); (c) 6 ciclos ($\epsilon \approx 15$); (d) 10 ciclos ($\epsilon \approx 25$); (e) 20 ciclos ($\epsilon \approx 50$). O tamanho médio de grão (D) e a fração de HAGBs (F_{HAGBs}) para cada condição é indicada nas Figuras.

Adaptado de [27].

Além da deformação acumulada (ϵ), a amplitude de deformação empregada por passe ($\Delta\epsilon$) também exerce influência no refino de grão [51] resultante do processamento por MDF, como apresentado no estudo de SITDIKOV *et al.* [40] com a liga de Al 7475 processada por MDF de $\Delta\epsilon \approx 0,4$ e $0,7$ à 490°C e com taxa de deformação $3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$. Conforme mostrado por MO, Figura 1.10, para valores aproximados de ϵ (3,5 e 3,6 no MDF de $\Delta\epsilon \approx 0,7$ e $0,4$, respectivamente), a fração de grãos finos, representada pela área escura, será maior para $\Delta\epsilon \approx$

0,7 (Figura 1.10a e 1.10a') em comparação à $\Delta\varepsilon \approx 0,4$ (Figura 1.10b). Além disto, nota-se, para as duas condições, a presença de regiões não refinadas que, segundo os autores, persistem mesmo para deformações $\sim 6,3$ e ocupam maior fração da área analisada nas amostras processadas por MDF de $\Delta\varepsilon \approx 0,4$ [40]. A análise por EBSD para $\varepsilon \approx 2$, apresentada na Figura 1.11, evidencia, ainda, que a densidade de contornos e/ou MSBs induzidos pela deformação é maior e o tamanho médio dos novos grãos é menor para o MDF de $\Delta\varepsilon \approx 0,7$ (Figura 1.11b) em comparação com $\Delta\varepsilon \approx 0,4$ (Figura 1.11a) [40]. Segundo os autores [40], isto decorre de uma maior densidade de deslocamentos e maior desorientação dos subcontornos associados a maior amplitude de deformação no MDF, resultando em cinética de refino de grão mais acelerada. De modo análogo, no processamento da liga de Mg AZ31 por LSA-MDF de $\Delta\varepsilon \approx 0,05$ e 0.1, YANG *et al.* [35] mostraram que maior amplitude de deformação resulta em maior densidade de maclas, que são mais finas e homoganeamente distribuídas para $\Delta\varepsilon \approx 0,1$ quando comparado a $\Delta\varepsilon \approx 0,05$.

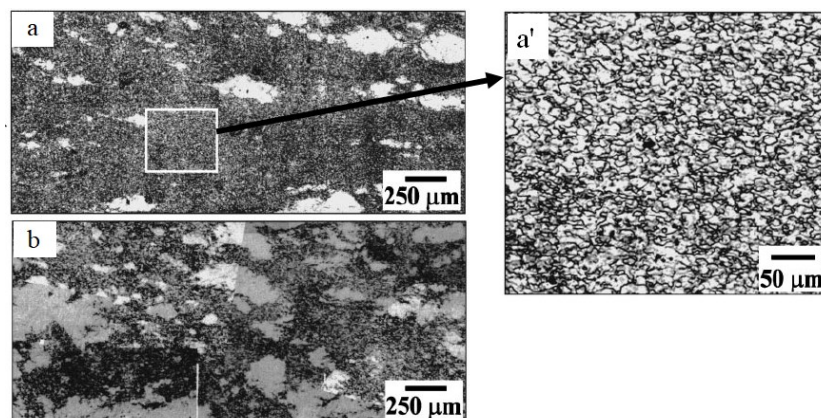


Figura 1.10 - Microestrutura da liga de Al 7475 por MDF após processamento por MDF à 490°C e com taxa de deformação $3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$: (a), (a') $\Delta\varepsilon \approx 0,7$; $\varepsilon \approx 3,5$; (b) $\Delta\varepsilon \approx 0,4$; $\varepsilon \approx 3,6$. As regiões escuras correspondem a grãos finos, como evidenciado pela Figura a'. MO.

Adaptado de [40].

O LSA-MDF tem se mostrado como uma alternativa para o processamento de materiais difíceis de deformar à temperatura ambiente, como as ligas de Mg que, devido à estrutura cristalina hexagonal compacta de limitado número de sistemas de deslizamento, são conhecidas como um dos materiais de mais baixa conformabilidade à temperatura ambiente [31,37]. MIURA *et al.* (2012) [32] processaram a liga Mg-Al-Zn à temperatura ambiente por MDF de $\Delta\varepsilon \approx 0,10$ até $\varepsilon \approx 2,0$ sem a ocorrência de trincas e verificaram que os grãos grosseiros iniciais são gradualmente fragmentados a cada passe por maclação mecânica, obtendo-se microestrutura

ultrafina com excelente balanço entre resistência e ductilidade. Resultados semelhantes foram reportados por MIURA e NAKAMURA (2013) [30] no processamento da liga Mg-8Al à temperatura ambiente por MDF de $\Delta\varepsilon \approx 0,10$ até $\varepsilon \approx 2,0$, obtendo-se tamanho médio de grão $\sim 0,3 \mu\text{m}$. Para os autores [30,32], o emprego de uma baixa amplitude de deformação no MDF resulta em randomização da orientação dos grãos induzida pela maclação mecânica, que ocorre em várias direções, e supressão do desenvolvimento de textura basal acentuada, permitindo a realização de múltiplos passes sem ocorrência de trincas. O LSA-MDF de $\Delta\varepsilon \approx 0,10$ até $\varepsilon \approx 2,0$ à temperatura ambiente foi também empregado no processamento do Ti comercialmente puro em trabalho de MIURA *et al.* (2018) [31], obtendo-se tamanho médio de grão $\sim 0,4 \mu\text{m}$, sem ocorrência de trincas. Por outro lado, FARIA *et al.* (2018) [23] mostraram que o processamento por LSA-MDF de $\Delta\varepsilon \approx 0,075$, após deformação monotônica por 1 passe de ECAP com deformação de $\sim 1,15$, acelera a estabilização da estrutura de deslocações introduzida pelo ECAP, resultando em uma configuração com maior fração de HAGBs e amaciamento do material [22]. Mais detalhes deste trabalho [22] serão abordados no item 1.3.3.

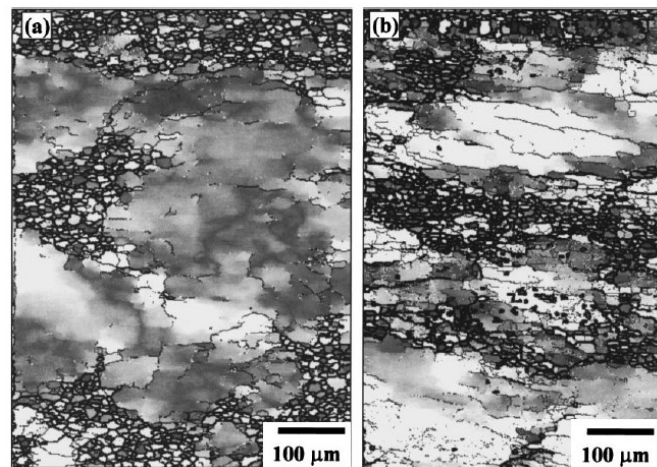


Figura 1.11– Imagens OIM. Liga de Al 7475 após $\varepsilon \approx 2,4$ no processamento por MDF à 490°C e com taxa de deformação $3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$: (a) $\Delta\varepsilon \approx 0,4$; (b) $\Delta\varepsilon \approx 0,7$. Os diferentes níveis de escala de cinza indicam diferentes orientações cristalográficas. Os contornos brancos indicam ângulo de desorientação $2^\circ < \Theta < 4^\circ$, pretos finos indicam $4^\circ < \Theta < 15^\circ$ e contornos pretos grossos indicam $\Theta > 15^\circ$.

Adaptado de [40].

Além do efeito da deformação acumulada e amplitude de deformação, a influência da temperatura de processamento no MDF também tem sido avaliada em alguns trabalhos [8,10,11]. Para o cobre, a Figura 1.12, reportada no trabalho de KOBAYASHI *et al.* [10],

apresenta o efeito da temperatura na relação entre a desorientação média (Θ) dos (sub)contornos induzidos pela deformação e a deformação acumulada (ϵ) no processamento por MDF livre de $\Delta\epsilon \approx 0,4$ a 195K, 300K e 473K. Nota-se que para $\epsilon < 2$, a desorientação aumenta rapidamente para 10° independente da temperatura, sugerindo que, neste estágio, o processo é induzido puramente pela deformação e associado à fragmentação do grão original pelo trabalho plástico, enquanto para $\epsilon > 2$ o processo é favorecido pelo aumento de temperatura [10]. Este resultado sugere que o refino de grão induzido pela deformação resulta não apenas da formação mecânica de grãos delimitados por HAGBs, mas também da ocorrência de recuperação dinâmica para maiores valores de ϵ [7,8,10].

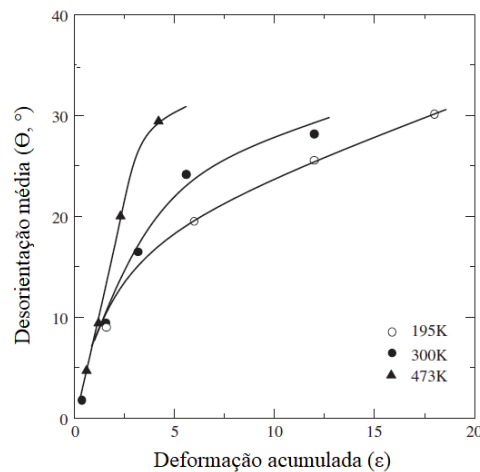


Figura 1.12 – Relação entre desorientação média dos (sub)contornos induzidos pela deformação e a deformação acumulada para o cobre 99,99% de pureza processado por MDF de $\Delta\epsilon \approx 0,4$ a 195K, 300K e 473K.

Adaptado de [10].

1.3.2.2 Comportamento Mecânico

O estudo inicial referente ao processamento por MDF livre parece ter sido realizado por ARMSTRONG *et al.* (1982) [38] com Al 1100 processado à temperatura ambiente por compressão monotônica e MDF de amplitude de deformação por passe ($\Delta\epsilon$) variando entre 0,075 e 0,33. As curvas tensão verdadeira x deformação verdadeira resultantes do processamento monotônico e cíclico são mostradas na Figura 1.13, por meio das quais verifica-se que o material encrua mais em carregamento monotônico que quando deformado ciclicamente; além disto, há uma saturação na tensão de fluxo após alguns ciclos de MDF, sendo tanto maior a tensão de saturação quanto maior a amplitude de deformação. Reunindo dados

para carregamentos cíclicos por tração-compressão, torção e multiaxial para o cobre, alumínio e ferro-alfa, os autores [38] mostraram que, à medida que $\Delta\varepsilon$ diminui, há uma redução na relação entre a tensão de saturação por encruamento na deformação cíclica (σ_{sfS}) e a mesma tensão na deformação monotônica (σ_s), sendo esta correlação expressa pela equação: $\sigma_{sfS} / \sigma_s = A|\Delta\varepsilon|^n$, onde A e n são constantes do material que dependem, principalmente, da energia de falha de empilhamento. Comportamento análogo ao verificado por ARMSTRONG *et al.* (1982) [38] para o Al, foi reportado por COFFIN e TAVERNELLI (1959) [62] e FELTNER e LAIRD (1967) [63] em pesquisas envolvendo o processamento cíclico de metais por tração/compressão, por WETSCHER e PIPPAN (2006) [64] no processamento do Ni e Ferro Armco por HPT monotônico e cíclico e por YANG *et al.* (2013) [35] no processamento da liga de Mg AZ31 por LSA-MDF de $\Delta\varepsilon \approx 0,05$ e $0,10$ à temperatura ambiente.

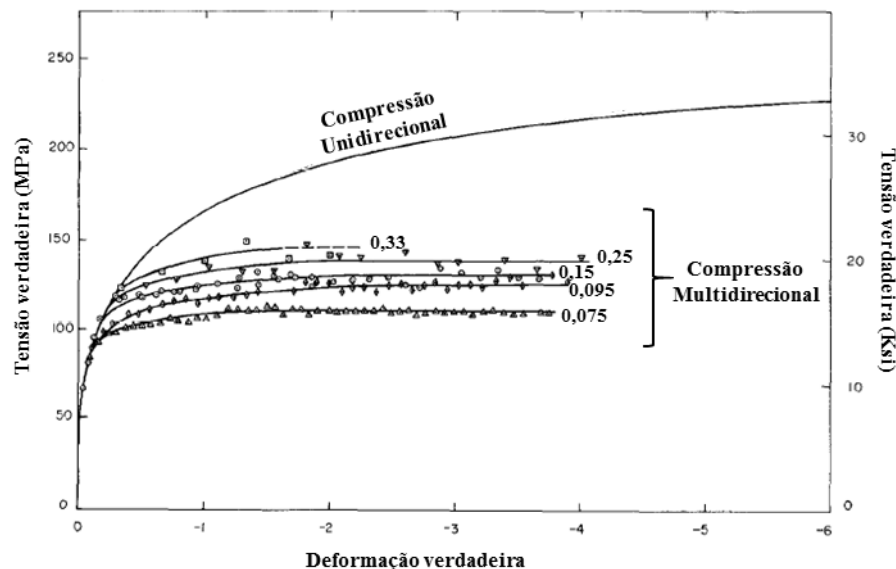


Figura 1.13 – Curva tensão verdadeira x deformação verdadeira de amostras recozidas de Al 1100 processadas por compressão monotônica e MDF com diferentes amplitudes de deformação.

Adaptado de [38].

Esta relação da tensão de fluxo com a amplitude de deformação no carregamento cíclico está associada à evolução microestrutural; de acordo com WETSCHER e PIPPAN (2006) [64], quanto maior $\Delta\varepsilon$ no carregamento cíclico, menor o tamanho estrutural no regime de saturação, maior a fração de HAGBs e mais a curva se aproxima daquela verificada para o carregamento monotônico, sendo o menor tamanho estrutural e maior fração de HAGBs verificados para o

HPT monotônico. Para os autores [64], tal diferença microestrutural resultante dos processos monotônico e cíclico pode ser justificada pela aniquilação de deslocações, favorecida pelas alterações no caminho de deformação no processamento cíclico.

Além da amplitude de deformação, a temperatura de processamento também exerce influência na tensão de saturação no MDF, como reportado por SAKAI *et al.* (2009) [8] para o cobre 99,99% de pureza processado por MDF de $\Delta\varepsilon \approx 0,4$ a 195K, 300K e 473K e mostrado na Figura 1.14a. Nota-se que a tensão de saturação decresce com o aumento da temperatura empregada no MDF [8], o que pode estar associado ao maior tamanho médio de grão (D) e subgrão (d) resultantes do processamento em temperaturas mais elevadas (Figura 1.14b) [10].

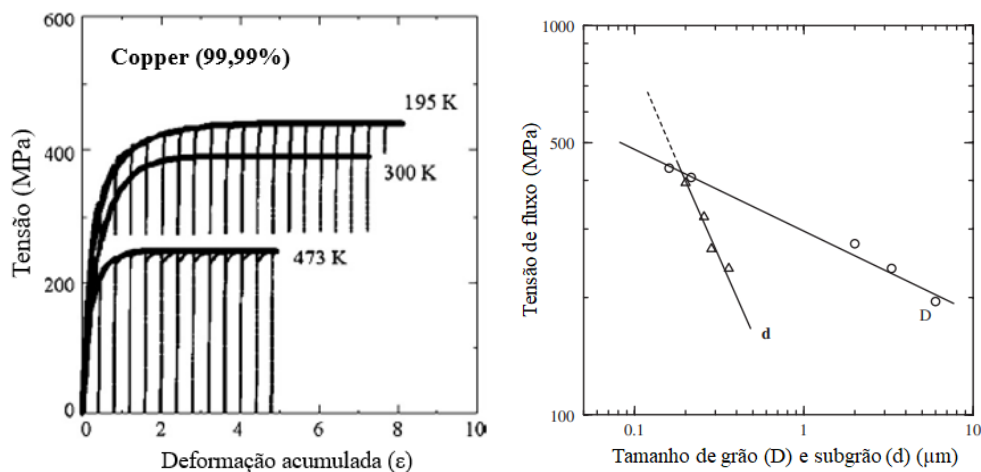


Figura 1.14 – (a) Curvas tensão x deformação acumulada obtidas para o cobre 99,99% de pureza processado por MDF livre de $\Delta\varepsilon \approx 0,4$ a 195K, 300K e 473K; (b) relação entre tensão de fluxo no estado quase-estacionário e tamanho de grão (D) e subgrão (d) para o cobre puro processado por MDF livre de $\Delta\varepsilon \approx 0,4$ no intervalo de temperaturas 195K – 573K.

Adaptado de (a) [8]; (b) [10].

Analisando o aspecto das curvas de fluxo cumulativas, plotadas sobre as curvas individuais de processamento na Figura 1.14a, observa-se que estas apresentam aspecto similar àquele verificado para processamentos mecânicos realizados em alta temperatura homóloga em que domina o processo de recuperação dinâmica. Há uma região inicial de encruamento evidente seguida por outra com taxa de encruamento praticamente nula, resultando em saturação da tensão de fluxo em valor aproximadamente constante para maiores valores de ε [12]. Para o MDF livre à temperatura ambiente, curvas de aspecto similar foram reportadas no processamento do Al [38] e do cobre [26]. Este aspecto quase estacionário da tensão de fluxo

observada no MDF a baixa temperatura homóloga pode estar associado ao elevado nível de deformação acumulada [38], com a competição entre o aumento de resistência, promovido pelo refino de grão, e o amaciamento devido à redução na densidade de deslocamentos pelo processo de recuperação dinâmica [10,12], que, no MDF, é favorecido pela alteração na direção de carregamento entre os múltiplos passes [15]. Ainda na Figura 1.14a, observa-se que a deformação mínima necessária para atingir o estado quase estacionário da tensão de fluxo aumenta com o decréscimo da temperatura de deformação, sendo, de acordo com SAKAI *et al.* (2009) [8], $\varepsilon \sim 1$ para 473K, $\varepsilon \sim 3$ para 300K e $\varepsilon \sim 6$ a 195K.

De modo análogo ao verificado para a temperatura, a amplitude de deformação empregada no processamento cíclico também exercerá influência na deformação mínima necessária para atingir a saturação da tensão, como reportado por WETSCHER e PIPPAN (2006) [64] em estudo envolvendo o processamento do Ferro Armco e Ni por HPT monotônico e cíclico com amplitude de deformação 0,5, 1, 2 e 3. Como evidenciado pela Figura 1.15 [64], a deformação necessária para atingir a saturação do torque depende da amplitude de deformação e será tanto maior quanto maior $\Delta\varepsilon$ no HPT cíclico, se aproximando da curva correspondente ao processo monotônico.

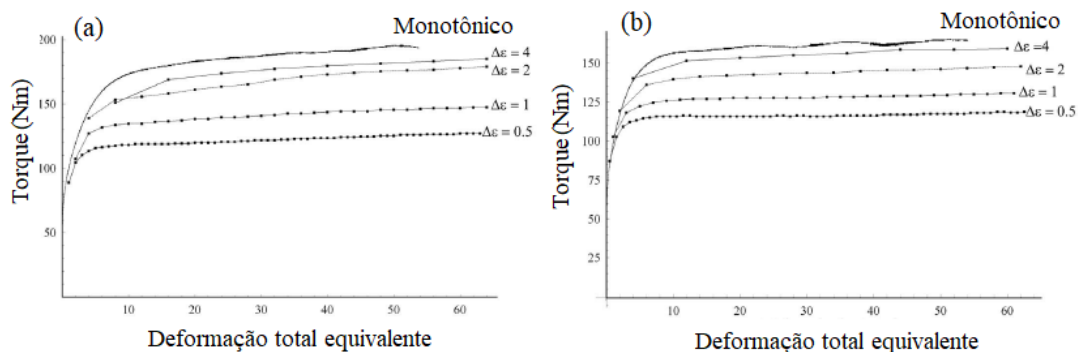


Figura 1.15 – Torque medido durante o HPT e o máximo torque no CHPT para (a) Ferro Armco; (b) Níquel.

Adaptado de [64].

Diferentemente do aspecto quase estacionário da tensão de fluxo verificado após deformação suficientemente elevada na Figura 1.13 para o Al e na Figura 1.14a para o cobre, ambos processados por MDF livre, KAPOOR *et al.* (2013) [15] observaram, para o Al de pureza comercial, ocorrência de amaciamento após 6 passes de CCDP de $\Delta\varepsilon \approx 0,78$ à temperatura ambiente, como mostrado na Figura 1.16. Segundo os autores [15], este amaciamento é

resultado da evolução, representada esquematicamente na Figura 1.17, de estrutura com LAGBs (configuração “dura”, de maior densidade de deslocamentos) para HAGBs (configuração “macia”, de menor densidade de deslocamentos). A fração de HAGBs evolui de 65% no material recozido para 16% após 3 passes de CCDP, 26% para 6 passes e 55% após 9 passes. Ocorre que a resistência dos materiais processados por SPD é resultado do encruamento pela contribuição da alta densidade de deslocamentos originada no processo (incluindo LAGBs) somada à formação de HAGBs, que contribuem para aumento da resistência pela relação Hall-Petch [15]. Entretanto, sendo LAGBs (cujos contornos são constituídos por deslocamentos) os principais obstáculos à movimentação de deslocamentos, a interação entre estas pode ser considerada como o principal mecanismo de aumento de resistência nos materiais processados por SPD [14]. Com isto, o amaciamento observado KAPOOR *et al.* (2013) [15] é justificado pela redução da densidade de deslocamentos à medida que os contornos evoluem de LAGBs para HAGBs de 6 a 9 passes de CCDP.

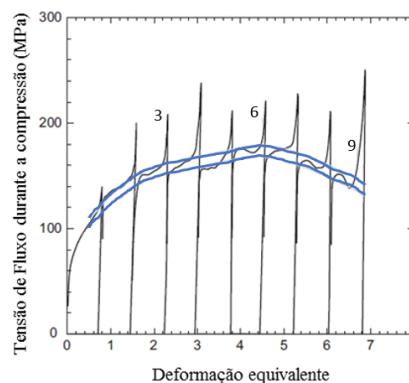


Figura 1.16 - Tensão de fluxo x deformação equivalente acumulada para o Al de pureza comercial processado por CCDP de $\Delta\epsilon \approx 0,78$. Os números 3, 6 e 9 indicam o número de passes e as linhas na cor azul destacam a evolução da tensão de fluxo com os passes de CCDP.

Adaptado de [15].

A influência das alterações microestruturais nas propriedades mecânicas resultantes do MDF foi também reportada por KUMAR e RAGHU (2015) [18] para o cobre livre de oxigênio de alta condutividade processado por até 3 ciclos de CCDC de $\Delta\epsilon \approx 0,8$. Como mostrado na Tabela 1.1, há um aumento significativo de resistência mecânica até o segundo ciclo e, embora refino de grão seja verificado, há um amaciamento a partir do terceiro ciclo sugerindo comportamento inverso à relação Hall-Petch, como mostrado na Figura 1.18, extraída do trabalho dos autores.

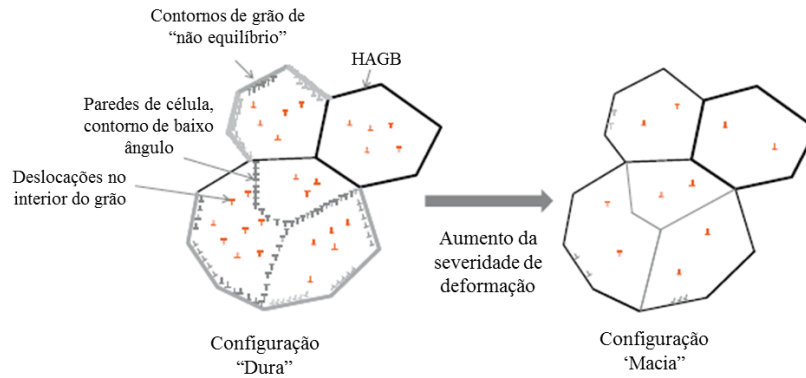


Figura 1.17 - Representação esquemática da transformação de contornos da configuração “dura” para a configuração “macia”. A configuração inicial, após SPD suficiente, apresenta contornos de grão de “não-equilíbrio”, LAGBs e alta densidade de deslocações no interior do grão. Com deformação plástica adicional, a densidade de deslocações diminui, os contornos evoluem para HAGBs, adquirindo estrutura de maior equilíbrio com menor densidade de deslocações no interior do grão.

Adaptado de [15].

Tabela 1.1 - Evolução de propriedades mecânicas, tamanho de grão, fração de HAGBs e microdureza para o cobre livre de oxigênio de alta condutividade processado CCDC de $\Delta\varepsilon \approx 0,8$.

Adaptada de [18].

Número de Ciclos	ε	Tamanho de grão (μm)	Limite de Escoamento (MPa)	Limite de Resistência (MPa)	Alongamento (%)	Fração de HAGBs	Microdureza (Hv)
0	0	58 ± 9	$129,7 \pm 5$	$235,3 \pm 5$	$36,2 \pm 1,6$	0,9	49
1	2,4	3,27	$422,2 \pm 28$	575 ± 30	$9,2 \pm 0,8$	0,71	114,6
2	4,8	2,45	$448,2 \pm 37$	$584,7 \pm 23$	$9,2 \pm 0,7$	0,77	120,6
3	7,2	1,95	$314,5 \pm 12$	$513,5 \pm 21$	$11,2 \pm 1,1$	0,78	126,2

O aumento significativo de resistência nos ciclos iniciais (Tabela 1.1, Figura 1.18) é atribuído ao efeito conjunto do refino de grão e do aumento considerável da densidade de deslocações, cuja mobilidade é reduzida pela interação com outras deslocações livres e com estruturas LAGBs e HAGBs, exigindo maiores tensões para promover a deformação plástica [18]. Por outro lado, a redução de resistência verificada a partir do terceiro ciclo é atribuída ao favorecimento da recuperação dinâmica a elevadas deformações o que resulta em redução da densidade de deslocações em presença de HAGBs, aumentando o caminho livre para

movimentação de deslocamentos e restaurando parte da habilidade de encruamento [18,42,65]. Deste modo, a mudança de inclinação observada na Figura 1.18, não deve ser considerada como “quebra” da equação de Hall-Petch, uma vez que esta considera todos os contornos como HAGBs, que não é o presente caso [18]. Tendência semelhante, com redução de σ_y após determinado nível de deformação acumulada, foi reportada em trabalhos envolvendo o processamento do cobre por ECAP [42,65] e HPT [65].

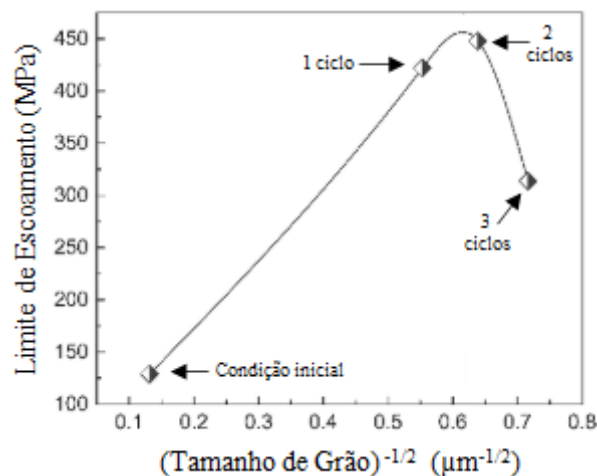


Figura 1.18– Gráfico referente à relação de Hall-Petch para o cobre processado por até 3 ciclos de CCDC de $\Delta\varepsilon \approx 0,8$.

Adaptado de [18].

Ainda na Tabela 1.1 nota-se que o amaciamento reportado por KUMAR e RAGHU (2015) [18], por meio do ensaio mecânico, não é observado por medidas de microdureza, o que, segundo os autores, é atribuído à diferença de sollicitação nestes ensaios; enquanto a dureza é um fenômeno superficial e representa a resistência à deformação por um indentedor, as propriedades mecânicas correspondem à resistência material às condições de carregamento uniaxial em tração.

1.3.3 Efeito do Caminho de Deformação

O desempenho dos produtos metálicos é afetado pelas suas propriedades finais que dependem diretamente das operações e variáveis envolvidas em seu processo de fabricação [66]. Para os processos de conformação mecânica, a análise do caminho de deformação é importante, pois exercerá influência direta na microestrutura, propriedades mecânicas, carga requerida para o

trabalho plástico, resultando em alterações na forma da curva tensão x deformação dos metais [67].

A análise do efeito do caminho de deformação pode ser feita considerando-se deformação em dois ou mais estágios, com esforços sequenciais, em diferentes direções ou sentido, de naturezas distintas ou de mesma natureza, ou envolvendo experimentos relativos à deformação cíclica [66]. No presente trabalho serão abordados alguns estudos envolvendo processamento cíclico por fadiga (tração-compressão), torção cíclica, tração-flexão e MDF em materiais de granulação convencional e ultrafina. Salienta-se que, embora de alguns destes resultados possam não ser direta ou integralmente transferidos para a presente pesquisa, eles são de grande utilidade, considerando-se que grande parte dos processos de SPD envolvem alterações repetidas no caminho de deformação [68,69]. Processos como MDF, em análise no presente trabalho, e *Cyclic Extrusion and Compression* (CEC - Compressão e Extrusão Cíclicas), por exemplo, são cíclicos por definição; por outro lado, em outros processos o caminho de deformação pode ser alterado de maneira opcional, como no ECAP, em que a alteração decorre da rotação do tarugo ao longo seu eixo longitudinal entre os sucessivos passes e, no HPT, em que a alteração no caminho de deformação se dá pela alteração na direção da torção [69]. A influência do caminho de deformação em tais processos de SPD será também abordada no presente item.

Quando um metal é submetido à deformação cíclica, pode ocorrer o amaciamento ou encruamento dependendo de sua estrutura inicial, de modo que metais recozidos geralmente endurecem enquanto materiais previamente trabalhados a frio normalmente amaciam [63]. Tal tendência foi reportada em trabalhos envolvendo carregamentos cíclicos por tração-compressão [62,63], tração-flexão [70,71], torção cíclica [72,73] e MDF [38] em diversos metais e ligas no estado recozido e pré-encruado por processos como compressão monotônica, laminação, trefilação, tração e pode ser verificada na Figura 1.19 [62] para o cobre, metal em análise na presente pesquisa. Para o estado inicial recozido (Figura 1.19a), nota-se que o encruamento cresce à medida que a amplitude de deformação aumenta e, em alguns casos, observa-se um rápido encruamento nos ciclos iniciais seguido de saturação no valor da tensão [62], de modo análogo ao mostrado por ARMSTRONG *et al.* (1982) [38] para o Al processado por MDF (Figura 1.13, discutida no item anterior). Por outro lado, para amostras de cobre pré-encruadas (Figura 1.19b), verifica-se que a deformação cíclica pode promover o amaciamento ou encruamento do material, dependendo da amplitude da deformação cíclica empregada, havendo

amaciamento para menores amplitudes de deformação cíclica e encruamento para amplitudes maiores [62].

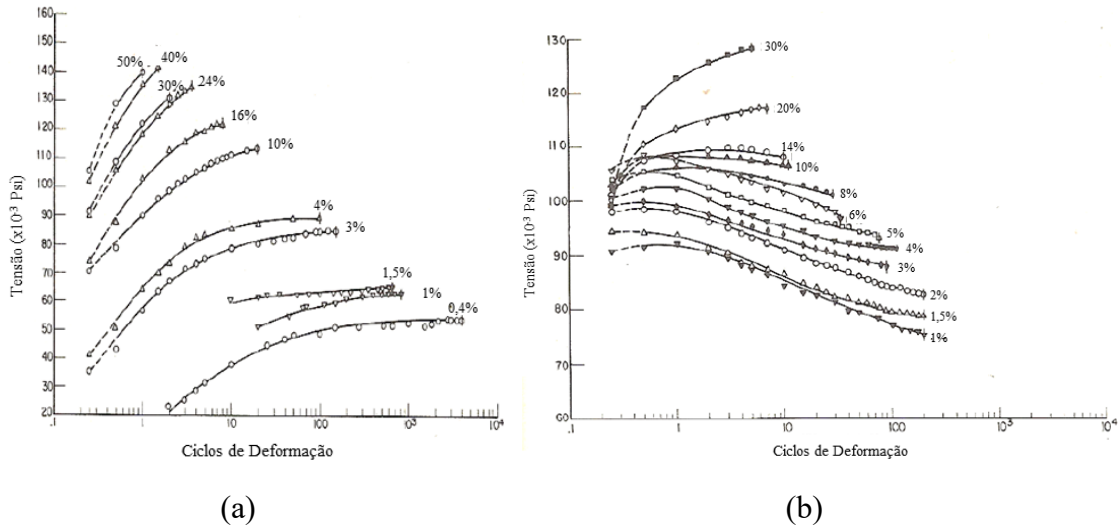


Figura 1.19 – (a) Curva tensão x ciclos de deformação para amostras de cobre recozidas e submetidas a diferentes amplitudes de deformação cíclica – tração/compressão; (b) Curva tensão x ciclos de deformação para amostras de cobre pré-deformadas (33,3% de redução de área) submetidas a diferentes amplitudes de deformação cíclica por tração/compressão. Adaptado de [62].

A história de carregamento tem influência não apenas na resposta mecânica do material, mas também na estrutura de deslocamentos, como reportado por LUKA'S e KUNZ (2002) [74] para amostras de cobre submetidas a carregamento cíclico de amplitude de deformação $1,9 \times 10^{-4}$ partindo-se das condições iniciais recozida ou pré-deformada a 20% em tração. Como mostrado na Figura 1.20, embora o valor da tensão de saturação na curva tensão-deformação cíclica, neste caso, independa do estado inicial da amostra, a estrutura de deslocamentos depende fortemente do caminho de deformação. A amostra pré-deformada por tração, constituída de estrutura celular difusa (Figura 1.20a), amacia no carregamento cíclico posterior até atingir o valor da tensão de saturação, apresentando, ao final do carregamento, estrutura celular de deslocamentos com contornos bem definidos (Figura 1.20b). Já a amostra recozida, caracterizada por baixa densidade de deslocamentos (Figura 1.20c), encrua e, apesar de atingir o mesmo valor para a tensão de saturação, apresenta estrutura de deslocamentos substancialmente diferente (Figura 1.20d), constituída de espécie de “veios” [74]. Por outro lado, para o carregamento unidirecional do Al seguido de MDF de $\Delta\epsilon \approx 0,075$ e $0,15$, ARMSTRONG *et al.* (1982) [38] mostraram que a tensão de saturação no amaciamento do material pré-deformado por

compressão monotônica é superior à tensão de saturação do Al recozido e carregado apenas por MDF, mesmo para deformação multidirecional de ~ 4 após o carregamento unidirecional. Para os autores [38], a deformação monotônica prévia exerce grande influência na microestrutura final, sendo a área ocupada por emaranhados de deslocações maior para a amostra previamente submetida à compressão monotônica. Para FELTNER e LAIRD (1967) [75], esta reversão incompleta da estrutura de deslocações pode ocorrer quando a amplitude de deformação plástica cíclica é pequena ou o deslizamento cruzado é dificultado.

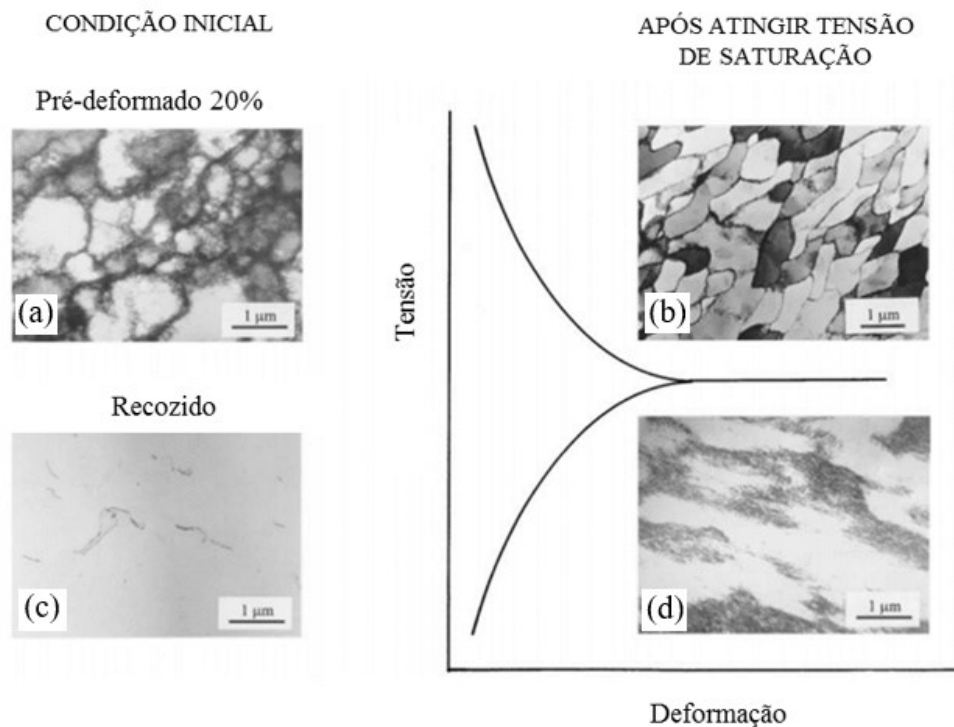


Figura 1.20 - Dependência da estrutura de deslocações com a história de carregamento para amostras de cobre previamente deformada 20% por tração (a) e submetida a carregamento cíclico de amplitude $1,9 \times 10^{-3}$ (b); e com microestrutura inicial recozida (c) seguida de carregamento cíclico de amplitude de deformação $1,9 \times 10^{-4}$ (d).

Adaptado de [74].

De acordo com LAIRD *et al.* (1989) [76], o amaciamento observado em metais previamente encruados e submetidos a carregamento cíclico aumenta com o decréscimo da amplitude de deformação, mas até certo ponto, a partir do qual amplitudes menores tornam-se cada vez menos eficientes em produzir amaciamento cíclico. Foi o que mostrou o estudo desenvolvido por AGNEW *et al.* (1998) [77], que analisaram a estabilidade microestrutural de amostras de cobre (pureza 99,98%) de granulação ultrafina obtida por 10 ($\epsilon \approx 11$) e 14 ($\epsilon \approx 16$) passes de

ECAP e submetidas a ensaio de fadiga por tração-compressão com amplitude de deformação entre 1×10^{-3} e 2×10^{-2} . Segundo os autores [77], houve amaciamento em todos os testes realizados com amplitudes variando entre 0,02 a -0,005, sendo o amaciamento tanto maior quanto menor a amplitude de deformação, comportamento justificado por um decréscimo na densidade de defeitos e mudanças na desorientação dos contornos (Figura 1.21), sugerindo um paralelo entre o amaciamento cíclico e o recozimento de recuperação. Por outro lado, para baixas amplitudes de deformação ($< 0,002$), há um decréscimo no nível de amaciamento, que, para os autores [77], está associado à retenção de regiões “duras” de subestruturas finas remanescentes do processamento por ECAP resultando em notável heterogeneidade na estrutura de deslocações (Figura 1.22).

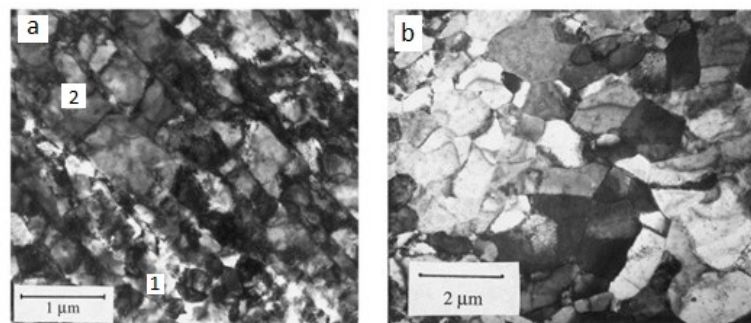


Figura 1.21 - (a) Aspecto subestrutural de amostra processada por ECAP, sendo possível observar (1) estrutura equiaxial ultrafina e (2) bandas de cisalhamento lamelares; (b) Subestrutura do cobre processado por ECAP e submetido a teste de fadiga com alta amplitude de deformação (no trabalho dos autores considerada entre 0,02 a -0,005): estrutura celular relativamente equiaxial com considerável grau de desorientação.

Adaptado de [77].

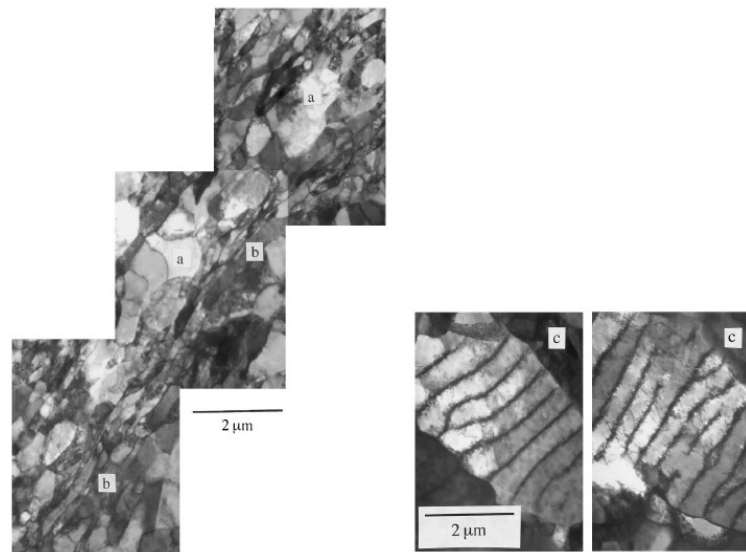


Figura 1.22 – Microestrutura heterogênea do cobre processado por ECAP e submetido a teste de fadiga de baixa amplitude de deformação ($\sim 0,001$). Existem regiões de: (a) estrutura de células e subgrãos similares à obtida no teste de fadiga com maior amplitude de deformação; (b) estrutura lamelar remanescente do processamento por ECAP e (c) paredes dipolares de deslocações nos grãos maiores.

Adaptado de [77]

Além da amplitude de deformação, o amaciamento cíclico parece depender, ainda, da magnitude da deformação prévia, sendo menor a taxa de amaciamento quanto maior for a pré-deformação [78]. Para CHAI e LAIRD (1987) [78], isto decorre do fato que, à medida que a deformação prévia aumenta, a estrutura celular de deslocações evolui para uma configuração de menor energia, com células de menor dimensão e de contornos mais nítidos, sendo esta uma configuração de deslocações mais estável. Assim, apesar do aumento da energia armazenada pelo encruamento, o movimento de deslocações torna-se mais difícil de ser ativado pelo carregamento cíclico e alterações na estrutura são mais difíceis de ocorrer [78]. Para o cobre (99,995% de pureza), por exemplo, MAIER *et al.* (2006) [48] verificaram que a amostra processada por 8 passes de ECAP e submetida a teste convencional de fadiga por tração-compressão (controle de deformação com amplitude = 0,3%) apresenta amaciamento até a falha, enquanto a amostra deformada por 16 passes de ECAP apresenta rápida estabilização da tensão de fluxo (com amaciamento apenas próximo à falha, devido à nucleação e propagação de trincas). Segundo os autores [48], esta diferença de comportamento estaria relacionada à evolução microestrutural no processamento por ECAP; para poucos passes (Figura 1.23a), a microestrutura é dominada por LAGBs fracamente definidos, de modo que a deformação cíclica

causa alterações microestruturais significativas e o amaciamento cíclico é observado. Em contrapartida, para 16 passes (Figura 1.23c), a microestrutura é mais estável, dominada por HAGBs e com isto, o carregamento cíclico adicional promove mudanças estruturais insignificantes, justificando a estabilização na tensão de fluxo [48]. Para um número intermediário de passes (~8, Figura 1.23b) a microestrutura se apresenta em estado de transição de modo que a deformação cíclica parece conduzir a uma configuração microestrutural mais estável, resultando em amaciamento cíclico [48].

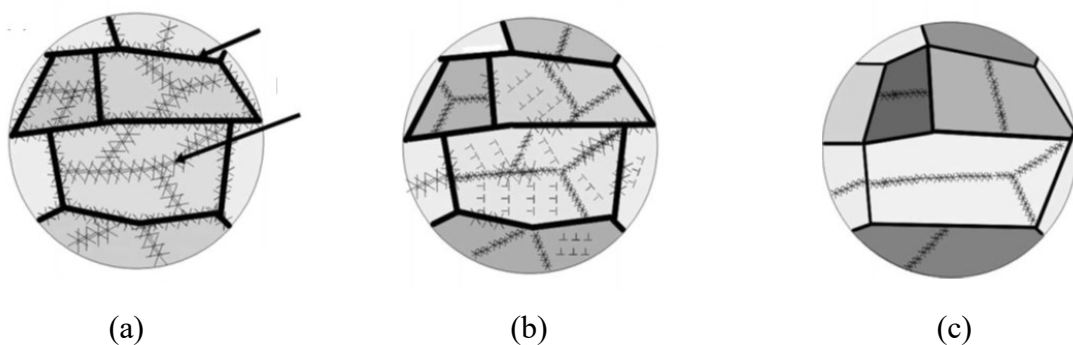


Figura 1.23 - Representação esquemática da evolução microestrutural no processamento por ECAP. (a) LAGBs difusos dominam para poucos (~2) passes; (b) transição para HAGBs; (c) microestrutura estabilizada. Note que o tamanho médio de grão estabiliza após poucos passes. Adaptado de [48].

Para CHAI e LAIRD (1987) [78], o amaciamento verificado em fadiga pode ser considerado um processo de recuperação assistido por carregamento cíclico, onde as deslocações geradas na deformação prévia são aniquiladas e rearranjadas em estruturas de menor energia por mecanismos como deslizamento cruzado e escalada, similares ao processo de recuperação. Além disto, como o carregamento cíclico é capaz de aniquilar e multiplicar deslocações, um encruamento adicional pode ser introduzido nos metais [78].

Assim como verificado para o carregamento cíclico, as alterações no caminho de deformação influenciarão diretamente a microestrutura/subestrutura de deslocações resultante dos processos de SPD. IWAHASHI *et al.* (1998) [80], por exemplo, mostraram que a rota de processamento é fator crítico no desenvolvimento microestrutural e formação de grãos ultrafinos no processamento por ECAP. Os autores [80] processaram Al 99,99% de pureza por 1 a 4 passes de ECAP à temperatura ambiente, com deformação por passe ~1,055, empregando-

se as rotas A (em que o tarugo é processado repetidas vezes sem rotação), B (em que a amostra é rotacionada 90° em torno do eixo longitudinal a cada passe) e C (para a qual a rotação da amostra entre passes é de 180°) e mostraram que a formação de HAGBs é mais rápida na rota B, seguida da rota C e a evolução mais lenta a verificada na rota A. Estes resultados são justificados pelos diferentes padrões de cisalhamento resultantes dos diferentes caminhos de deformação em cada rota [80].

WETSCHER e PIPPAN (2006) [64] avaliaram a influência do processo HPT monotônico e cíclico, com diferentes amplitudes de deformação, no comportamento mecânico (apresentado anteriormente na Figura 1.15) e na evolução microestrutural de amostras de Níquel e Ferro Armco processadas à temperatura ambiente. Para o Ni, nota-se, nas Figuras 1.24 e 1.25, que, assim como o valor do torque na saturação, o tamanho dos elementos microestruturais no HPT monotônico e cíclico saturam em diferentes níveis. Quanto maior a amplitude de deformação no HPT cíclico, menor o tamanho dos elementos estruturais e maior a fração de HAGBs, sendo o menor tamanho estrutural e maior fração de HAGBs verificados para o HPT monotônico [64]. A razão para esta diferença está relacionada ao fato que, para um mesmo valor de ϵ , a redução de $\Delta\epsilon$ no HPT cíclico promove maior aniquilação de deslocações induzida pelo cisalhamento reverso, retardando a cinética de formação de HAGBs [64]. Resultado semelhante foi reportado ORLOV *et al.* (2009) [69] no processamento do Al por HPT monotônico e cíclico. Para os autores [69], este atraso verificado na formação de estruturas de HAGBs no processamento cíclico explicaria a menor taxa de formação de nanoestruturas nos processos de SPD que envolvem deformação cíclica quando comparado com os processos monotônicos.

Estes resultados [64,69] são consistentes com modelo proposto no estudo de PETRYK e STUPKIEWICZ (2007) [81], segundo o qual a deformação “efetiva”, função da deformação equivalente de von Mises, é menor nos processos de SPD que envolvem deformação reversa e, com isto, a saturação na fração de HAGBs é retardada nestes processos. Os autores [81] analisaram dados de processos como HPT, CEC e ECAP em diferentes rotas e mostraram que para o HPT, processo monotônico, a deformação “efetiva” seria igual à deformação equivalente de von Mises. Por outro lado, a CEC, processo cíclico com amplitude de deformação relativamente baixa, apresenta a menor deformação “efetiva” enquanto o ECAP apresenta posição intermediária com valor da deformação “efetiva” dependente da rota de processamento empregada, evidenciando, assim, a influência do caminho de deformação no maior ou menor caráter monotônico dos processos de SPD [81].

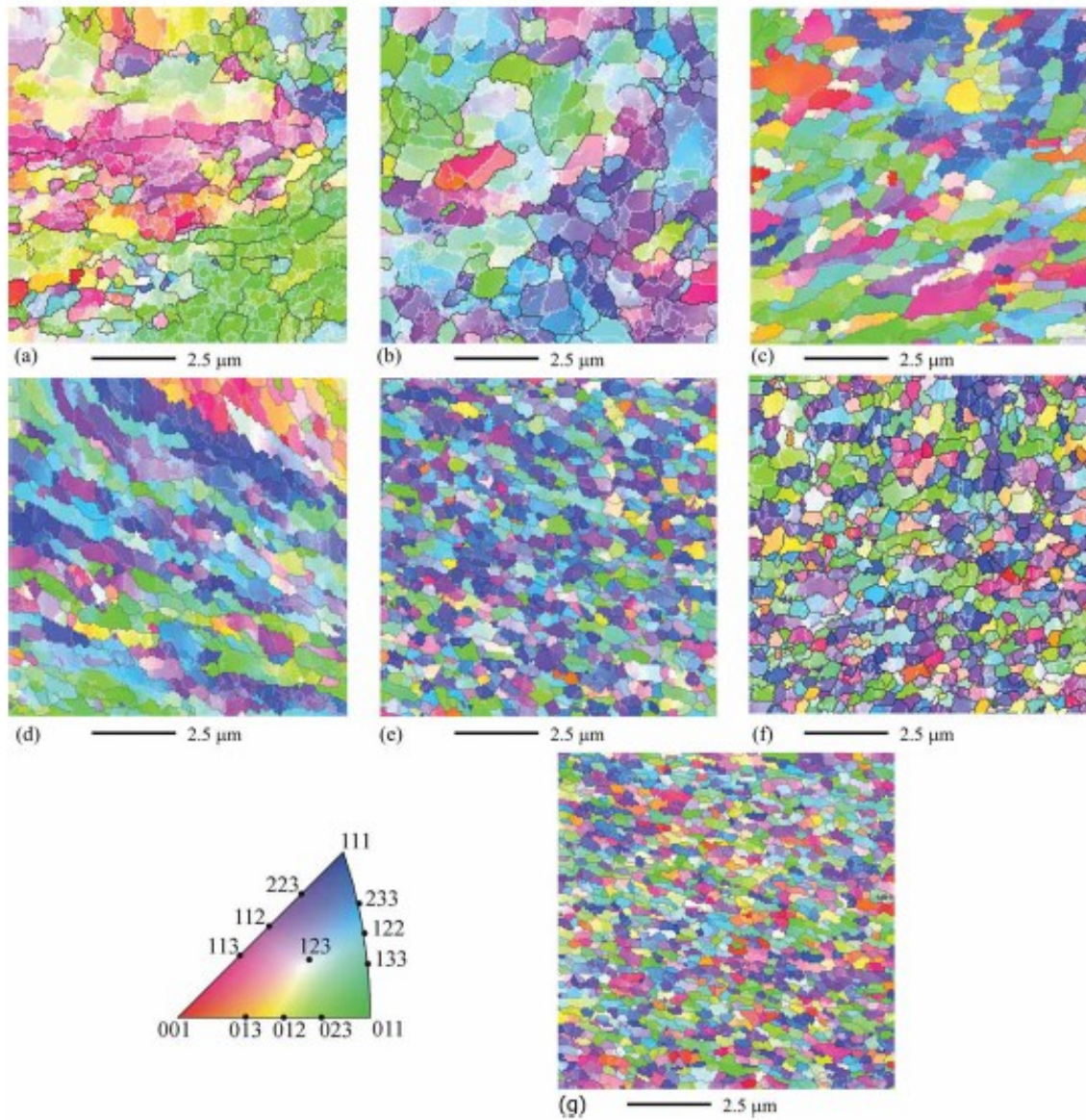


Figura 1.24 - Mapas de orientação para o Ni processado por HPT monotônico e cíclico. (a) $\Delta\varepsilon \approx 0,5$; $\varepsilon \approx 4$; (b) $\Delta\varepsilon \approx 0,5$; $\varepsilon \approx 16$; (c) $\Delta\varepsilon \approx 0,5$; $\varepsilon \approx 64$; (d) $\Delta\varepsilon \approx 4$; $\varepsilon \approx 4$; (e) $\Delta\varepsilon \approx 4$; $\varepsilon \approx 16$; (f) $\Delta\varepsilon \approx 4$; $\varepsilon \approx 64$; (g) HPT monotônico, $\varepsilon \approx 63$. As linhas brancas correspondem a contornos de $2^\circ < \Theta < 15^\circ$ e as linhas pretas evidenciam contornos de $\Theta > 15^\circ$.

Adaptado de [64].

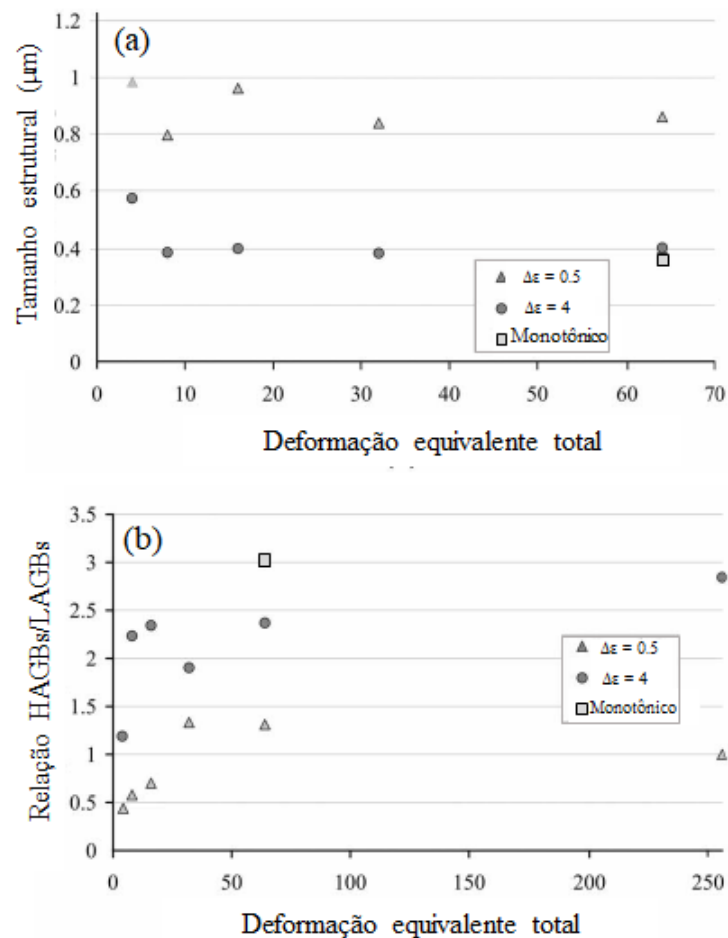


Figura 1.25 – (a) Tamanho dos elementos estruturais do níquel em função de ϵ ; (b) razão entre o comprimento de HAGBs e LAGBs.

Adaptado de [64].

Para o HPT cíclico, WETSCHER e PIPPAN (2006) [64] mostraram, ainda, que após a reversão no caminho de deformação, a tensão cisalhante no início de um novo ciclo é significativamente menor que a máxima tensão verificada no ciclo anterior, como mostrado na Figura 1.26 para o Níquel. Segundo os autores [64], este comportamento está associado à alteração no caminho de deformação, resultando em aniquilação das deslocações criadas no início do novo ciclo com aquelas já presentes no mesmo plano de cisalhamento, mas com sinais opostos, criadas no ciclo anterior. A saturação do torque (Figura 1.15) sugere que, após este processo de aniquilação das deslocações ser exaurido, novas deslocações são criadas para dar continuidade à deformação plástica da amostra. Ainda na Figura 1.26, verifica-se que taxa de encruamento no recarregamento é maior para menor valor de $\Delta\epsilon$ empregado no HPT, o que, para os autores [64], pode estar associado ao maior tamanho microestrutural que resulta em maior capacidade de encruamento.

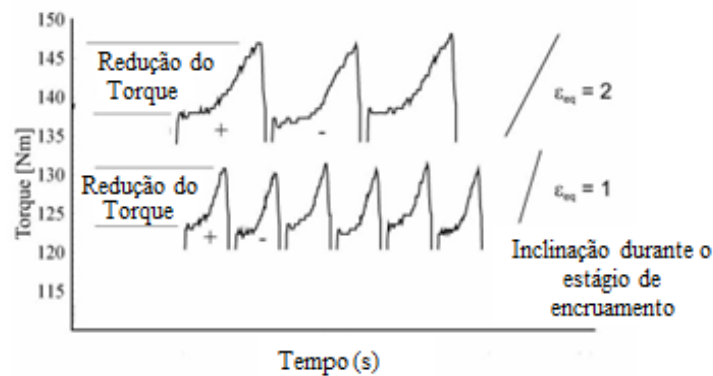


Figura 1.26 – Detalhe da curva de torque medido durante o HPT cíclico do Ni com diferentes valores de amplitude de deformação. O decréscimo no torque após mudança na direção de cisalhamento (+ e -) é indicado.

Adaptado de [64].

Esta menor resistência ao fluxo plástico verificada no recarregamento em direção reversa à do carregamento prévio se assemelha ao Efeito Baushinger, fenômeno importante para compreensão do comportamento dos metais submetidos a carregamentos cíclicos [79], sendo normalmente analisado em estudos que envolvem ensaios de fadiga [69] e explicado, em grande parte, pelo comportamento das deslocções dentro do grão [82]. Um dos mecanismos associados à teoria do Efeito Baushinger propõe que a interação e acúmulo/empilhamento das deslocções em diferentes tipos de barreiras microestruturais, como contornos de grão, durante a deformação plástica prévia, geram tensões residuais que ajudariam o movimento das deslocções na direção contrária de carregamento; um segundo mecanismo propõe que o carregamento em direção reversa proporcionaria a atração/aniquiação de deslocções de sinais contrários no mesmo plano de deslizamento, sendo esta diminuição do número/densidade de deslocções responsável pela redução da resistência mecânica [83,84]. Como consequência destes mecanismos, o limite de escoamento no carregamento reverso é menor que o observado na deformação prévia, originando o Efeito Bauschinger.

HASEGAWA *et al.* (1975) [82] analisaram o papel da deformação reversa na redução da tensão de fluxo e na estrutura de deslocções de amostras de Alumínio (99,99% de pureza) recozidas e submetidas a esforços cíclicos de tração e compressão à temperatura ambiente. De acordo com os autores [82], o menor limite de escoamento verificado em compressão após deformação tratativa prévia (Figura 1.27a) é justificado pela aniquiação de deslocções livres e dissociação das paredes celulares, constituídas por emaranhados de deslocções, desenvolvidas durante o carregamento em tração (Figura 1.27b). Isto resulta em redução da densidade total de

deslocações em $\sim 16\%$ (Figura 1.27e) e distribuição de deslocações mais uniforme na amostra correspondente ao ponto C (Figura 1.27c), representativa do estágio inicial de compressão. Com o aumento de deformação compressiva até o ponto D (Figura 1.27a), são formadas novas paredes celulares, de aspecto semelhante àsquelas formadas em tração (Figura 1.27d), havendo, assim, um aumento na densidade de deslocações (Figura 1.27e) [82]. Deste modo, como a alteração no caminho de deformação favorece a aniquilação de deslocações, a densidade de deslocações resultante de um carregamento monotônico será maior que no cíclico para um mesmo valor de deformação total acumulada [84].

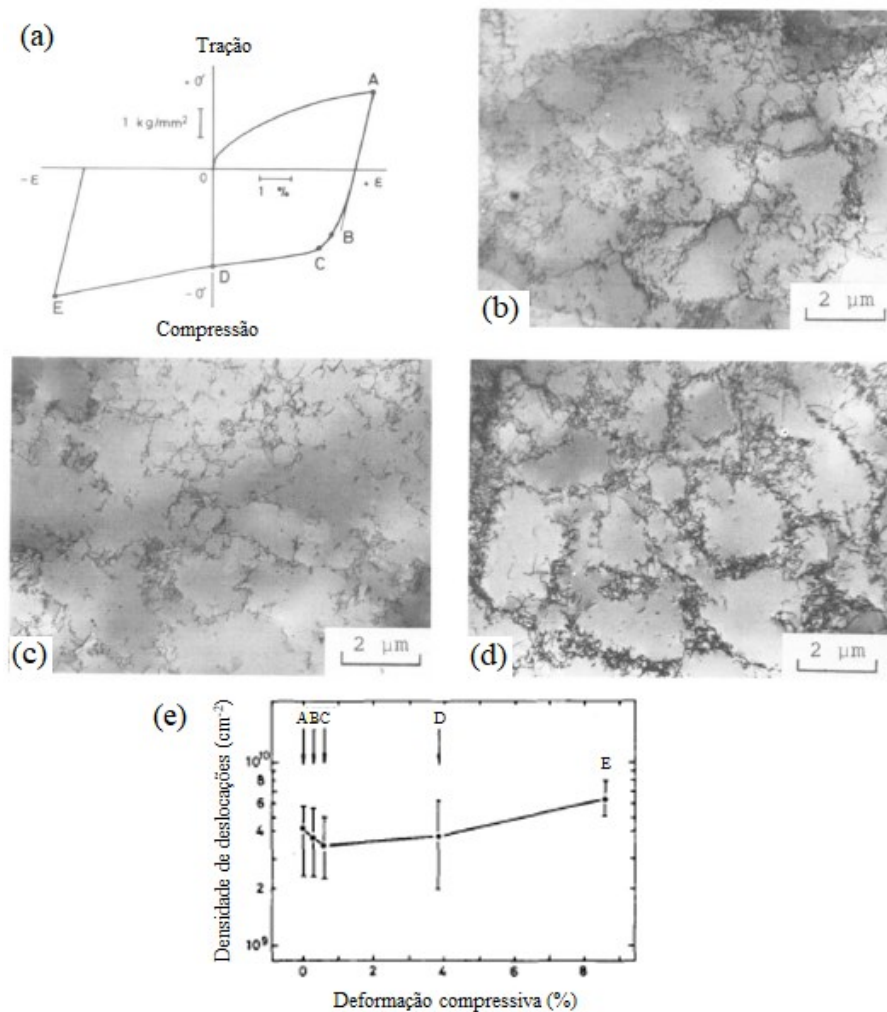


Figura 1.27 - (a) Curva tensão x deformação à temperatura ambiente. As análises por MET foram realizadas em amostras submetidas a deformações do ponto A até E. As imagens (b), (c) e (d) mostram estruturas típicas dos pontos A, C e D, respectivamente. (e) Evolução da densidade de deslocações em função da deformação à temperatura ambiente. A densidade de deslocações inclui deslocações nos subcontornos e dentro das células.

Adaptado de [82].

O efeito Bauschinger parece ser influenciado, ainda, pela distribuição não uniforme dos obstáculos ao movimento das deslocações, que independe do campo de tensões internas [85]. Conforme reportado por LEVINE *et al.* (2009) [85], “regiões macias”, com baixa densidade de deslocações, como o interior de células e subgrãos, têm menor limite de escoamento que “regiões duras” com alta densidade de deslocações e, então, o efeito Bauschinger ocorre no carregamento reverso, porque as regiões macias escoarão primeiro, pelo menos inicialmente, do que seria esperado na direção prévia de carregamento. Comportamento análogo, com amaciamento associado à configuração microestrutural resultante do processamento do Al por MDF, foi reportado em trabalho de KAPOOR *et al.* [15]. Como anteriormente apresentado, a evolução microestrutural nos processos de SPD envolve a evolução de LAGBs para HAGBs, sendo em alguns casos reportada a redução da densidade de deslocações no interior dos grãos recém formados após deformação suficientemente alta [12,15,18,42,65], aumentando, assim, o caminho livre para movimentação de deslocações [15,42,65]. Para KAPOOR *et al.* [15] esta evolução microestrutural, resultaria, então, em uma transição gradual de “endurecimento da rede” para “amaciamento da rede”, o que poderia levar a uma redução no valor do limite de escoamento. Em trabalho recente envolvendo o processamento do Al 1050 por ECAP e *Hydrostatic Extrusion* (HE – Extrusão Hidrostática), CHROMINSKI e LEWANDOWSKA (2019) [86] mostraram que tais heterogeneidades microestruturais, em termos de características de contornos de grão e arranjos locais de defeitos, relacionadas a diferentes condições de processo, determinam a capacidade de encruamento do material, de modo a permitir ou impedir a interação entre deslocações.

Estudos recentes [22,23] sugerem que o amaciamento mecânico resultante do carregamento cíclico pode ser empregado como ferramenta para restauração da capacidade de encruamento de um material pré-deformado por ECAP, de modo que um número adequado de ciclos e amplitude de deformação devem ser experimentalmente selecionados para cada conjunto de propriedades mecânicas desejadas [22]. Foi o que mostrou o trabalho de FARIA *et al.* (2016) [22] (Figura 1.28) para o Al de pureza comercial recozido (amostra: An), processado por 1 passe de ECAP com deformação de $\sim 1,15$ (amostra: An + ECAP) seguido de 12 passes de LSA-MDF livre de $\Delta\epsilon \approx 0,075$ (amostra: An+ ECAP + MAC) e posterior compressão monotônica. Segundo os autores [22], o processamento por MDF, após pré-deformação por ECAP, amacia o material e aumenta sua taxa de encruamento em carregamento monotônico posterior, levando a uma recuperação considerável de parte do alongamento uniforme em tração. Este comportamento está associado à estabilização da estrutura de deslocações em arranjos de menor

energia, com maior fração de HAGBs para a amostra AN+ECAP+LSA-MAC que a verificada para o material processado por 1 passe de ECAP, como mostrado na Figura 1.29.

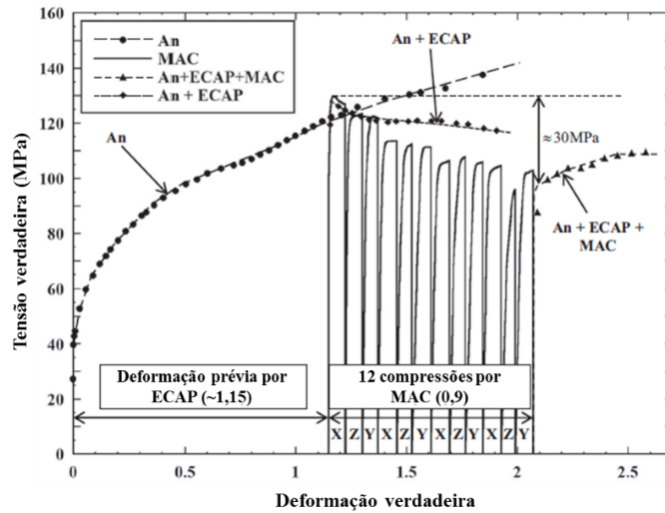


Figura 1.28 - Curva tensão-deformação verdadeiras para compressão monotônica das amostras: An, An + ECAP, An + ECAP + MAC e para o processamento por MAC do Al processado por ECAP.

Adaptado de [22].

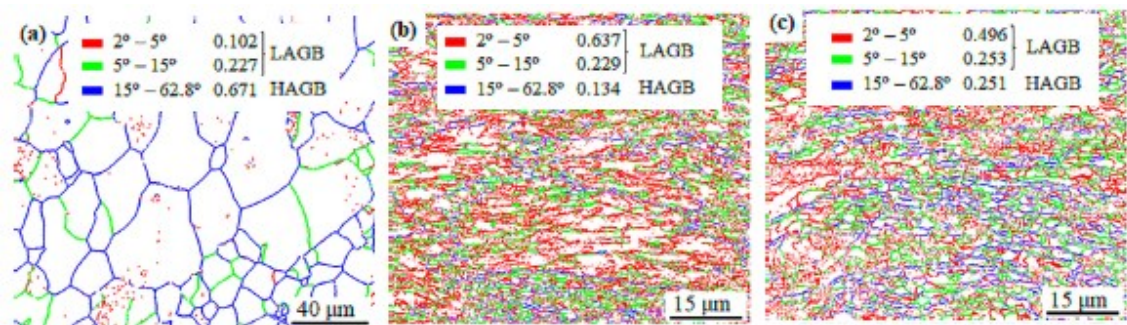


Figura 1.29 - Mapas de contornos de grão e desorientação para as amostras: (a) An, (b) An+ECAP, (c) An+ECAP+LSA-MAC referentes às condições de processamento apresentadas na Figura 1.15.

Adaptado de [23].

1.4 Procedimento Experimental

O foco principal da presente pesquisa foi avaliar a influência da amplitude de deformação e da deformação acumulada na evolução microestrutural e propriedades mecânicas do cobre processado por MDF; para tal, foi estabelecido o fluxograma de trabalho apresentado na Figura 1.30.

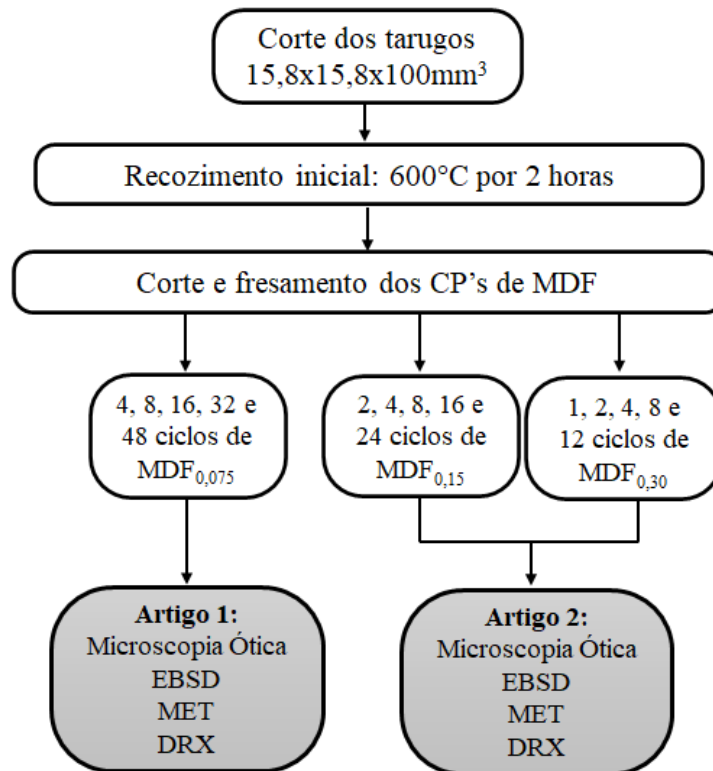


Figura 1.30- Fluxograma de trabalho. O número de ciclos envolvido em cada amplitude foi calculado para se alcançar uma deformação acumulada $\epsilon \approx 0,9, 1,8, 3,6, 7,2$ e $10,8$.

A primeira etapa da pesquisa consistiu em avaliar a influência do processamento por MDF de baixa amplitude de deformação ($\Delta\epsilon \approx 0,075$) na evolução microestrutural e comportamento mecânico do cobre de pureza comercial, resultando no Artigo 1, publicado no periódico *Materials Science and Engineering A* e intitulado “*Microstructural evolution and mechanical behavior of copper processed by low strain amplitude multi-directional forging*”. Posteriormente, foi analisada a influência da amplitude de deformação na evolução microestrutural e propriedades mecânicas do cobre processado por MDF. Para tal, amostras foram processadas por MDF de $\Delta\epsilon \approx 0,15$ e $0,30$, e, comparando-se os resultados com aqueles obtidos na primeira publicação, foi publicado o Artigo 2 no periódico *Advanced Engineering*

Materials com título “*Influence of Strain Amplitude on the Microstructural Evolution and Flow Properties of Copper Processed by Multidirectional Forging*”.

1.4.1 Material

O material empregado no presente estudo foi o Cobre comercialmente puro (99,8%) adquirido na forma de barras laminadas de seção quadrada 15,8x15,8mm² e 3m de comprimento. A partir destas, tarugos de ~100mm de comprimento foram cortados e recozidos a 600°C por 2 horas [42,87,88]. O recozimento foi realizado no forno INTI, modelo FT1300 de 15kW de potência, alocado no Laboratório de Caracterização de Materiais da Construção Civil e Mecânica do Departamento de Materiais e Construção da UFMG.

Para confecção dos corpos de prova de MDF, os tarugos recozidos foram cortados e fresados nas dimensões 13,0 (direção X) x 12,06 (direção Y) x 12,52 (direção Z) mm³ para o MDF_{0,075}; 13,00 (direção X) x 11,19 (direção Y) x 12,06 (direção z) mm³ para o MDF_{0,15} e nas dimensões 13,00 (direção X) x 9,63 (direção Y) x 11,19 (direção z) mm³ para o MDF_{0,30}. Em todos os casos, a direção X foi mantida paralela à direção de laminação.

1.4.2 Métodos Experimentais

1.4.2.1 Processamento por MDF

O processamento por MDF foi conduzido à temperatura ambiente, em uma máquina de Ensaio Universal INSTRON modelo 5582, com capacidade de 100kN, alocada no Laboratório de Ensaio Especiais do Departamento de Engenharia de Materiais e Construção da UFMG ou empregando-se máquina de ensaios universal SHIMADZU - modelo AGS-X com capacidade de 300kN alocada Laboratório de Materiais Metálicos do Departamento de Engenharia de Materiais e Construção (UFMG). As múltiplas compressões foram realizadas com velocidade constante ~0,05mm/s, controlada pelos *softwares* *BlueHill* (INSTRON) ou *Trapezium X* (SHIMADZU), também responsáveis pela aquisição e armazenamento de dados de carga e deslocamento de todas as compressões individuais. A partir destes dados foram plotadas as curvas tensão verdadeira x deformação verdadeira acumulada, apresentadas nos artigos 1 e 2, partes integrantes do presente documento.

O processamento mecânico foi realizado em matrizes de compressão confinada com imposição de deformação por passe $\Delta\varepsilon \approx 0,075$ (Figura 1.31), 0,15 e 0,30. O uso da matriz permite a expansão lateral da amostra nas duas direções ortogonais à direção de compressão até o contato do abaulamento lateral ao final de cada passe com a matriz. Este procedimento torna desnecessária a re-usinagem da amostra ao final de cada passe.

Antes do processamento e a cada 4 ciclos para o $MDF_{0,075}$, 2 ciclos no $MDF_{0,15}$ e 1 ciclo no $MDF_{0,30}$, o canal da matriz e o punção foram lubrificados com dissulfeto de molibdênio. Cada ciclo é composto por 3 compressões multidirecionais sequenciais ao longo dos eixos X, Z e Y, sucessivamente, sendo a amostra e matriz projetadas de tal forma que, ao final de cada ciclo, a amostra retome as suas dimensões originais. Em cada passe a compressão foi realizada ao longo da dimensão 13,0mm até que esta atingisse $\sim 12,06$ mm para o $MDF_{0,075}$, $\sim 11,19$ mm para o $MDF_{0,15}$ e $\sim 9,63$ mm para o $MDF_{0,30}$.

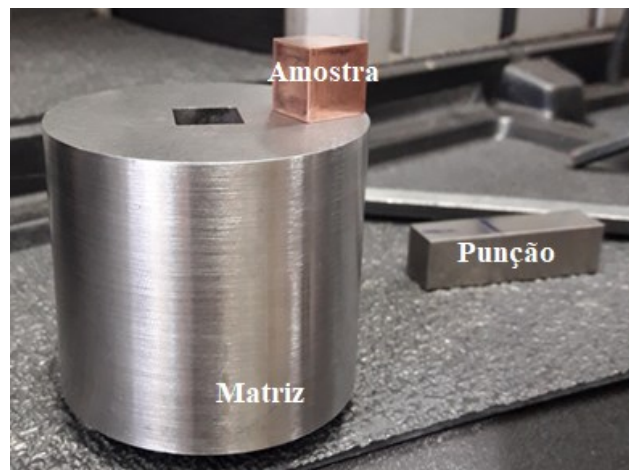


Figura 1.31 – Matriz empregada no processamento por MDF de $\Delta\varepsilon \approx 0,075$. Área da sessão transversal do canal: $13,00 \times 12,52 \text{mm}^2$.

Neste trabalho foram processadas amostras por até 48 ciclos (total de 144 compressões) de $MDF_{0,075}$, 24 ciclos (72 compressões) de $MDF_{0,15}$ e 12 ciclos (36 compressões) de $MDF_{0,30}$, resultando em deformação verdadeira acumulada de até $\varepsilon \approx 10,8$, como mostrado na Tabela 1.2. Nesta, verifica-se que, para cada condição de processamento, o valor de deformação acumulada verdadeira em análise é atingido por diferentes números de ciclos empregando-se o $MDF_{0,075}$, $MDF_{0,15}$ e $MDF_{0,30}$, possibilitando, deste modo, o estudo da influência tanto da amplitude de deformação como da deformação acumulada na evolução microestrutural e comportamento mecânico do cobre.

Tabela 1.2 - Condições de processamento por MDF envolvidas no presente estudo.

Deformação acumulada verdadeira, ϵ	Número de ciclos		
	MDF _{0,075}	MDF _{0,15}	MDF _{0,30}
0,9	4	2	1
1,8	8	4	2
3,6	16	8	4
7,2	32	16	8
10,8	48	24	12

1.4.2.2 Caracterização

Para caracterização microestrutural foram realizadas análises por Microscopia Óptica (MO), EBSD (*Electron Backscattered Diffraction* - Difração de Elétrons Retro-espalhados), MET (Microscopia Eletrônica de Transmissão) e DRX (Difração de Raios X). Para tal, os corpos de prova foram inicialmente cortados ao meio paralelamente à última direção de forjamento, conforme esquematizado na Figura 1.32. Desta forma, foi viabilizada a análise microestrutural na seção transversal perpendicular à direção X, a partir deste ponto denominado plano X, destacado em vermelho na Figura 1.32. Metade da amostra foi destinada à análise por MO e EBSD e da outra metade foi retirada fatia de ~1mm para análise por MET, sendo a parte restante destinada à análise por DRX, como esquematizado na Figura 1.32. Todos os cortes para amostragens foram realizados a frio e com refrigeração empregando-se *Cut Off* Prazis - modelo COR 40 do Laboratório de Tratamentos Térmicos do Departamento de Engenharia Metalúrgica e de Materiais (DEMET) da UFMG ou na máquina de corte de precisão MINITON, fabricante Struers, do Laboratório de Metalografia do Departamento de Engenharia de Materiais do Centro Federal de Educação Tecnológica de Minas Gerais (CEFET-MG), Campus I.

Para MO foi empregado microscópio óptico Union modelo VERSAMET 3 do Laboratório de Materiais Metálicos do Departamento de Engenharia de Materiais e Construção da UFMG. A preparação das amostras envolveu etapas de embutimento a frio com resina polimérica, lixamento, polimento e ataque químico com solução composta por 65ml de ácido sulfúrico (H₂SO₄) concentrado, 16g de dicromato de potássio (K₂Cr₂O₇), 3g de cloreto de sódio (NaCl) e 800ml de água destilada [66].

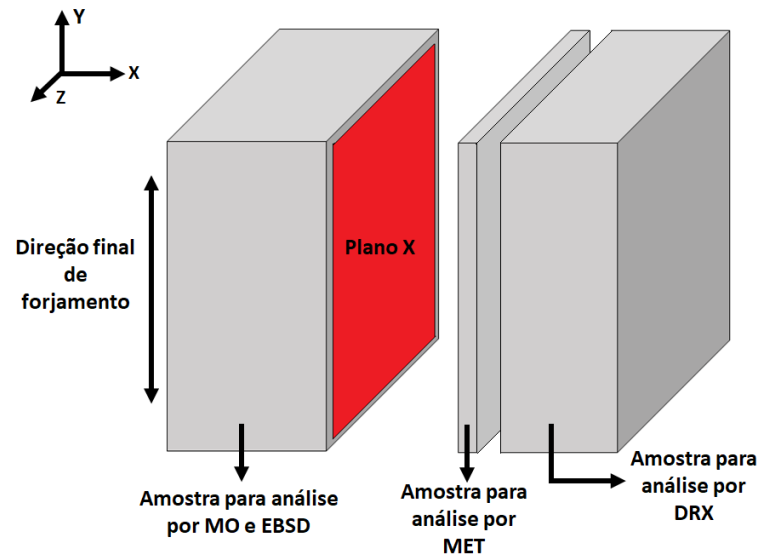


Figura 1.32 -Esquema de amostragem para análise microestrutural.

As análises por EBSD foram conduzidas em Microscópio Eletrônico de Varredura (MEV) Quanta FEG (*Field Emission Gun*) 3D FEI equipado com sistema de análises QUANTAX EBSD Bruker e os dados processados por meio do *software* Esprit 2.1.2 e 2.2 QUANTAX pertencentes ao Centro de Microscopia da UFMG. Nas análises foram considerados ângulos de desorientação $> 15^\circ$ para detecção de grãos e ângulo de corte de 2° para identificação de LAGBs (*Low Angle Grain Boundaries*); o tamanho médio de grão (D) foi determinado por meio de dados de fração de área gerados a partir do *software* Esprit. A preparação das amostras foi realizada seguindo o mesmo procedimento empregado para MO, mas com polimento adicional em sílica coloidal de $0,02\mu\text{m}$ por 1,5h.

Para MET foi empregado o Microscópio TECNAI F20 (FEG), pertencente ao Centro Atômico de Bariloche (CAB-CONICET), Argentina, operando a 200kV. Na preparação das amostras, discos de $\sim 3\text{mm}$ de diâmetro foram cortados por eletroerosão a partir da região central de fatia de $\sim 1\text{mm}$ de espessura retirada do plano X da amostra de MDF. Estes foram, então, lixados até a espessura de $\sim 200\text{nm}$ e atacados em Tenupol usando uma solução de 30% de ácido nítrico em metanol a 253K. O tamanho médio de célula/subgrão (d) foi estimado pelo método do intercepto linear, tomando-se linhas verticais e horizontais em 5 micrografias obtidas por MET para cada condição de processamento.

As análises por DRX, também conduzidas no plano X, foram realizadas empregando-se difratômetro PANalytical X'PERT-PRO com radiação $\text{Co K}\alpha_1$ ($\lambda = 0,1789010\text{nm}$) pertencente

ao Instituto Militar de Engenharia (IME) ou em Difratorômetro Panalytical com radiação $\text{Cu K}\alpha_1$ ($\lambda = 0,154056\text{nm}$) do Laboratório de Raio X do DEMET-UFMG, empregando-se ângulo de varredura $2\Theta = 45^\circ$ a 115° e *step size* de $0,02^\circ$. A preparação das amostras envolveu etapas de lixamento, polimento e ataque químico com a mesma solução utilizada para MO. A densidade de deslocamentos (ρ) foi determinada a partir de dados dos difratogramas por meio do *software Convolutional Multiple Whole Profile (CMWP)*, conforme procedimento descrito em detalhes por RIBÁRIK (2008) [89] e empregando-se pó de Hexaborreto de Lantânio (LaB_6) para obtenção do perfil instrumental.

As propriedades mecânicas foram determinadas a partir das curvas tensão x deformação obtidas durante o processamento por MDF. Para tal, o limite de escoamento (σ_y , medido para uma deformação plástica de 0,2%) de um dado ciclo foi medido na compressão subsequente, realizada em direção ortogonal àquela da última direção de carregamento do ciclo em análise.

1.5 Referências

- [1] R.Z. Valiev, Y. Estrin, Z. Horita, T.G. Langdon, M.J. Zehetbauer, Y. Zhu, Producing Bulk Ultrafine-Grained Materials by Severe Plastic Deformation: Ten Years Later, *Jom.* 68 (2016) 1216–1226. <https://doi.org/10.1007/s11837-016-1820-6>.
- [2] I. Ansarian, M.H. Shaeri, M. Ebrahimi, P. Minárik, K. Bartha, Microstructure evolution and mechanical behaviour of severely deformed pure titanium through multi directional forging, *J. Alloys Compd.* 776 (2019) 83–95. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2018.10.196>.
- [3] R.Z. Valiev, T.G. Langdon, Principles of equal-channel angular pressing as a processing tool for grain refinement, *Prog. Mater. Sci.* 51 (2006) 881–981. <https://doi.org/10.1016/j.pmatsci.2006.02.003>.
- [4] Y. Estrin, A. Vinogradov, Extreme grain refinement by severe plastic deformation: A wealth of challenging science, *Acta Mater.* 61 (2013) 782–817. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2012.10.038>.
- [5] R.Z. Valiev, R.K. Islamgaliev, I.V. Alexandrov, Bulk nanostructured materials from severe plastic deformation, *Prog. Mat. Sci.* 45. 45 (2000) 103–189.
- [6] A. Vinogradov, Y. Estrin, Analytical and numerical approaches to modelling severe plastic deformation, *Prog. Mater. Sci.* 95 (2018) 172–242.

- <https://doi.org/10.1016/j.pmatsci.2018.02.001>.
- [7] T. Sakai, A. Belyakov, R. Kaibyshev, H. Miura, J.J. Jonas, Dynamic and post-dynamic recrystallization under hot, cold and severe plastic deformation conditions, *Prog. Mater. Sci.* 60 (2014) 130–207. <https://doi.org/10.1016/j.pmatsci.2013.09.002>.
- [8] T. Sakai, H. Miura, X. Yang, Ultrafine grain formation in face centered cubic metals during severe plastic deformation, *Mater. Sci. Eng. A.* 499 (2009) 2–6. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2007.11.098>.
- [9] A. Belyakov, W. Gao, H. Miura, T. Sakai, Strain-Induced Grain Evolution in Polycrystalline Copper during Warm Deformation, *Metall. Mater. Trans. A.* 29 (1998) 2957–2965. <https://doi.org/10.1007/s11661-998-0203-1>.
- [10] C. Kobayashi, T. Sakai, A. Belyakov, H. Miura, Ultrafine grain development in copper during multidirectional forging at 195 K, *Philos. Mag. Lett.* 87 (2007) 751–766. <https://doi.org/10.1080/09500830701566016>.
- [11] I. Shakhova, Z. Yanushkevich, I. Fedorova, A. Belyakov, R. Kaibyshev, Grain refinement in a Cu-Cr-Zr alloy during multidirectional forging, *Mater. Sci. Eng. A.* 606 (2014) 380–389. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2014.03.116>.
- [12] A. Belyakov, T. Sakai, H. Miura, K. Tsuzaki, Grain refinement in copper under large strain deformation, *Philos. Mag. A.* 81 (2001) 2629–2643. <https://doi.org/10.1080/01418610108216659>.
- [13] J.A. Muñoz, R.E. Bolmaro, A.M. Jorge Jr, A. Zhilyaev, J.M. Cabrera, Prediction of Generation of High- and Low-Angle Grain Boundaries (HAGB and LAGB) During Severe Plastic Deformation, *Metall. Mater. Trans. A.* (2020). <https://doi.org/10.1007/s11661-020-05873-3>.
- [14] J. Gubicza, N.Q. Chinh, G. Krállics, I. Schiller, T. Ungár, Microstructure of ultrafine-grained fcc metals produced by severe plastic deformation, *Curr. Appl. Phys.* 6 (2006) 194–199. <https://doi.org/10.1016/j.cap.2005.07.039>.
- [15] R. Kapoor, A. Sarkar, R. Yogi, S.K. Shekhawat, I. Samajdar, J.K. Chakravarty, Softening of Al during multi-axial forging in a channel die, *Mater. Sci. Eng. A.* 560 (2013) 404–412. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2012.09.085>.
- [16] J. Gubicza, L. Balogh, R.J. Hellmig, Y. Estrin, T. Ungár, Dislocation structure and crystallite size in severely deformed copper by X-ray peak profile analysis, *Mater. Sci. Eng. A.* 400–401 (2005) 334–338. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2005.03.042>.

- [17] J. Gubicza, N.Q. Chinh, T. Csanádi, T.G. Langdon, T. Ungár, Microstructure and strength of severely deformed fcc metals, *Mater. Sci. Eng. A.* 462 (2007) 86–90. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2006.02.455>.
- [18] S.S.S. Kumar, T. Raghu, Bulk processing of fine grained OFHC copper by cyclic channel die compression, *Int. J. Mater. Res.* 106 (2015) 1230–1239. <https://doi.org/10.3139/146.111302>.
- [19] S.S.S. Kumar, T. Raghu, Electrical Conductivity, Thermal Stability, and Lattice Defect Evolution During Cyclic Channel Die Compression of OFHC Copper, *J. Mater. Eng. Perform.* 24 (2015) 726–736. <https://doi.org/10.1007/s11665-014-1359-z>.
- [20] S.S.S. Kumar, K. Priyasudha, M.S. Rao, T. Raghu, Deformation homogeneity, mechanical behaviour and strain hardening characteristics of titanium severe plastically deformed by cyclic channel die compression method, *Mater. Des.* 101 (2016) 117–129. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2016.04.004>.
- [21] B. Cherukuri, T.S. Nedkova, R. Srinivasan, A comparison of the properties of SPD-processed AA-6061 by equal-channel angular pressing, multi-axial compressions/forgings and accumulative roll bonding, *Mater. Sci. Eng. A.* 410–411 (2005) 394–397. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2005.08.024>.
- [22] C.G. De Faria, N.G.S. Almeida, M.T.P. Aguilar, P.R. Cetlin, Increasing the work hardening capacity of equal channel angular pressed (ECAPed) aluminum through multi-axial compression (MAC), *Mater. Lett.* 174 (2016) 153–156. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2016.03.112>.
- [23] C.G. de Faria, N.G. e S. Almeida, F. de C. Bubani, K. Balzuweit, M.T.P. Aguilar, P.R. Cetlin, Microstructural evolution in the low strain amplitude multi-axial compression (LSA-MAC) after equal channel equal pressing (ECAP) of aluminum, *Mater. Lett.* 227 (2018) 149–153. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2018.05.054>.
- [24] A. Kundu, R. Kapoor, R. Tewari, J.K. Chakravartty, Severe plastic deformation of copper using multiple compression in a channel die, *Scr. Mater.* 58 (2008) 235–238. <https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2007.09.046>.
- [25] D.C.C. Magalhães, A.L. Pratti, A.M. Kliauga, J.B. Rubert, M. Ferrante, V.L. Sordi, Numerical simulation of cryogenic cyclic closed-die forging of Cu: Hardness distribution, strain maps and microstructural stability, *J. Mater. Res. Technol.* 358 (2018) 1–11. <https://doi.org/10.1016/j.jmrt.2018.02.005>.

- [26] A. Takayama, X. Yang, H. Miura, T. Sakai, Continuous static recrystallization in ultrafine-grained copper processed by multi-directional forging, *Mater. Sci. Eng. A.* 478 (2008) 221–228. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2007.05.115>.
- [27] G.A. Salishchev, N.D. Stepanov, A.V. Kuznetsov, S. V. Zherebtsov, O.R. Valiakhmetov, A.A. Kuznetsov, S. V. Dobatkin, Effect of Multiaxial Forging on Structure Evolution and Mechanical Properties of Oxygen Free Copper, *Mater. Sci. Forum.* 667–669 (2010) 289–294. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/MSF.667-669.289>.
- [28] A.K. Parimi, P.S. Robi, S.K. Dwivedy, Severe plastic deformation of copper and Al-Cu alloy using multiple channel-die compression, *Mater. Des.* 32 (2011) 1948–1956. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2010.11.074>.
- [29] N.G. e S. Almeida, Comportamento mecânico da liga Al 6351 submetida à extrusão angular em canais iguais e compressão multiaxial cíclica, Dissertação de Mestrado - Programa de Pós Graduação em Engenharia Mecânica - UFMG, 2017.
- [30] H. Miura, W. Nakamura, Microstructure and mechanical properties of Mg–8Al alloy fabricated by room-temperature multi-directional forging, *Philos. Mag. Lett.* 93 (2013) 601–607. <https://doi.org/10.1080/09500839.2013.827800>.
- [31] H. Miura, M. Kobayashi, T. Aoba, H. Aoyama, T. Benjanarasuth, An approach for room-temperature multi-directional forging of pure titanium for strengthening, *Mater. Sci. Eng. A.* 731 (2018) 603–608. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2018.06.060>.
- [32] H. Miura, T. Maruoka, X. Yang, J.J. Jonas, Microstructure and mechanical properties of multi-directionally forged Mg-Al-Zn alloy, *Scr. Mater.* 66 (2012) 49–51. <https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2011.10.005>.
- [33] H. Huang, J. Zhang, Microstructure and mechanical properties of AZ31 magnesium alloy processed by multi-directional forging at different temperatures, *Mater. Sci. Eng. A.* 674 (2016) 52–58. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2016.07.052>.
- [34] T. Aoba, M. Kobayashi, H. Miura, Effects of aging on mechanical properties and microstructure of multi-directionally forged 7075 aluminum alloy, *Mater. Sci. Eng. A.* 700 (2017) 220–225. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2017.06.017>.
- [35] X. Yang, Y. Okabe, H. Miura, T. Sakai, Effect of pass strain and temperature on recrystallisation in magnesium alloy AZ31 after interrupted cold deformation, *J. Mater. Sci.* 47 (2012) 2823–2830. <https://doi.org/10.1007/s10853-011-6111-6>.
- [36] R. Gupta, S. Srivastava, N.K. Kumar, S.K. Panthi, High leaded tin bronze processing

- during multi-directional forging: Effect on microstructure and mechanical properties, *Mater. Sci. Eng. A.* 654 (2016) 282–291. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2015.12.068>.
- [37] X. Yang, H. Miura, T. Sakai, Structural development at severely high strain in AZ31 magnesium alloy processed by cold forging and subsequent annealing, *Mater. Des.* 44 (2013) 573–579. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2012.08.025>.
- [38] P.E. Armstrong, J.E. Hockett, O.D. Sherby, Large strain multidirectional deformation of 1100 aluminum at 300 K, *J. Mech. Phys. Solids.* 30 (1982) 37–58.
- [39] T. Sakai, A. Belyakov, H. Miura, Ultrafine Grain Formation in Ferritic Stainless Steel during Severe Plastic Deformation, *Metall. Mater. Trans. A.* 39A (2008) 2006–2214. <https://doi.org/10.1007/s11661-008-9556-8>.
- [40] O. Sitdikov, T. Sakai, A. Goloborodko, H. Miura, R. Kaibyshev, Effect of Pass Strain on Grain Refinement in 7475 Al Alloy during Hot Multidirectional Forging, *Mater. Trans.* 45 (2004) 2232–2238.
- [41] G.E. Dieter, *Mechanical Metallurgy*, Third Edit, McGraw-Hill Book Company, London, 1988.
- [42] F. Dalla Torre, R. Lapovok, J. Sandlin, P.F. Thomson, C.H.J. Davies, E. V. Pereloma, Microstructures and properties of copper processed by equal channel angular extrusion for 1-16 passes, *Acta Mater.* 52 (2004) 4819–4832. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2004.06.040>.
- [43] R.Z. Valiev, R.K. Islamgaliev, I. V. Alexandrov, Bulk nanostructured materials from severe plastic deformation, *Prog. Mater. Sci.* 45 (2000) 103–189. [https://doi.org/10.1016/S0079-6425\(99\)00007-9](https://doi.org/10.1016/S0079-6425(99)00007-9).
- [44] J. Gubicza, *Defect structure in nanomaterials*, Woodhead Publishing Limited, Philadelphia, 2012.
- [45] T.G. Langdon, Twenty-five years of ultrafine-grained materials: Achieving exceptional properties through grain refinement, *Acta Mater.* 61 (2013) 7035–7059. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2013.08.018>.
- [46] A.P. Zhilyaev, T.G. Langdon, Using high-pressure torsion for metal processing: Fundamentals and applications, *Prog. Mater. Sci.* 53 (2008) 893–979. <https://doi.org/10.1016/j.pmatsci.2008.03.002>.
- [47] C. Xu, Z. Horita, T.G. Langdon, The evolution of homogeneity in an aluminum alloy processed using high-pressure torsion, *Acta Mater.* 56 (2008) 5168–5176.

- <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2008.06.036>.
- [48] H.J. Maier, P. Gabor, N. Gupta, I. Karaman, M. Haouaoui, Cyclic stress-strain response of ultrafine grained copper, *Int. J. Fatigue*. 28 (2006) 243–250. <https://doi.org/10.1016/j.ijfatigue.2005.05.004>.
- [49] J. Gubicza, S. V. Dobatkin, E. Khosravi, A.A. Kuznetsov, J.L. Lábár, Microstructural stability of Cu processed by different routes of severe plastic deformation, *Mater. Sci. Eng. A*. 528 (2011) 1828–1832. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2010.11.026>.
- [50] A. Heczcel, F. Akbaripannah, M.A. Salevati, R. Mahmudi, A. Vida, J. Gubicza, A comparative study on the microstructural evolution in AM60 alloy processed by ECAP and MDF, *J. Alloys Compd.* 763 (2018) 629–637. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2018.06.002>.
- [51] R. Berghammer, W. Hu, A. Hasani, G. Gottstein, Production of ultrafine grained AlMnFe samples by confined channel die pressing as compared to equal channel angular pressing, *Adv. Eng. Mater.* 13 (2011) 232–236. <https://doi.org/10.1002/adem.201000254>.
- [52] N.G.S. Almeida, P.H.R. Pereira, C.G. de Faria, M.T.P. Aguilar, P.R. Cetlin, Mechanical behavior and microstructures of aluminum processed by low strain amplitude multi-directional confined forging, *J. Mater. Res. Technol.* 1320 (2020) 1–8. <https://doi.org/10.1016/j.jmrt.2020.01.065>.
- [53] P.M.A. Stemler, P.C.A. Flausino, P.H.R. Pereira, C.G. de Faria, N.G.S. Almeida, M.T.P. Aguilar, P.R. Cetlin, Mechanical behavior and microstructures of aluminum in the Multi-Axial Compression (MAC) with and without specimen re-machining, *Mater. Lett.* 237 (2019) 84–87. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2018.11.081>.
- [54] S. Mu, W. Hu, G. Gottstein, Investigations on deformation behavior and microstructure of ultrafine grained two phase Al-Mn alloy fabricated by confined channel die pressing, *Mater. Sci. Forum.* 584–586 (2008) 697–702. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/msf.584-586.697>.
- [55] G. Liu, J. Gu, S. Ni, Y. Liu, M. Song, Microstructural evolution of Cu-Al alloys subjected to multi-axial compression, *Mater. Charact.* 103 (2015) 107–119. <https://doi.org/10.1016/j.matchar.2015.03.021>.
- [56] M.E.L. Nassif, Comportamento Mecânico e Evolução Microestrutural do Cobre Comercialmente Puro Submetido ao Forjamento Multidirecional, Dissertação de

- Mestrado, PPGEM-UFMG, 2019.
- [57] O. Sitdikov, A. Goloborodko, T. Sakai, H. Miura, R. Kaibyshev, Grain refinement in as-cast Al alloy under hot multiaxial deformation, *Mater. Sci. Forum.* 426–432 (2003) 381–386.
- [58] J. Huang, Z. Xu, Evolution mechanism of grain refinement based on dynamic recrystallization in multiaxially forged austenite, *Mater. Lett.* 60 (2006) 1854–1858. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2005.12.110>.
- [59] P.J. Apps, M. Berta, P.B. Prangnell, The effect of dispersoids on the grain refinement mechanisms during deformation of aluminium alloys to ultra-high strains, *Acta Mater.* 53 (2005) 499–511. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2004.09.042>.
- [60] O. Sitdikov, T. Sakai, A. Goloborodko, H. Miura, R. Kaibyshev, Grain refinement in coarse-grained 7475 Al alloy during severe hot forging, *Philos. Mag.* 85 (2005) 1159–1175. <https://doi.org/10.1080/14786430412331325049>.
- [61] O. Sitdikov, E. Avtokhratova, T. Sakai, K. Tsuzaki, Ultrafine-grain structure formation in an Al-Mg-Sc alloy during Warm ECAP, *Metall. Mater. Trans. A.* 44A (2013) 1087–1100. <https://doi.org/10.1007/s11661-012-1438-4>.
- [62] L.F. Coffin, J.F. Tavernelli, The cyclic straining and fatigue of metals, *Trans. Metall. Soc. AIME.* 215 (1959) 794–806.
- [63] C.E. Feltner, C. Laird, Cyclic stress-strain response of F.C.C metals and alloys - I Phenomenological Experiments, *Acta Metall.* 15 (1967) 1621–1632.
- [64] F. Wetscher, R. Pippan, Cyclic high-pressure torsion of nickel and Armco iron, *Philos. Mag.* 86 (2006) 5867–5883. <https://doi.org/10.1080/14786430600838288>.
- [65] M.Y. Alawadhi, S. Sabbaghianrad, Y. Huang, T.G. Langdon, Direct influence of recovery behaviour on mechanical properties in oxygen-free copper processed using different SPD techniques: HPT and ECAP, *J. Mater. Res. Technol.* 6 (2017) 369–377. <https://doi.org/10.1016/j.jmrt.2017.05.005>.
- [66] Elaine Carballo Siqueira Corrêa, Aspectos do encruamento de metais previamente deformados a frio, Universidade Federal de Minas Gerais, 2004.
- [67] P. Pinheiro, W.A. Monteiro, R. Barbosa, P.R. Cetlin, The effect of strain path on the mechanical behavior and dislocation arrangements in the hot working of copper, *Mater. Sci. Eng. A.* 368 (2004) 280–285. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2003.11.008>.

- [68] S. Li, X. Li, L. Yang, Role of strain path change in grain refinement by severe plastic deformation: A case study of equal channel angular extrusion, *Acta Mater.* 61 (2013) 4398–4413. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2013.04.010>.
- [69] D. Orlov, Y. Todaka, M. Umemoto, N. Tsuji, Role of strain reversal in grain refinement by severe plastic deformation, *Mater. Sci. Eng. A.* 499 (2009) 427–433. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2008.09.036>.
- [70] A.E. Pertence, P.R. Cetlin, Mechanical Properties of Aluminum Cyclically Strained in Tension/Bending, *Scr. Metall.* 23 (1989) 1739–1742.
- [71] R. Cirino, A.E. Pertence, P.R. Cetlin, Mechanical Properties of Previously Annealed or Cold Rolled Aluminum Submitted to Tension/Bending, *J. Materials Shap. Technology.* 9 (1991) 213–219.
- [72] M.T.P. Aguilar, P.R. Cetlin, P.E. Valle, E.C.S. Corrêa, J.L.L. Rezende, Influence of strain path in the mechanical properties of drawn aluminum alloy bars, *J. Mater. Process. Technol.* 80–81 (1998) 376–379. [https://doi.org/10.1016/S0924-0136\(98\)00194-0](https://doi.org/10.1016/S0924-0136(98)00194-0).
- [73] E.C.S. Corrêa, M.T.P. Aguilar, E.M.P. Silva, P.R. Cetlin, The effect of sequential tensile and cyclic torsion straining on work hardening of steel and brass, *J. Mater. Process. Technol.* 142 (2003) 282–288. [https://doi.org/10.1016/S0924-0136\(03\)00575-2](https://doi.org/10.1016/S0924-0136(03)00575-2).
- [74] P. Lukáš, L. Kunz, Cyclic plasticity and substructure of metals, *Mater. Sci. Eng. A.* 322 (2002) 217–227. [https://doi.org/10.1016/S0921-5093\(01\)01132-7](https://doi.org/10.1016/S0921-5093(01)01132-7).
- [75] C.E. Feltner, C. Laird, Cyclic Stress-Strain Response of F.C.C. Metals and Alloys- II Dislocation Structures and Mechanisms, *Acta Metall.* 15 (1967) 1633–1653.
- [76] C. Laird, Z. Wang, B.T. Ma, H.F. Chai, Low energy dislocation structures produced by cyclic softening, *Mater. Sci. Eng. A.* 113 (1989) 245–257. [https://doi.org/10.1016/0921-5093\(89\)90313-4](https://doi.org/10.1016/0921-5093(89)90313-4).
- [77] S.R. Agnew, J.R. Weertman, Cyclic softening of ultrafine grain copper, *Mater. Sci. Eng. A.* 244 (1998) 145–153. [https://doi.org/10.1016/S0921-5093\(97\)00689-8](https://doi.org/10.1016/S0921-5093(97)00689-8).
- [78] H.-F. Chai, C. Laird, Mechanisms of cyclic softening and cyclic creep in low carbon steel, *Mater. Sci. Eng.* 93 (1987) 159–174. [https://doi.org/10.1016/0025-5416\(87\)90421-6](https://doi.org/10.1016/0025-5416(87)90421-6).
- [79] M. Haouaoui, I. Karaman, H.J. Maier, Flow stress anisotropy and Bauschinger effect in ultrafine grained copper, *Acta Mater.* 54 (2006) 5477–5488. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2006.07.022>.

- [80] Y. Iwahashi, Z. Horita, M. Nemoto, T.G. Langdon, The Process of Grain Refinement in Equal-Channel Angular Pressing, *Acta Mater.* 46 (1998) 3317–3331. https://doi.org/10.1007/978-3-319-35107-0_5.
- [81] H. Petryk, S. Stupkiewicz, A quantitative model of grain refinement and strain hardening during severe plastic deformation, *Mater. Sci. Eng. A.* 444 (2007) 214–219. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2006.08.076>.
- [82] T. Hasegawa, T. Yakou, S. karashima, Deformation behaviour and dislocation structures upon stress reversal in polycrystalline Aluminium, *Mater. Sci. Eng.* 20 (1975) 267–276.
- [83] J.K. Mahato, P.S. De, A. Sarkar, A. Kundu, P.C. Chakraborti, Effect of prestrain and stress rate on Bauschinger effect of monotonically and cyclically deformed OFHC copper, *Procedia Eng.* 74 (2014) 368–375. <https://doi.org/10.1016/j.proeng.2014.06.281>.
- [84] J.K. Mahato, P.S. De, A. Sarkar, A. Kundu, P.C. Chakraborti, Effect of deformation mode and grain size on Bauschinger behavior of annealed copper, *Int. J. Fatigue.* 83 (2016) 42–52. <https://doi.org/10.1016/j.ijfatigue.2015.04.023>.
- [85] L.E. Levine, M.R. Stoudt, A. Creuziger, T.Q. Phan, R. Xu, M.E. Kassner, Basis for the Bauschinger effect in copper single crystals: changes in the long-range internal stress with reverse deformation, *J. Mater. Sci.* 54 (2019) 6579–6585. <https://doi.org/10.1007/s10853-018-03295-6>.
- [86] W. Chrominski, M. Lewandowska, The importance of microstructural heterogeneities in the work hardening of ultrafine-grained aluminum, studied by in-situ TEM straining and mechanical tests, *Mater. Sci. Eng. A.* 764 (2019) 1–11. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2019.138200>.
- [87] N. Lugo, N. Llorca, J.M. Cabrera, Z. Horita, Microstructures and mechanical properties of pure copper deformed severely by equal-channel angular pressing and high pressure torsion, *Mater. Sci. Eng. A.* 477 (2008) 366–371. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2007.05.083>.
- [88] Y.L. Wang, R. Lapovok, J.T. Wang, Y.S. Qi, Y. Estrin, Thermal behavior of copper processed by ECAP with and without back pressure, *Mater. Sci. Eng. A.* 628 (2015) 21–29. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2015.01.021>.
- [89] G. Ribárik, Modeling of diffraction patterns based on microstructural properties, Eötvös Loránd University, 2008.

CAPÍTULO 2 – ARTIGO 1

MICROSTRUCTURAL EVOLUTION AND MECHANICAL BEHAVIOR OF COPPER PROCESSED BY LOW STRAIN AMPLITUDE MULTI-DIRECTIONAL FORGING

2.1 Abstract

Experiments were performed to analyze the microstructural evolution and mechanical behavior of commercial-purity copper (99.8%) processed by up to 48 cycles of multi-directional forging (MDF) using a low strain amplitude of ~ 0.075 (total accumulated strain $\epsilon \approx 10.8$). Parabolic work-hardening concomitantly with increasing dislocation densities was observed up to $\epsilon \approx 2$, followed by a practically constant flow stress due to dynamic recovery. The average grain size was reduced from $30.5 \mu\text{m}$ in the annealed metal down to $4.1 \mu\text{m}$ for $\epsilon \approx 7.2$; the fraction of sub-micrometric grains reached $\sim 12\%$ for $\epsilon \approx 10.8$. The microstructural changes were attributed to the fragmentation of the original grains by dislocation structures having low misorientation angles which gradually evolved into arrays of high-angle grain boundaries with increasing numbers of MDF cycles. The Cu samples subjected to 48 cycles of MDF displayed limited dynamic recrystallization, exhibiting basically dislocation cells and sub-grains with an average size of $\sim 0.6 \mu\text{m}$. It is demonstrated that low strain amplitude MDF delays the kinetics of grain refinement in copper compared with MDF using higher strain amplitudes.

Keywords: Copper, Low strain amplitude, Microstructural Evolution, Multi-directional forging (MDF), Severe plastic deformation.

2.2 Introduction

In the last decades, great attention has been dedicated to Severe Plastic Deformation (SPD) processes in which grain refinement down to the sub-micrometric scale is achieved through the imposition of high plastic strains without appreciable changes in the material cross-sectional area [1]. These procedures allow the production of metals having superior mechanical strength and they may also be used as a convenient “test bed” for the analysis and modeling of

phenomena at elevated levels of plastic deformation, which are difficult to reach in conventional metal forming operations [2].

Among the various SPD methods, special interest has been dedicated to Equal Channel Angular Pressing (ECAP) [1], High-Pressure Torsion (HPT) [3] and Multi-Directional Forging (MDF) [4–6], also known as Multi-Axial Compression (MAC) [7–9] and Multi-Axial Forging (MAF) [5–7,10]. These processes differ both in the physical aspects of the deformations and in the size of the specimens [11]; ECAP and MDF are commonly employed for large samples [12]. Processing by MDF is simple [13] and involves the successive compression of parallelepipedical specimens along their three orthogonal axes, imposing the same average strain in each compression step [5]. In addition, MDF is the only SPD process allowing the determination of the true stress-true strain curves (hereafter called SS curves) for each compression step [4].

Armstrong et al. [14] conducted pioneering MDF experiments in Al 1100 using strain amplitudes ($\Delta\varepsilon$) from 0.075 to 0.35. In this study, processing was performed at room temperature (RT) through free compressions (without lateral confinement of the specimens), similarly to other recent experiments [8,15–17]; other studies employed dies confining the material in plane strain [5,18,19]. Processing by MDF is usually carried out at homologous temperatures from 0.1 to 0.5 [8] using strain amplitudes within the interval of ~ 0.4 – 0.8 [5,6,13,15–17,20–24]. Nevertheless, MDF experiments with $\Delta\varepsilon \leq 0.1$ (hereafter denominated Low Strain Amplitude MDF – LSA-MDF) have also been conducted in some studies [8,9,25–32].

Yang et al. [29] processed an AZ31 Mg alloy in LSA-MDF with $\Delta\varepsilon \approx 0.05$ and 0.1 at RT up to a total strain $\varepsilon \approx 1.5$ without material cracking, which occurred in a brittle manner during uniaxial compression for $\varepsilon \approx 0.15$. It was also shown that the work-hardening of the material was higher for $\Delta\varepsilon \approx 0.1$ than for $\Delta\varepsilon \approx 0.05$ and this resulted in higher flow stresses. Miura and Nakamura [25] processed an AZ80 Mg alloy through LSA-MDF with $\Delta\varepsilon \approx 0.1$ up to $\varepsilon \approx 2.0$ without material cracking. The original grains were gradually fragmented by twinning resulting in an ultrafine structure with average grain size of ~ 0.3 μm . Both the microhardness and the yield strength in the AZ80 Mg alloy increased 2–2.5 times in relation to the values before processing.

Faria et al. [9] reported that the LSA-MDF with $\Delta\varepsilon \approx 0.075$ in Al (99.8%) previously strained by one ECAP pass accelerates the stabilization of the microstructure in relation to processing solely by ECAP, resulting in higher fractions of High-Angle Grain Boundaries (HAGBs) than after ECAP for the same accumulated strain. This led to flow softening and an increase in the work-hardening capacity of Al after MDF [8]. Thereby, LSA-MDF is a SPD route capable of promoting grain refinement in difficult-to-work materials and restoring the work-hardening capacity of heavily deformed metals.

To date, limited studies have been dedicated to examine the microstructural evolution of materials processed by LSA-MDF. For FCC metals, analyses appear to be limited to aluminum, displaying a high stacking fault energy (SFE) and fast recovery kinetics [8,9]. Studies for copper, with a medium-to-low SFE, seemingly cover only tension-compression [33–37] and torsional cyclic deformation [38]. The present investigation was initiated to examine the microstructural evolution and the mechanical behavior of commercial purity copper along LSA-MDF with $\Delta\varepsilon \approx 0.075$ for up to 48 cycles.

2.3 Experimental procedure

Commercial purity copper (99.8%) was received as rolled bars having a length of ~ 3 m and a cross-section of 15.8×15.8 mm². Specimens with ~ 100 mm in length were cut from these bars and thereafter annealed at 873 K for 2 h [39–41]. MDF specimens with dimensions of 13.00, 12.06 and 12.52 mm along the X, Y and Z directions, respectively, were machined out of the annealed material, keeping the X direction parallel to the rolling direction of the original bars.

LSA-MDF processing with $\Delta\varepsilon \approx 0.075$ was performed at RT using an INSTRON 5582 testing machine operating at a constant crosshead speed of 0.05 mm/s. Processing was conducted within a confining die having a cross-section of 13.00×12.52 mm². This facility allows the lateral expansion of the compressed metal till its faces contact the die walls. Up to the contact of the specimen with the die walls, compression occurs similarly to free compression. The use of the confining die leads to flat, parallel opposing faces of the specimen after each compression step, thus eliminating the necessity of re-machining of the specimens after each compression step [42].

The die walls and the punch were lubricated using MoS₂ paste after each 4 MDF cycles, where one cycle corresponds to 3 sequential orthogonal compressions along the X, Z and Y axes, respectively. Each compression step involves straining from an initial specimen height of 13.00 mm down to 12.06 mm such that the specimen returns to its original dimensions after each LSA-MDF cycle. Samples were processed up to 48 cycles, leading to a total accumulated strain of ~10.8.

Microstructural characterization covered Optical Microscopy (OM), Transmission Electron Microscopy (TEM), Electron Backscattered Diffraction (EBSD) and X-Ray Diffraction (XRD) for the annealed specimens and after selected MDF cycles. The samples were examined in their mid-sectional plane parallel to the last compression direction, as illustrated in Figure 2.1.

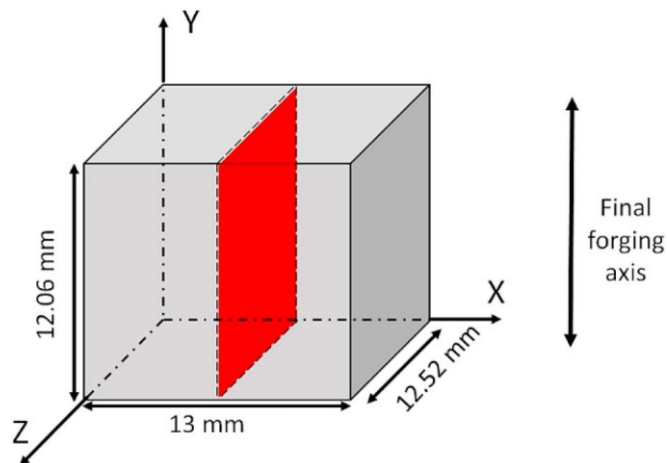


Figure 2.1- Schematic representation of the specimen plane (highlighted in red) evaluated in the microstructural analyses.

Specimens for OM were analyzed in a Union VERSAMET 3 microscope. Sample preparation involved grinding, polishing with diamond paste (1 μm) and etching in a solution having 65 ml concentrated H₂SO₄, 16 g K₂Cr₂O₇, 3 g NaCl and 800 ml distilled water. EBSD examinations were carried out in a Quanta FEG 3D FEI microscope equipped with a QUANTAX-EBSD Bruker analysis system. These analyses considered misorientation angles $\geq 15^\circ$ for grain detection and a minimum cut-off angle of 2° for identification of low-angle grain boundaries (LAGBs). A step size of 1 μm was used for the annealed metal, 70 nm for the material processed by 4 or 8 MDF cycles and 45 nm for specimens subjected to 16, 32 or 48 cycles. For the EBSD analysis, an additional polishing step using colloidal silica (0.02 μm) for 1.5 h was included.

A TECNAI F20 (FEG) operating at 200 kV was used for TEM. Disks with ~ 3 mm in diameter were cut from the central region of a slice ~ 1 mm thick along the mid-sectional plane of the specimens. These were ground to a thickness of ~ 200 nm and electropolished in a TENUPOL with a solution of 30% HNO_3 in methanol at 253 K. XRD analyses were performed using a Panalytical Diffractometer with $\text{CuK}\alpha 1$ ($\lambda = 0.15406$ nm) radiation. The diffractograms were analyzed with the software MAUD considering the instrumentation correction; the average crystallite size (D_c) and lattice microstrain $\langle \epsilon^2 \rangle^{1/2}$ were calculated using the Rietveld method.

2.4 Results

Figure 2.2 shows the SS curves for commercial purity copper after 48 LSA-MDF cycles. The individual SS curves represented in gray exhibit a rapid rise in their slope for the final compression stage, as detailed in the inset corresponding to the 10th cycle. This is caused by the confinement of the specimen flow by the die walls, after the free initial compression. Accordingly, as in a recent report [10], this part of the curve is not considered for representation of the cumulative flow curve because such rapid rise in the load is not caused by the material behavior, but by the change in the prevailing stress state in the specimen after contact with the die walls.

The flow stress behavior of the material is thus represented by the envelope of the initial parts of the SS curves in LSA-MDF [15,16,20,42], plotted in red in Figure 2.2. Its shape is similar to other results where dynamic recovery prevails [15,16,20,43], with a region of work-hardening for $\epsilon \leq 2$ and a basically constant flow stress of ~ 360 MPa for higher strains. It should be noted that this saturation stress is somewhat lower than that reported for high purity Cu (99.99%) after free compression MDF with $\Delta\epsilon \approx 0.4$ [15].

Figure 2.3 depicts OM images of both the annealed material and the specimens processed by 4, 8, 16, 32 and 48 MDF cycles. The annealed material (Figure 2.3a) exhibits several twins and polygonal grains with an average size $d \approx 20$ μm , as measured using the linear intercept method. After 4 and 8 MDF cycles, most of the annealing twins were eliminated and some grains were apparently fragmented. This becomes more evident after 16 LSA-MDF cycles ($d \approx 10$ μm) after which it is no longer possible to identify the original grain boundaries. A heterogeneous microstructure with light and dark areas is also observed, possibly corresponding to regions

containing fine sub-structural features. The area fraction of the dark regions increases as total strain is raised, achieving 42%, 46% and 53% after 16, 32 and 48 MDF cycles, respectively.

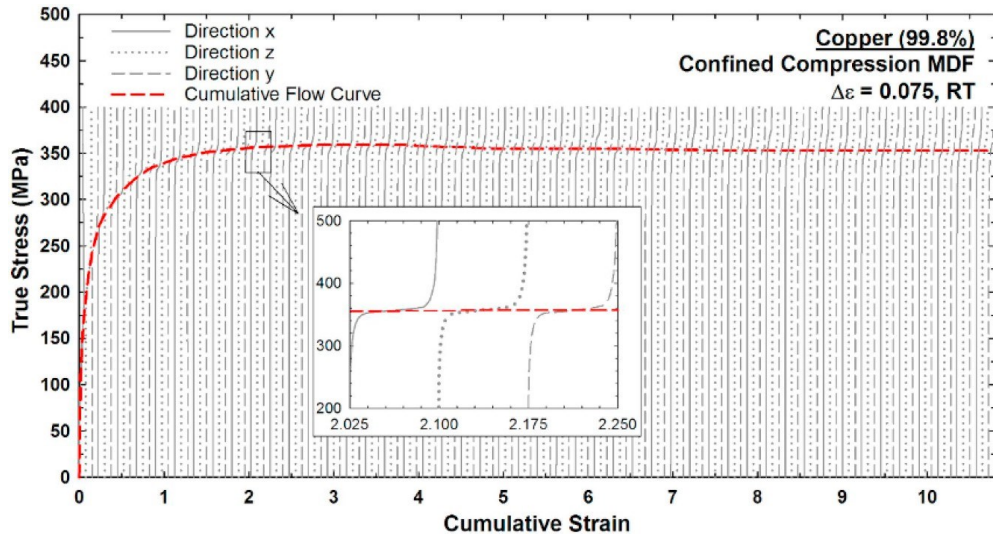


Figure 2.2 - True stress – true strain curves for a Cu specimen processed through 48 cycles of MDF with $\Delta\varepsilon \approx 0.075$. The envelope of the individual SS curves is represented in red and the inset refers to the 10th cycle.

Figures 2.4 and 2.5 display the OIM images and the grain boundary maps, respectively, for both the annealed metal and the Cu specimens after 4, 8, 16, 32 and 48 cycles of MDF. Boundaries with misorientation angles $\Theta < 15^\circ$ are considered as LAGBs and they are colored in red for $2 < \Theta < 5^\circ$ or green for $5 < \Theta < 15^\circ$. The same boundary maps depict HAGBs as blue lines. It is evident from Figure 2.4 the development of a distinct deformation texture in copper with increasing MDF straining. After 4 cycles, it is already noted the formation of strong texture components in which $\{110\}$ and $\{100\}$ planes are aligned to the X plane defined in Figure 2.1. The fraction of grains having these texture components appear to increase with increasing MDF cycles but it is essentially the same for samples processed to either 32 or 48 cycles.

The microstructural evolution during MDF processing may also be examined through plots of the average grain size and the fraction of HAGBs as function of cumulative strain as shown in Figure 2.6. The annealed material (Figs. 2.4a and 2.5a) exhibits an average grain size of $\sim 30.5 \mu\text{m}$ and a fraction of HAGBs of $\sim 91\%$. The grain size decreases down to $\sim 4.1 \mu\text{m}$ after 32 cycles and then slightly increases to $5.4 \mu\text{m}$ after 48 cycles.

The color shades inside the grains and the boundary maps indicate a gradual increase in the fraction of LAGBs which constitutes $\sim 88\%$ of the boundaries after 16 MDF cycles. For 32 and 48 cycles the fraction of LAGBs is reduced down to ~ 72 and 68% , respectively, due to an increase in the misorientation angle of the boundaries established in the earlier deformation stages [18]. A few of the original grain boundaries are still visible and their wavy shape results from the strain path changes during processing.

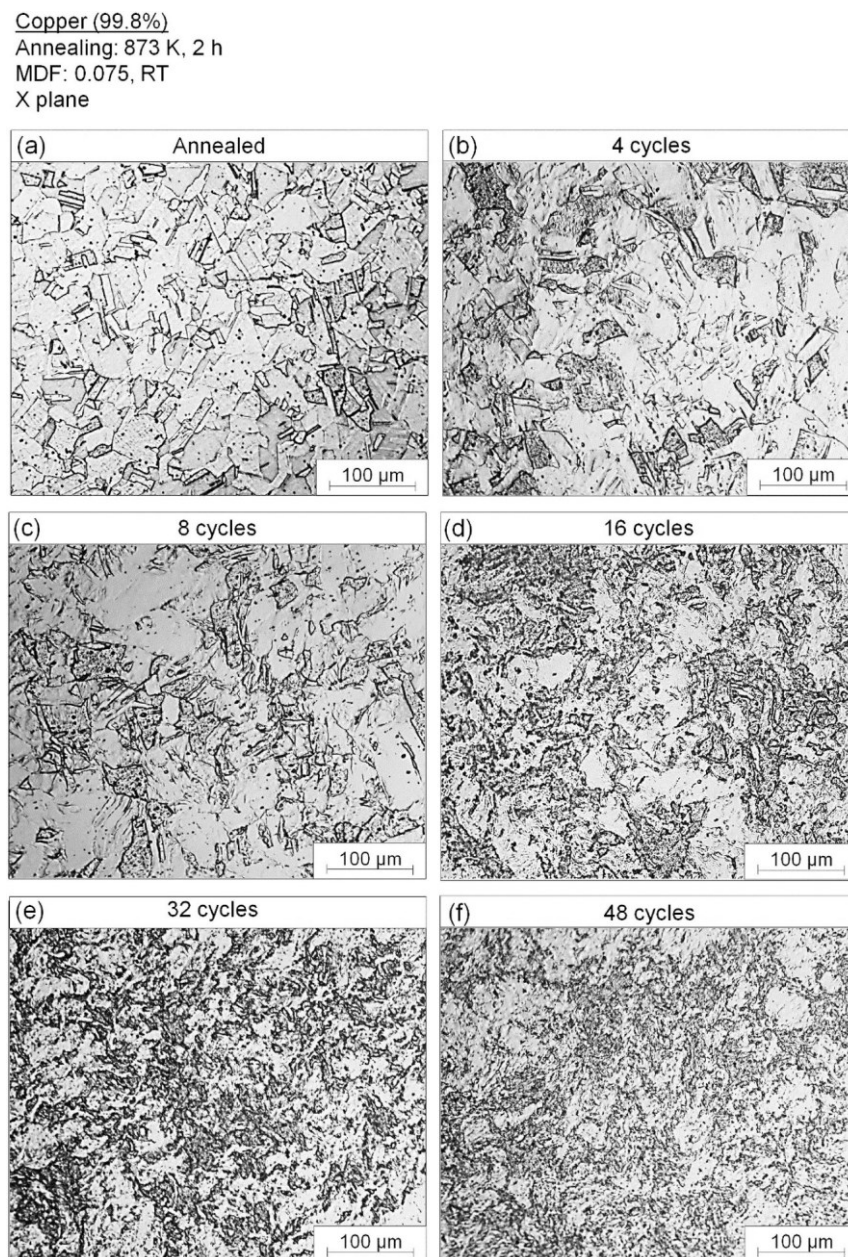


Figure 2.3 - OM images of Cu specimens after (a) annealing and further processing by MDF with $\Delta\epsilon \approx 0.075$ up to accumulated strains of (b) 0.9, (c) 1.8, (d) 3.6, (e) 7.2 and (f) 10.8.

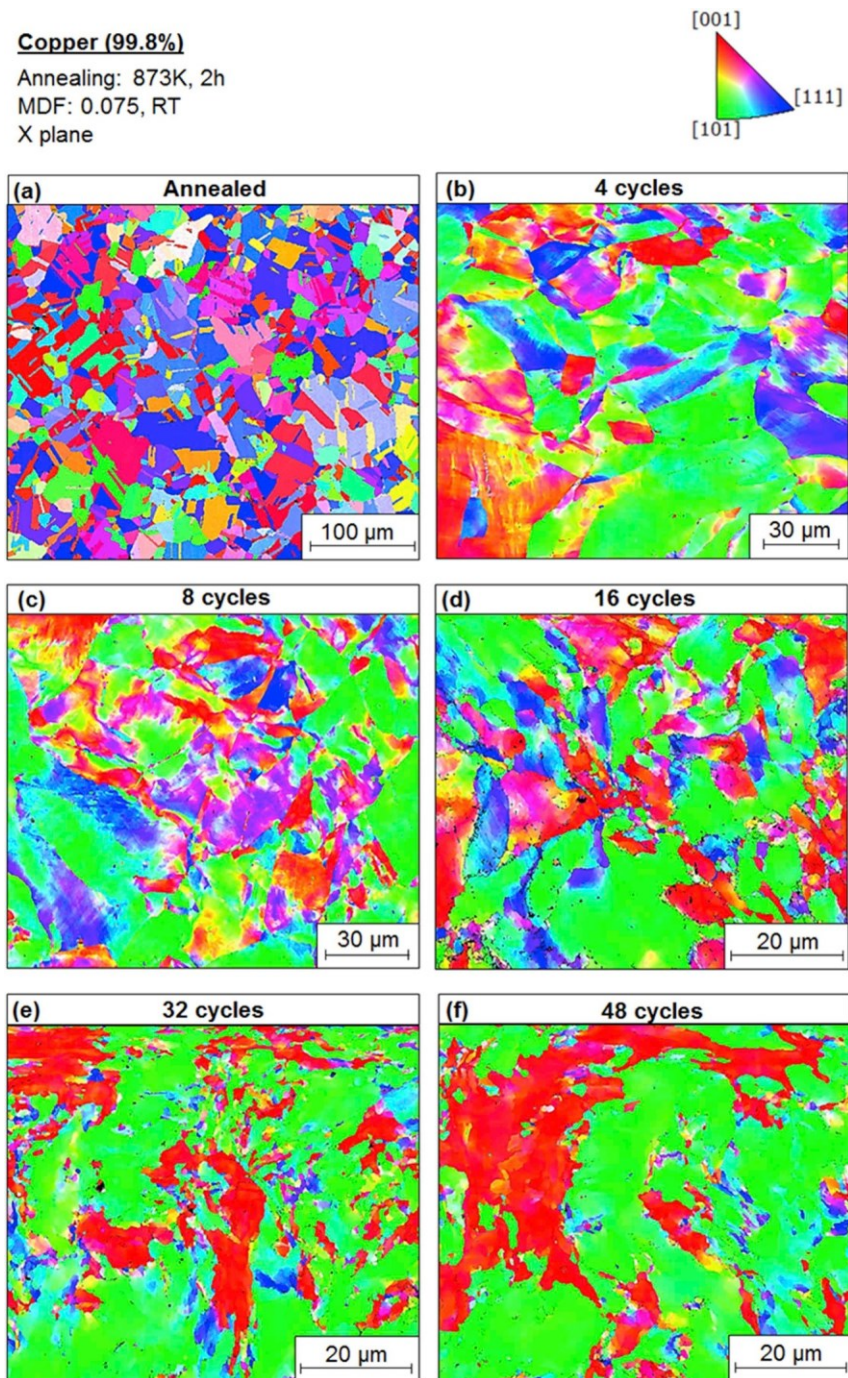


Figure 2.4 - OIM images for (a) the annealed material and the Cu samples processed by MDF with $\Delta\varepsilon \approx 0.075$ up to accumulated strains of (b) 0.9, (c) 1.8, (d) 3.6, (e) 7.2 and (f) 10.8.

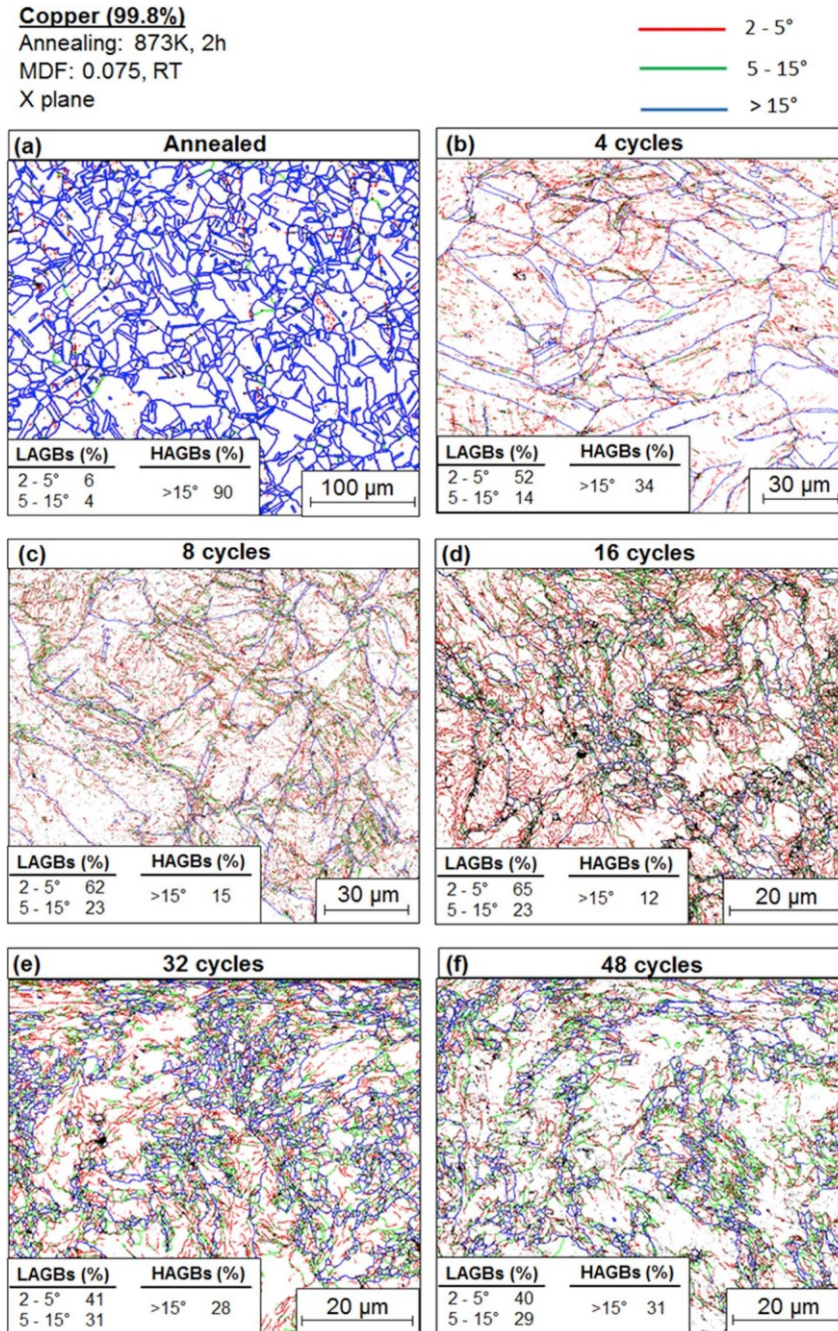


Figure 2.5 - Boundary maps and fractions of LAGBs and HAGBs for (a) the annealed material and the Cu samples processed by MDF with $\Delta\varepsilon \approx 0.075$ up to accumulated strains of (b) 0.9, (c) 1.8, (d) 3.6, (e) 7.2 and (f) 10.8.

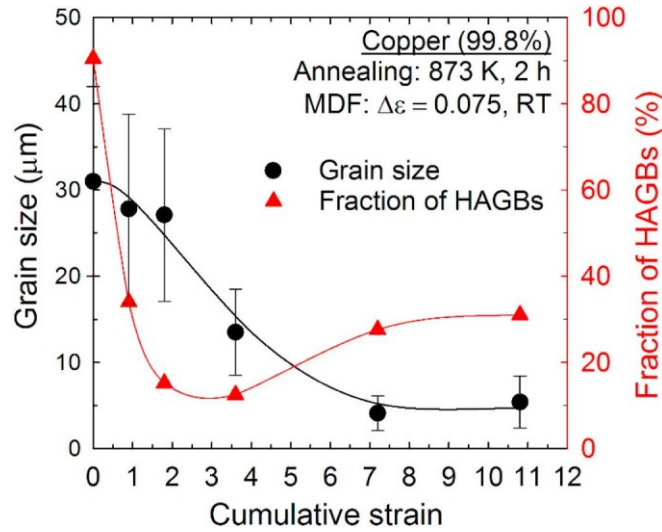


Figure 2.6 - Plots of grain size and fraction of HAGBs as a function of cumulative strain for the annealed metal and the Cu specimens processed by LSA-MDF up to total strains of 0.9, 1.8, 3.6, 7.2 and 10.8. Nevertheless, the fraction of sub-micrometric grains monotonically increases with increasing MDF cycles and reaches ~12% after 48 cycles.

TEM images of the MDF-processed samples are presented in Figure 2.7. It is noted in Figure 2.7a and b the existence of an inhomogeneous distribution of dislocations at the initial processing stages. There are regions free of dislocations, areas showing dislocation tangles and regions in which these defects are organized in layers [15], originating lamellar substructures with diffuse LAGBs. After 16 cycles (Figure 2.7c) some regions display cellular structures with irregular sizes and shapes. These structures have well-defined boundaries and dislocation free interiors. The number of microbands rises with the number of cycles, introducing substructures with block shapes [44], which are equiaxed in some regions but mostly elongated, as seen after 32 and 48 cycles. Also, some dislocation free subgrains are still evident, but most of these display dislocation arrangements in their interior. The average size of dislocation cells/subgrains is ~1.1 and ~0.7 μm for Cu samples processed through 8 and 16 MDF cycles, respectively, and ~0.6 μm after 32 and 48 cycles, as measured using the linear intercept method. It is important to note that these values are higher than those reported for the MDF of copper with $\Delta\varepsilon \approx 0.4$ (~0.2 μm for $\varepsilon > 2$) [15].

Copper (99.8%)

Annealing: 873K, 2h

MDF: 0.075, RT

X plane

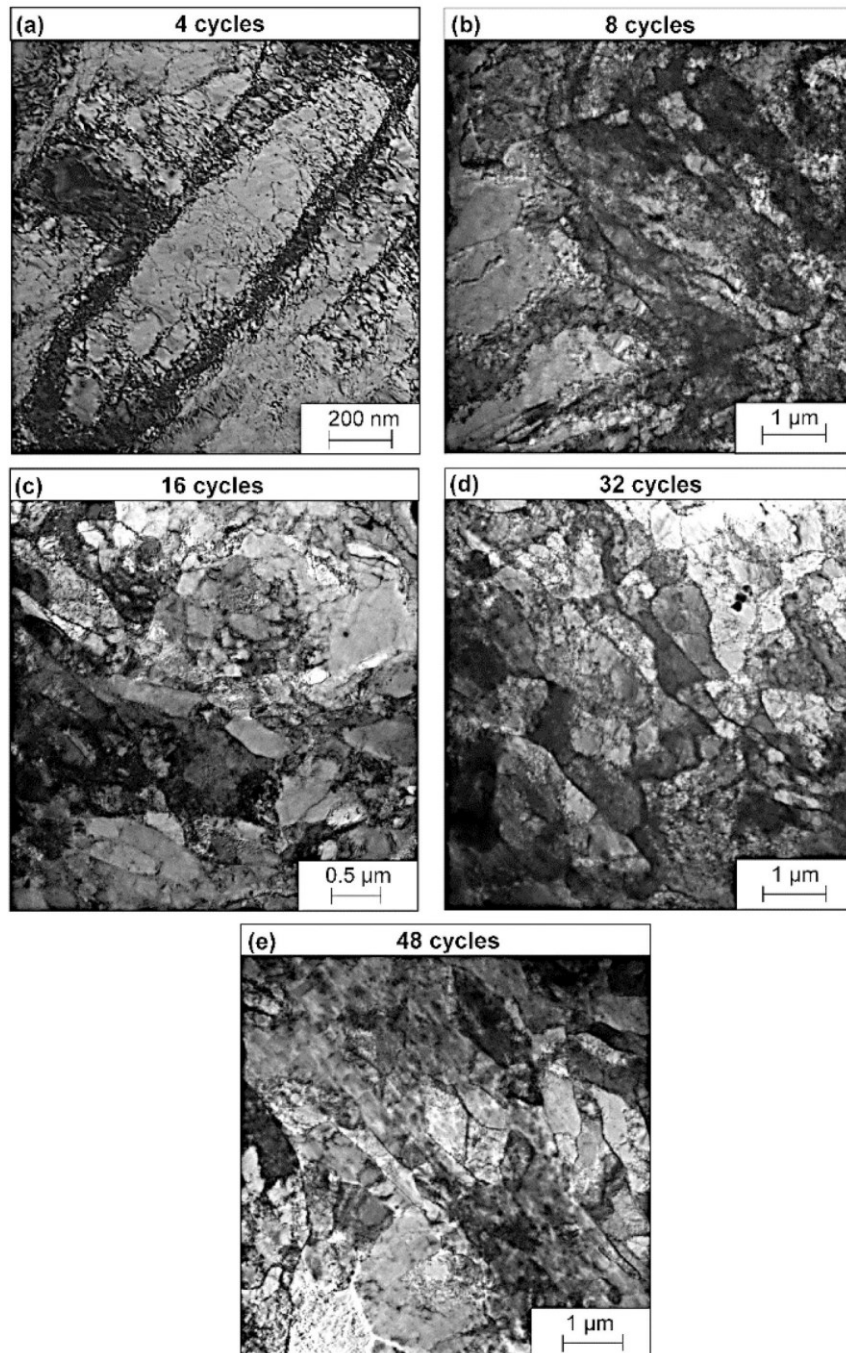


Figure 2.7 - TEM images for the Cu samples processed by MDF with $\Delta\varepsilon \approx 0.075$ up to accumulated strains of (a) 0.9, (b) 1.8, (c) 3.6, (d) 7.2 and (e) 10.8.

Figure 2.8 reveals the variation of the crystallite size and the microstrain with the accumulated strain in LSA-MDF. The goodness of fit (GOF) obtained from the evaluation of each XRD peak profile analysis is within the range of 1.1–1.4, except for the annealed material (GOF ≈ 1.6). It is noted in Figure 2.8 that the evolution of the crystallite size follows the same trend observed

for the average dislocation cells/subgrains size. The values of the diffraction domain size rapidly decrease with increasing straining up to the 8th cycle from which the crystallite size seemingly saturates. On the other hand, the microstrain increases up to 8 MDF cycles and then decreases and stabilizes for 16 cycles and more.

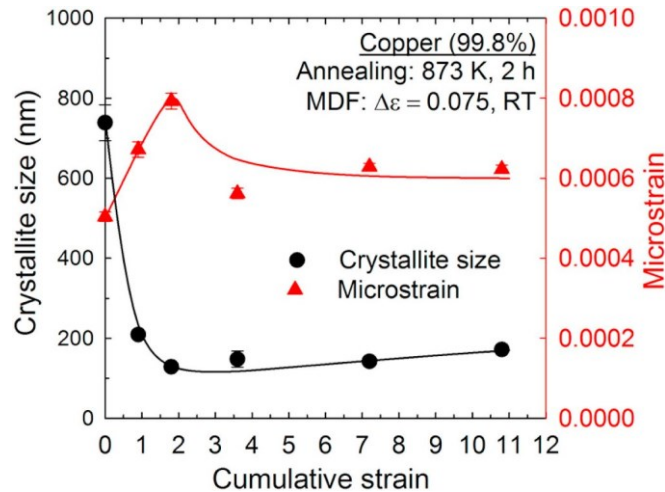


Figure 2.8 - Plots of crystallite size and microstrain as a function of cumulative strain for the annealed metal and the Cu specimens processed by LSA-MDF up to total strains of 0.9, 1.8, 3.6, 7.2 and 10.8.

2.5 Discussion

2.5.1 Mechanical properties in LSA-MDF

The present results revealed that the overall shape of the stress-accumulated strain curve of copper obtained during LSA-MDF deformation is similar to that associated with dynamic recovery processes [14–17,20]; there is an apparent steady state condition with a saturation of the flow stress at ~ 360 MPa for $\epsilon > 2$. Additionally, a small reduction in the saturation stress occurs for $\epsilon > 4$, leading to a flow stress of ~ 355 MPa. This behavior can be better viewed through the decrease in the yield strength of copper after 16 MDF cycles, as shown in Table 2.1, which also tabulates the grain size and the fraction of HAGBs of Cu after the application of different SPD methods. A similar decrease in the material strength has been reported for Cu after either plane strain MDF [18] or ECAP [39,45] and this phenomenon is associated with the dynamic recovery mechanisms favored by the reversed straining caused by the changes in the strain path during processing [14,18,39].

Table 2.1: Yield strength, grain size and fraction of HAGBs for copper processed by MDF or ECAP at RT for various values of ε and $\Delta\varepsilon$.

Material	Metal-working procedure	ε	Yield strength (MPa)	Grain size (μm)	Fraction of HAGBs (%)	References
Commercial purity copper (99.8%)	Annealed	0	61 ± 4	30.5 ± 10	90	Present study
	MDF: $\Delta\varepsilon \approx 0.075$, 4 cycles	0.9	279 ± 15	27.8 ± 12	34	
	MDF: $\Delta\varepsilon \approx 0.075$, 8 cycles	1.8	302 ± 12	27.1 ± 10	15	
	MDF: $\Delta\varepsilon \approx 0.075$, 16 cycles	3.6	292 ± 18	13.5 ± 5	12	
	MDF: $\Delta\varepsilon \approx 0.075$, 32 cycles	7.2	283 ± 22	4.1 ± 2	28	
	MDF: $\Delta\varepsilon \approx 0.075$, 48 cycles	10.8	280 ± 14	5.4 ± 3	31	
Copper (99.99%)	MDF: $\Delta\varepsilon \approx 0.4$, 14 passes	5.6	–	0.22*	–	Belyakov et al. (2001) [15]
Oxygen-free copper	MDF: $\Delta\varepsilon \approx 0.83$, 20 cycles	50	–	1.02	50	Salishchev et al. (2011) [22]
OFHC copper	MDF: $\Delta\varepsilon \approx 0.8$, 3 cycles	7.2	315	1.95	78	Kumar and Raghu (2015) [18]
Copper (> 99.95%)	ECAP: $\Phi = 90^\circ$, route Bc, 16 passes, $\Delta\varepsilon \approx 1.15$	18.4	345	L: 0.18 P: 0.15	–	Dalla Torre et al. (2004) [39]
Technical purity copper	ECAP: $\Phi = 90^\circ$, route C, 8 passes, $\Delta\varepsilon \approx 1$	8	406	0.076**	–	Gubicza et al. (2005) [48]
Pure copper (99.95%)	ECAP: $\Phi = 90^\circ$, route Bc, 12 passes, $\Delta\varepsilon \approx 1.15$	13.8	–	0.44	50	Molodova et al. (2007) [49]
Commercial purity copper (99.8%)	ECAP: $\Phi = 90^\circ$, route C, 6 passes, $\Delta\varepsilon \approx 1$	6	405	0.83	–	Xu et al. (2008) [50]
Electrolytic Tough Pitch copper (99.96%)	ECAP: $\Phi = 90^\circ$, route Bc, 16 passes, $\Delta\varepsilon \approx 1$	16	372	0.49	70	Higuera-Cobos and Cabrera (2013) [51]
Electrolytic Tough Pitch copper (99.9%)	ECAP: $\Phi = 90^\circ$, route Bc, 12 passes, $\Delta\varepsilon \approx 1.15$	13.8	404	0.34***	60.9	Wang et al. (2015) [41]
Commercially pure copper (99.9%)	ECAP: $\Phi = 110^\circ$, route Bc, 12 passes, $\Delta\varepsilon \approx 0.8$	9.6	362	0.5	56	Xu et al. (2016) [52]
OFHC	ECAP: $\Phi = 90^\circ$, route Bc, 4 passes, $\Delta\varepsilon \approx 1.07$	4.27	331	–	64	Ebrahimi and Gode (2017) [53]
OFHC (99.95%)	ECAP: $\Phi \approx 110^\circ$, route Bc, 24 passes, $\Delta\varepsilon \approx 0.76$	18.24	358	0.6	90	Alawadhi et al. (2017) [45]

*Examined by TEM; **Examined by XRD; ***The average grain size was calculated using a threshold angle of 5° ; L: cell size measured parallel to the lamellar boundaries; P: cell size measured perpendicular to the lamellar boundaries; Φ : angle of intersection of the two channels of an ECAP die.

The strengthening associated with the grain boundaries can be described through the Hall–Petch equation [46,47]: $\sigma_y = \sigma_0 + k_y d^{1/2}$, where σ_y is the yield strength, σ_0 and k_y are material constants. The abundant grain boundaries in SPD-processed metals are crucial in the establishment of their mechanical properties, but the evolution in the dislocation density cannot be neglected. This is demonstrated in Table 2.1 which shows that although the grain refinement is limited at the initial stages of LSA-MDF, the yield strength after 8 MDF cycles is $\sim 5 \times$ higher than that for the annealed material and its evolution displays close resemblance with

that of the microstrain. The same trend is documented for copper processed up to 8 ECAP passes [48] and it suggests that dislocation/subgrain strengthening represents a significant contribution to the material strength after LSA-MDF.

A comparison of the data sets in Table 2.1 shows that, for the same total strain, processing copper by LSA-MDF leads to lower σ_y values than ECAP and MDF with higher strain amplitudes. This is likely connected to the larger grains produced by LSA-MDF. Figure 2.9 plots the relationship between σ_y and $d^{-1/2}$ for some processing conditions in Table 1.

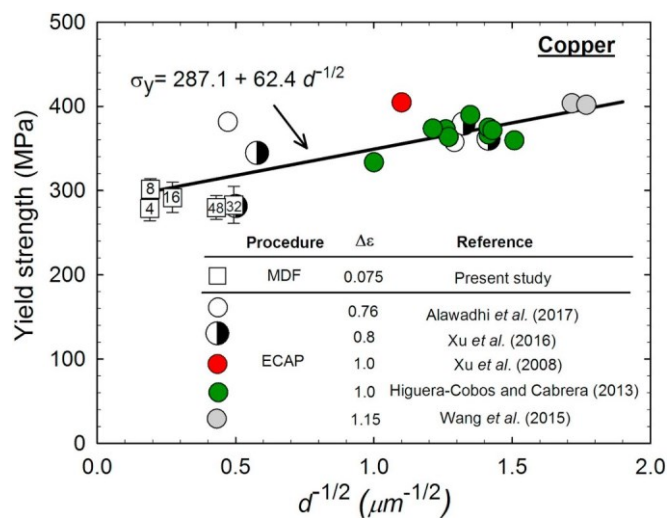


Figure 2.9 - Yield strength vs $d^{-1/2}$ for Cu processed by LSA-MDF and ECAP [41,45,50–52] using different strain amplitudes. The numbers inside the data points correspond to the number of cycles.

The datum points in Figure 2.9 suggest a linear relationship between σ_y and $d^{-1/2}$, indicating the applicability of the Hall-Petch equation within this grain size interval. Copper specimens processed through LSA-MDF display larger grain sizes and lower values of σ_y than the ECAP-processed metal. Furthermore, the difference in yield strength resulting from both types of processing increases with increasing strain amplitudes per pass. It is worth noting that σ_y for samples processed by 32 and 48 MDF cycles lie below the straight line possibly due to the increased participation of dynamic recovery and the resulting decrease in the density of free dislocations at these processing conditions.

It should be further noted that, for each MDF compression, there is a change in the loading direction. Accordingly, dislocations pinned in their positions at the end of the previous

deformation step could be free to move in the opposite direction; this may likely lead to an appreciable lowering of σ_y upon reloading when compared to the flow stress at the end of the previous compression step [54]. The results therefore suggest that the apparent quasi-stationary flow stress of Cu along LSA-MDF processing originates from a competition between the strengthening caused by grain refinement and the softening due to both the reduction in the density of free dislocations [15] and the development of a deformation texture in which slip systems having low critical resolved shear stresses become aligned with maximum shear directions during deformation.

2.5.2. *Microstructural evolution in LSA-MDF*

The microstructural evolution of copper during processing by LSA- MDF at RT involves the gradual fragmentation of the original grains by deformation induced dislocation boundaries [55]. During the initial MDF cycles, these dislocation structures are heterogeneously distributed and gradually evolve into cells/subgrains, as noted in Figure 2.7. Deformation microbands are readily seen after 8 cycles and these display layers filled with a high density of dislocations. Similar results are reported after MDF-processing of copper with $\Delta\epsilon \approx 0.4$ at 195 K [16].

Arrays of cells/subgrains having different morphologies are evident in samples processed by 16 LSA-MDF cycles. The regions occupied by the “cell-blocks” and microbands increase after 32 and 48 cycles, although regions with dislocation tangles and with incipient dislocation cell formation are also apparent. Therefore, the development of substructures with dislocation-free interiors and increasingly well-defined boundaries confirms the action of dynamic recovery mechanisms involving dislocation annihilation [56] and cross-slip [18] during MDF processing.

It has been consistently shown for different materials that the ratio between the saturation flow stress for monotonic and cyclic compression decreases with increasing $\Delta\epsilon$ [14]. This investigation also showed that MDF results for strain amplitudes from 0.075 to 0.35 correlate well with those obtained in fatigue under torsion and tension-compression. During tension-compression fatigue, the annihilation of dislocations and their re-structuring into low energy arrangements is favored by the “back and forth” movement of dislocations during cyclic loading [57]. Such phenomena are also favored in MDF by the frequent changes in the

strain path and they are likely responsible to the less prominent subgrain refinement and strengthening of copper in this study than after processing by MDF using higher strain amplitudes and comparable total strains [6,15].

Despite the pronounced grain refinement in relation to the initial annealed structure, even after a total strain of $\varepsilon \approx 10.8$ the OM and EBSD analyses revealed the existence of a heterogeneous microstructure containing coarse grains together with fine grain structures mostly encountered near to the original HAGBs. This necklace-like micro-structure has also been observed in a Cu-0.3%Cr-0.5%Zr alloy after processing by MDF with $\Delta\varepsilon \approx 0.4$ up to an accumulated strain of $\varepsilon \approx 4$ [58].

Figure 2.10 shows plots of the average grain size as a function of the accumulated strain for Cu specimens processed either by ECAP or MDF using different strain amplitudes [18,22,41,45,49–52]. It is apparent from these plots that although LSA-MDF permits the imposition of large plastic strains without material cracking, this technique is less effective than other SPD methods concerning the generation of ultrafine-grained structures. The average grain sizes obtained in the present investigation lie above those reported for copper after MDF and ECAP with a higher $\Delta\varepsilon$. The datum points in Figure 10 also reveal that the values of $\Delta\varepsilon$ exert an important influence on the kinetics of grain refinement which is faster for higher strain amplitudes.

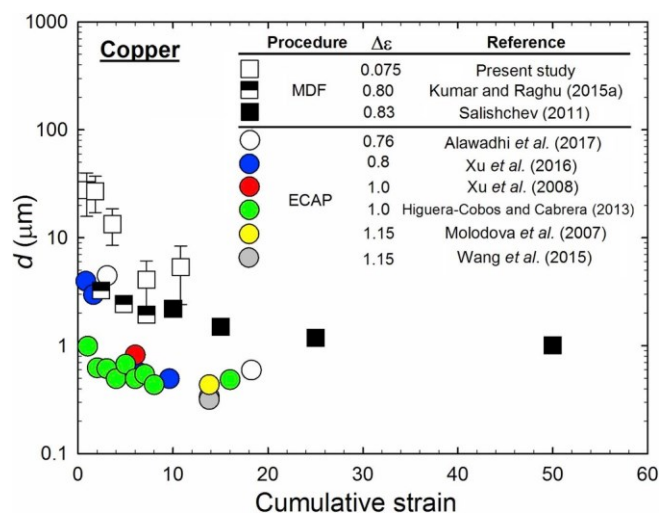


Figure 2.10 - Grain size (d) vs cumulative strain for Cu specimens processed either by ECAP or MDF with different values of $\Delta\varepsilon$ [18,22,41,45,49–52].

A comparison of the MDF and ECAP results in which $\Delta\varepsilon \approx 0.8$ revealed that ECAP processing led to finer grain sizes than MDF. The same trend has recently been reported for an AM60 Mg alloy processed either by ECAP ($\Delta\varepsilon \approx 1.0$) or MDF ($\Delta\varepsilon \approx 0.5$) [12]. The less intense microstructural refinement observed in MDF-processed copper may be attributed to both the application of slower deformation rates during processing by MDF and the differences in the strain path in each SPD procedure as straining exhibits a stronger monotonic character after ECAP processing [12].

It is therefore consistently demonstrated in this investigation that the low strain amplitude and the successive changes in straining direction in LSA-MDF delay the grain refinement kinetics and favor dynamic recovery processes compared with either ECAP or MDF using higher strain amplitudes. Nevertheless, this SPD procedure also promoted a significant increase in the yield strength of copper and it may be potentially applied to tailor microstructures having a high density of dislocation cells and subgrains even in materials with medium-to-low stacking fault energy.

2.6 Summary and conclusions

1. Commercial purity copper (99.8%) was processed through 4, 8, 16, 32 and 48 MDF cycles at RT with a low strain amplitude (LSA) $\Delta\varepsilon \approx 0.075$. LSA-MDF processing promoted a progressive micro-structural refinement in copper without material cracking and this exhibited an average grain size of $\sim 4 \mu\text{m}$ after 32 cycles.
2. The shape of the stress vs accumulated strain curve displays evident work-hardening for $\varepsilon < 2$ followed by a quasi-stationary flow stress for higher strains. The yield stress of Cu increased to $\sim 300 \text{ MPa}$ after 8 MDF cycles and then decreased down to $\sim 280 \text{ MPa}$ after 48 cycles due to the increasing participation of dynamic recovery.
3. The microstrain in copper increased up to the 8th MDF cycle. However, the inverse occurred for 16, 32 and 48 cycles. These results are consistent with microstructural observations which revealed the rearrangement of dislocations into cells/subgrains at later stages of LSA-MDF processing.

4. MDF processing with $\Delta\varepsilon \approx 0.075$ slows the kinetics of micro-structural refinement and favors the dynamic recovery aided mechanisms during plastic straining in comparison with either ECAP or MDF with higher strain amplitudes. This is attributed to the reversed straining caused by the more frequent changes in the strain path during LSA-MDF which facilitate the annihilation and rearrangement of dislocations into structures with low energy configurations.

2.7 Acknowledgments

This investigation was financed in part by CNPq (National Council for Research and Technological Development) Grant 301034/2013-3 and the Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior - Brasil (CAPES) - Finance Code 001.

2.8 Data availability

The raw/processed data required to reproduce these findings cannot be shared at this moment as the data also forms part of an ongoing study.

2.9 References

- [1] R.Z. Valiev, T.G. Langdon, Principles of equal-channel angular pressing as a processing tool for grain refinement, *Prog. Mater. Sci.* 51 (2006) 881–981, <https://doi.org/10.1016/J.PMATSCI.2006.02.003>.
- [2] Y. Estrin, A. Vinogradov, EXtreme grain refinement by severe plastic deformation: a wealth of challenging science, *Acta Mater.* 61 (2013) 782–817, <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2012.10.038>.
- [3] A.P. Zhilyaev, T.G. Langdon, Using high-pressure torsion for metal processing: fundamentals and applications, *Prog. Mater. Sci.* 53 (2008) 893–979, <https://doi.org/10.1016/j.pmatsci.2008.03.002>.
- [4] T. Sakai, A. Belyakov, R. Kaibyshev, H. Miura, J.J. Jonas, Dynamic and post-dynamic recrystallization under hot, cold and severe plastic deformation conditions, *Prog. Mater. Sci.* 60 (2014) 130–207, <https://doi.org/10.1016/j.pmatsci.2013.09.002>.

- [5] S.S.S. Kumar, T. Raghu, Electrical conductivity, thermal stability, and lattice defect evolution during cyclic channel die compression of OFHC copper, *J. Mater. Eng. Perform.* 24 (2015) 726–736, <https://doi.org/10.1007/s11665-014-1359-z>.
- [6] S.S.S. Kumar, K. Priyasudha, M.S. Rao, T. Raghu, Deformation homogeneity, mechanical behaviour and strain hardening characteristics of titanium severe plastically deformed by cyclic channel die compression method, *Mater. Des.* 101 (2016) 117–129, <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2016.04.004>.
- [7] B. Cherukuri, T.S. Nedkova, R. Srinivasan, A comparison of the properties of SPD-processed AA-6061 by equal-channel angular pressing, multi-axial compressions/ forgings and accumulative roll bonding, *Mater. Sci. Eng.* 410–411 (2005) 394–397, <https://doi.org/10.1016/j.msea.2005.08.024>.
- [8] C.G. De Faria, N.G. Silva Almeida, M.T. Paulino Aguilar, P.R. Cetlin, Increasing the work hardening capacity of equal channel angular pressed (ECAPed) aluminum through multi-axial compression (MAC), *Mater. Lett.* (2016), <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2016.03.112>.
- [9] C.G. de Faria, N.G. e. Silva Almeida, F. de C. Bubani, K. Balzuweit, M.T.P. Aguilar, P.R. Cetlin, Microstructural evolution in the low strain amplitude multi-axial compression (LSA-MAC) after equal channel equal pressing (ECAP) of aluminum, *Mater. Lett.* (2018), <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2018.05.054>.
- [10] R. Kapoor, A. Sarkar, R. Yogi, S.K. Shekhawat, I. Samajdar, J.K. Chakravartty, Softening of Al during multi-axial forging in a channel die, *Mater. Sci. Eng.* 560 (2013) 404–412, <https://doi.org/10.1016/j.msea.2012.09.085>.
- [11] J. Gubicza, S.V. Dobatkin, E. Khosravi, A.A. Kuznetsov, J.L. Lábár, Microstructural stability of Cu processed by different routes of severe plastic deformation, *Mater. Sci. Eng.* 528 (2011) 1828–1832, <https://doi.org/10.1016/j.msea.2010.11.026>.

- [12] A. Heczal, F. Akbaripanah, M.A. Salevati, R. Mahmudi, A. Vida, J. Gubicza, A comparative study on the microstructural evolution in AM60 alloy processed by ECAP and MDF, *J. Alloy. Comp.* 763 (2018) 629–637, <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2018.06.002>.
- [13] A. Kundu, R. Kapoor, R. Tewari, J.K. Chakravartty, Severe plastic deformation of copper using multiple compression in a channel die, *Scripta Mater.* 58 (2008) 235–238, <https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2007.09.046>.
- [14] P.E. Armstrong, J.E. Hockett, O.D. Sherby, Large strain multidirectional deformation of 1100 aluminum at 300 K, *J. Mech. Phys. Solids* 30 (1982) 37–58.
- [15] A. Belyakov, T. Sakai, H. Miura, K. Tsuzaki, Grain refinement in copper under large strain deformation, *Philos. Mag. A* 81 (2001) 2629–2643, <https://doi.org/10.1080/01418610108216659>.
- [16] C. Kobayashi, T. Sakai, A. Belyakov, H. Miura, Ultrafine grain development in copper during multidirectional forging at 195 K, *Phil. Mag. Lett.* 87 (2007) 751–766, <https://doi.org/10.1080/09500830701566016>.
- [17] A. Belyakov, W. Gao, H. Miura, T. Sakai, Strain-induced grain evolution in polycrystalline copper during warm deformation, *Metall. Mater. Trans.* 29 (1998) 2957–2965, <https://doi.org/10.1007/s11661-998-0203-1>.
- [18] S.S.S. Kumar, T. Raghu, Bulk processing of fine grained OFHC copper by cyclic channel die compression, *Int. J. Mater. Res.* 106 (2015) 1230–1239, <https://doi.org/10.3139/146.111302>.
- [19] D.C.C. Magalhães, A.L. Pratti, A.M. Kliauga, J.B. Rubert, M. Ferrante, V.L. Sordi, Numerical simulation of cryogenic cyclic closed-die forging of Cu: hardness distribution, strain maps and microstructural stability, *J. Mater. Res. Technol.* 358 (2018) 1–11, <https://doi.org/10.1016/j.jmrt.2018.02.005>.

- [20] A. Takayama, X. Yang, H. Miura, T. Sakai, Continuous static recrystallization in ultrafine-grained copper processed by multi-directional forging, *Mater. Sci. Eng.* 478 (2008) 221–228, <https://doi.org/10.1016/j.msea.2007.05.115>.
- [21] I. Shakhova, Z. Yanushkevich, I. Fedorova, A. Belyakov, R. Kaibyshev, Grain refinement in a Cu-Cr-Zr alloy during multidirectional forging, *Mater. Sci. Eng.* 606 (2014) 380–389, <https://doi.org/10.1016/j.msea.2014.03.116>.
- [22] G.A. Salishchev, N.D. Stepanov, A.V. Kuznetsov, S.V. Zherebtsov, O.R. Valiakhmetov, A.A. Kuznetsov, S.V. Dobatkin, Effect of multiaxial forging on structure evolution and mechanical properties of oxygen free copper, *Mater. Sci. Forum* 667–669 (2010) 289–294 <http://dx.doi.org/10.4028/www.scientific.net/MSF.667-669.289>.
- [23] D.K. Koli, G. Agnihotri, R. Purohit, Advanced aluminium matrix composites: the critical need of automotive and aerospace engineering fields, *Mater. Today Proc.* (2015) 3032–3041, <https://doi.org/10.1016/j.matpr.2015.07.290>.
- [24] A.K. Parimi, P.S. Robi, S.K. Dwivedy, Severe plastic deformation of copper and Al- Cu alloy using multiple channel-die compression, *Mater. Des.* 32 (2011) 1948–1956, <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2010.11.074>.
- [25] H. Miura, W. Nakamura, Microstructure and mechanical properties of Mg–8Al alloy fabricated by room-temperature multi-directional forging, *Phil. Mag. Lett.* 93 (2013) 601–607, <https://doi.org/10.1080/09500839.2013.827800>.
- [26] H. Miura, T. Maruoka, X. Yang, J.J. Jonas, Microstructure and mechanical properties of multi-directionally forged Mg-Al-Zn alloy, *Scripta Mater.* 66 (2012) 49–51, <https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2011.10.005>.
- [27] H. Huang, J. Zhang, Microstructure and mechanical properties of AZ31 magnesium alloy processed by multi-directional forging at different temperatures, *Mater. Sci. Eng.* 674 (2016) 52–58, <https://doi.org/10.1016/j.msea.2016.07.052>.

- [28] T. Aoba, M. Kobayashi, H. Miura, Effects of aging on mechanical properties and microstructure of multi-directionally forged 7075 aluminum alloy, *Mater. Sci. Eng.* 700 (2017) 220–225, <https://doi.org/10.1016/j.msea.2017.06.017>.
- [29] X. Yang, Y. Okabe, H. Miura, T. Sakai, Effect of pass strain and temperature on recrystallisation in magnesium alloy AZ31 after interrupted cold deformation, *J. Mater. Sci.* 47 (2012) 2823–2830, <https://doi.org/10.1007/s10853-011-6111-6>.
- [30] R. Gupta, S. Srivastava, N.K. Kumar, S.K. Panthi, High leaded tin bronze processing during multi-directional forging: effect on microstructure and mechanical properties, *Mater. Sci. Eng.* 654 (2016) 282–291, <https://doi.org/10.1016/j.msea.2015.12.068>.
- [31] X. Yang, H. Miura, T. Sakai, Structural development at severely high strain in AZ31 magnesium alloy processed by cold forging and subsequent annealing, *Mater. Des.* 44 (2013) 573–579, <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2012.08.025>.
- [32] H. Miura, M. Kobayashi, T. Aoba, H. Aoyama, T. Benjanarasuth, An approach for room-temperature multi-directional forging of pure titanium for strengthening, *Mater. Sci. Eng.* 731 (2018) 603–608, <https://doi.org/10.1016/j.msea.2018.06.060>.
- [33] C.E. Feltner, C. Laird, Cyclic stress-strain response of F.C.C metals and alloys - I Phenomenological Experiments, *Acta Metall.* 15 (1967) 1621–1632.
- [34] C.E. Feltner, C. Laird, Cyclic stress-strain response of F.C.C. Metals and alloys- II dislocation structures and mechanisms, *Acta Metall.* 15 (1967) 1633–1653.
- [35] J. Polak, M. Klesnil, Cyclic stress-strain response and dislocation structures in polycrystalline copper, *Mater. Sci. Eng.* 63 (1984) 189–196.
- [36] P. Lukáš, M. Klesnil, Cyclic stress-strain response and fatigue life of metals in low amplitude region, *Mater. Sci. Eng.* 11 (1973) 345–356, [https://doi.org/10.1016/0025-5416\(73\)90125-0](https://doi.org/10.1016/0025-5416(73)90125-0).

- [37] P. Lukáš, L. Kunz, Cyclic plasticity and substructure of metals, *Mater. Sci. Eng.* 322 (2002) 217–227, [https://doi.org/10.1016/S0921-5093\(01\)01132-7](https://doi.org/10.1016/S0921-5093(01)01132-7).
- [38] J. Zhang, Y. Jiang, An experimental study of the formation of typical dislocation patterns in polycrystalline copper under cyclic shear, *Acta Mater.* 55 (2007) 1831–1842, <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2006.10.044>.
- [39] F. Dalla Torre, R. Lapovok, J. Sandlin, P.F. Thomson, C.H.J. Davies, E.V. Pereloma, Microstructures and properties of copper processed by equal channel angular extrusion for 1–16 passes, *Acta Mater.* 52 (2004) 4819–4832, <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2004.06.040>.
- [40] N. Lugo, N. Llorca, J.M. Cabrera, Z. Horita, Microstructures and mechanical properties of pure copper deformed severely by equal-channel angular pressing and high pressure torsion, *Mater. Sci. Eng.* 477 (2008) 366–371, <https://doi.org/10.1016/j.msea.2007.05.083>.
- [41] Y.L. Wang, R. Lapovok, J.T. Wang, Y.S. Qi, Y. Estrin, Thermal behavior of copper processed by ECAP with and without back pressure, *Mater. Sci. Eng. A Eng. A.* 628 (2015) 21–29, <https://doi.org/10.1016/j.msea.2015.01.021>.
- [42] P.M.A. Stemler, P.C.A. Flausino, P.H.R. Pereira, C.G. de Faria, N.G.S. Almeida, M.T.P. Aguilar, P.R. Cetlin, Mechanical behavior and microstructures of aluminum in the Multi-Axial Compression (MAC) with and without specimen re-machining, *Mater. Lett.* 237 (2019) 84–87, <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2018.11.081>.
- [43] T. Sakai, H. Miura, X. Yang, Ultrafine grain formation in face centered cubic metals during severe plastic deformation, *Mater. Sci. Eng.* 499 (2009) 2–6, <https://doi.org/10.1016/j.msea.2007.11.098>.
- [44] M. Richert, H.P. Stüwe, J. Richert, R. Pippan, C. Motz, Characteristics features of microstructure of ALMg5 deformed to large plastic strains, *Mater. Sci. Eng.* 301 (2001) 237–243, [https://doi.org/10.1016/S0921-5093\(00\)01803-7](https://doi.org/10.1016/S0921-5093(00)01803-7).
- [45] M.Y. Alawadhi, S. Sabbaghianrad, Y. Huang, T.G. Langdon, Direct influence of recovery behaviour on mechanical properties in oxygen-free copper processed using different

SPD techniques: HPT and ECAP, *J. Mater. Res. Technol.* 6 (2017) 369–377, <https://doi.org/10.1016/j.jmrt.2017.05.005>.

[46] E.O. Hall, The deformation and ageing of mild steel: III discussion of results, *Proc. Phys. Soc. B* 64 (1951) 747–753, <https://doi.org/10.1088/0370-1301/64/9/303>.

[47] N.J. Petch, The cleavage strength of polycrystals, *J. Iron Steel Inst.* 174 (1953) 25–28, <https://doi.org/10.1007/BF01972547>.

[48] J. Gubicza, L. Balogh, R.J. Hellmig, Y. Estrin, T. Ungár, Dislocation structure and crystallite size in severely deformed copper by X-ray peak profile analysis, *Mater. Sci. Eng. A.* 400–401 (2005) 334–338, <https://doi.org/10.1016/j.msea.2005.03.042>.

[49] X. Molodova, G. Gottstein, M. Winning, R.J. Hellmig, Thermal stability of ECAP processed pure Cu and CuZr, *Mater. Sci. Eng.* 460–461 (2007) 204–213, <https://doi.org/10.3139/146.101468>.

[50] C. Xu, Q. Wang, M. Zheng, J. Li, M. Huang, Q. Jia, J. Zhu, L. Kunz, M. Buksa, Fatigue behavior and damage characteristic of ultra-fine grain low-purity copper processed by equal-channel angular pressing (ECAP), *Mater. Sci. Eng.* 475 (2008) 249–256, <https://doi.org/10.1016/j.msea.2007.04.074>.

[51] O.F. Higuera-Cobos, J.M. Cabrera, Mechanical, microstructural and electrical evolution of commercially pure copper processed by equal channel angular extrusion, *Mater. Sci. Eng.* 571 (2013) 103–114, <https://doi.org/10.1016/j.msea.2013.01.076>.

[52] J. Xu, J. Li, D. Shan, B. Guo, Microstructural evolution and micro/meso-deformation behavior in pure copper processed by equal-channel angular pressing, *Mater. Sci. Eng.* 664 (2016) 114–125, <https://doi.org/10.1016/j.msea.2016.03.016>.

[53] M. Ebrahimi, C. Gode, Severely deformed copper by equal channel angular pressing, *Prog. Nat. Sci. Mater. Int.* 27 (2017) 244–250, <https://doi.org/10.1016/j.pnsc.2017.03.002>.

- [54] W.P. Longo, R.E. Reed-Hill, An analysis of work softening in polycrystalline nickel, *Metallography* 7 (1974) 181–201.
- [55] D.A. Hughes, N. Hansen, High angle boundaries formed by grain subdivision mechanisms, *Acta Mater.* 45 (1997) 3871–3886.
- [56] M.T.P. Aguilar, E.C.S. Corrêa, W.A. Monteiro, P.R. Cetlin, The effect of cyclic torsion on the dislocation structure of drawn mild steel, *Mater. Res.* 9 (2006) 345–348.
- [57] A. Vinogradov, S. Hashimoto, Multiscale phenomena in fatigue of ultra-fine grain materials - an overview, *Mater. Trans.* 42 (2001) 74–84.
- [58] C.Z. Xu, Q.J. Wang, M.S. Zheng, J.W. Zhu, J.D. Li, M.Q. Huang, Q.M. Jia, Z.Z. Du, Microstructure and properties of ultra-fine grain Cu-Cr alloy prepared by equal-channel angular pressing, *Mater. Sci. Eng.* 459 (2007) 303–308, <https://doi.org/10.1016/j.msea.2007.01.105>.

CAPÍTULO 3 – ARTIGO 2

INFLUENCE OF STRAIN AMPLITUDE ON THE MICROSTRUCTURAL EVOLUTION AND FLOW PROPERTIES OF COPPER PROCESSED BY MULTIDIRECTIONAL FORGING

3.1 Abstract

Commercial-purity copper (99.8%) is processed by multidirectional forging (MDF) using strain amplitudes per compression ($\Delta\varepsilon$) of 0.15 and 0.30, leading to accumulated strains (ε) of up to ≈ 10.8 . It is shown that increasing the accumulated strain causes continuous reactions at the substructural level, involving the progressive evolution of dislocation arrangements toward structures having high misorientation angles. This evolution depends upon the strain amplitude in MDF processing and is characterized by the fragmentation of the original grains due to formation and intersection of micro shear bands (MSBs) assisted by dynamic recovery processes. Higher $\Delta\varepsilon$ enhances the “monotonic” character of processing, resulting in a higher fraction of MSBs and band intersections, increased work hardening, flow stresses, and dislocation density, lower cell/subgrain and grain sizes, and faster grain refinement kinetics, compared with MDF under lower $\Delta\varepsilon$. The yield strength of copper, measured along a direction orthogonal to that of the previous compression step, is lower than the flow stress at the end of this compression step, and this behavior becomes more prominent with increasing ε and $\Delta\varepsilon$.

Keywords: Copper, grain refinement, Multidirectional Forging, Severe Plastic Deformation, strain amplitudes

3.2 Introduction

The search for the development of metals with high mechanical strength has raised intense interest in severe plastic deformation (SPD) methods [1,2]. These involve the application of intense straining to ultimately produce ultrafine-grained (UFG) materials. Among the available SPD techniques, multidirectional forging (MDF) [3–5] is one of the simplest procedures and can be readily applied in industry. During MDF processing, a cuboid workpiece is successively submitted to the same compression strain along its three orthogonal axes, so that after each three compressions (a so-called MDF cycle) the dimensions of the sample return to the unprocessed state [4,6], MDF processing allows the determination of the material in situ stress–

strain curves for every compression step and can be performed with or without the use of dies confining the plastic flow [3,7].

Although the grain refinement mechanisms associated with SPD are still not fully understood, it is generally accepted that it is caused by the fragmentation of the original grains in the material by boundaries formed from dislocation arrangements created during straining [8]. Sakai et al. [3] have emphasized the importance of the development of micro shear bands (MSBs), which are localized planar sheared regions within the initial grains, in the development of UFG structures in metals processed by different SPD procedures [3,7,9–18]. This microstructural evolution is also referred to in the literature as continuous dynamic recrystallization [3,7,9,12,19] and the successive deformation at mutually orthogonal directions in MDF facilitates the formation of MSBs as shown in various investigations [4,7,18–22].

Armstrong et al. [20] processed Al 1100 samples through MDF at room temperature (RT) using strain amplitudes ($\Delta\varepsilon$) from 0.075 to 0.33. The flow stress saturated after a few cycles, at an increasing level as the strain amplitude was raised. Yang et al. [21] processed the Mg alloy AZ31 with MDF at RT under $\Delta\varepsilon \approx 0.05$ or 0.10 up to a total strain (ε) of 1.5. It was shown that $\Delta\varepsilon \approx 0.10$ led to a more pronounced work hardening, a higher saturation stress, and a more homogeneous microstructure with closely spaced twins. A recent study involving the MDF of 99.8% purity copper processed by confined MDF using $\Delta\varepsilon \approx 0.075$ demonstrated that such a low strain amplitude is capable of promoting a sizable increase in the metal strength without causing cracks. Nevertheless, it slows the kinetics of grain refinement and generates microstructures with larger grain sizes in comparison to MDF and equal-channel angular pressing (ECAP) with higher strain amplitudes [23]. Wetscher and Pippan [24] processed nickel and Armco iron through monotonic and cyclic high-pressure torsion (HPT). Monotonic processing resulted in a smaller size of the structural elements than cyclic HPT; in addition, the lower the strain increment in cyclic HPT, the larger were these structural elements.

The aforementioned results indicate that the knowledge concerning the influence of the total accumulated strain and the strain amplitude in MDF processing is essential for the process optimization to establish the adequate processing route to achieve the desired mechanical properties for a given application. Most of the MDF experiments documented in the literature were conducted using strain amplitudes within the range of ≈ 0.4 – 0.8 [4,5,7,9,11,13,22,25–29] and little importance has been attached to variations of this strain amplitude. This investigation

aims to examine the influence of the strain amplitude ($\Delta\varepsilon$) and the total strain (ε) on the microstructural evolution and mechanical properties of copper (99.8% purity) processed through MDF using $\Delta\varepsilon \approx 0.075, 0.15, \text{ or } 0.30$ up to accumulated strains of 0.9, 1.8, 3.6, 7.2, and 10.8. The effect of these variables on the overall size, character, amount, and distribution of the dislocation arrangements and grain structures developed during MDF processing is also discussed in detail.

3.3 Results

3.3.1 Stress–Strain Behavior

The true stress–true strain (SS) curves for copper specimens processed up to 24 cycles in $\text{MDF}_{0.15}$ or 12 cycles in $\text{MDF}_{0.30}$ are shown in Figure 3.1. The envelopes of the individual SS curves for each processing condition are also known as cumulative flow stress curves [13,28] and represent the flow stress evolution of the material [9,12]. It is evident in Figure 3.1a,b the occurrence of a rapid stress rise at the end of each compression due to the confining action of the die walls. These stress increments were not considered while constructing the cumulative flow stress curves as they cannot be attributed solely to the mechanical behavior of the material [6,23]. For comparison purposes, the cumulative SS curves obtained in this study are plotted in Figure 3.1c together with the cumulative SS curve obtained for the same metal after 48 MDF cycles using $\Delta\varepsilon 0.075$ [23].

Figure 3.1a,b shows that a significant material work hardening occurs at the initial MDF stages for $\Delta\varepsilon \approx 0.15$ and 0.30 , resulting in flow stresses $>4x$ above the yield strength (σ_y) of the annealed material. The overall shape of the cumulative SS curves in Figure 3.1c is very similar for all strain amplitudes and typical of deformation conditions dominated by dynamic recovery [9,12,13,23,28]. Work hardening is followed by an almost stationary flow stress achieved at $\varepsilon \approx 2.0$ [23], 2.1 and 2.4 for $\Delta\varepsilon \approx 0.075, 0.15$ and 0.30 , respectively. It should be noted that the saturation stress increases as the strain amplitude is raised, reaching ≈ 360 MPa for $\text{MDF}_{0.075}$, ≈ 380 MPa for $\text{MDF}_{0.15}$, and 390 MPa for $\text{MDF}_{0.30}$. A similar behavior has been reported for the variation of flow stress with strain amplitude for cyclic tension/compression of different metals [30,31] and for aluminum processed by MDF at RT [20]. Furthermore, the saturation stresses achieved in the current experiments are comparable to those reported after processing 99.99% purity copper through unconfined MDF with $\Delta\varepsilon \approx 0.4$ [12,13,28].

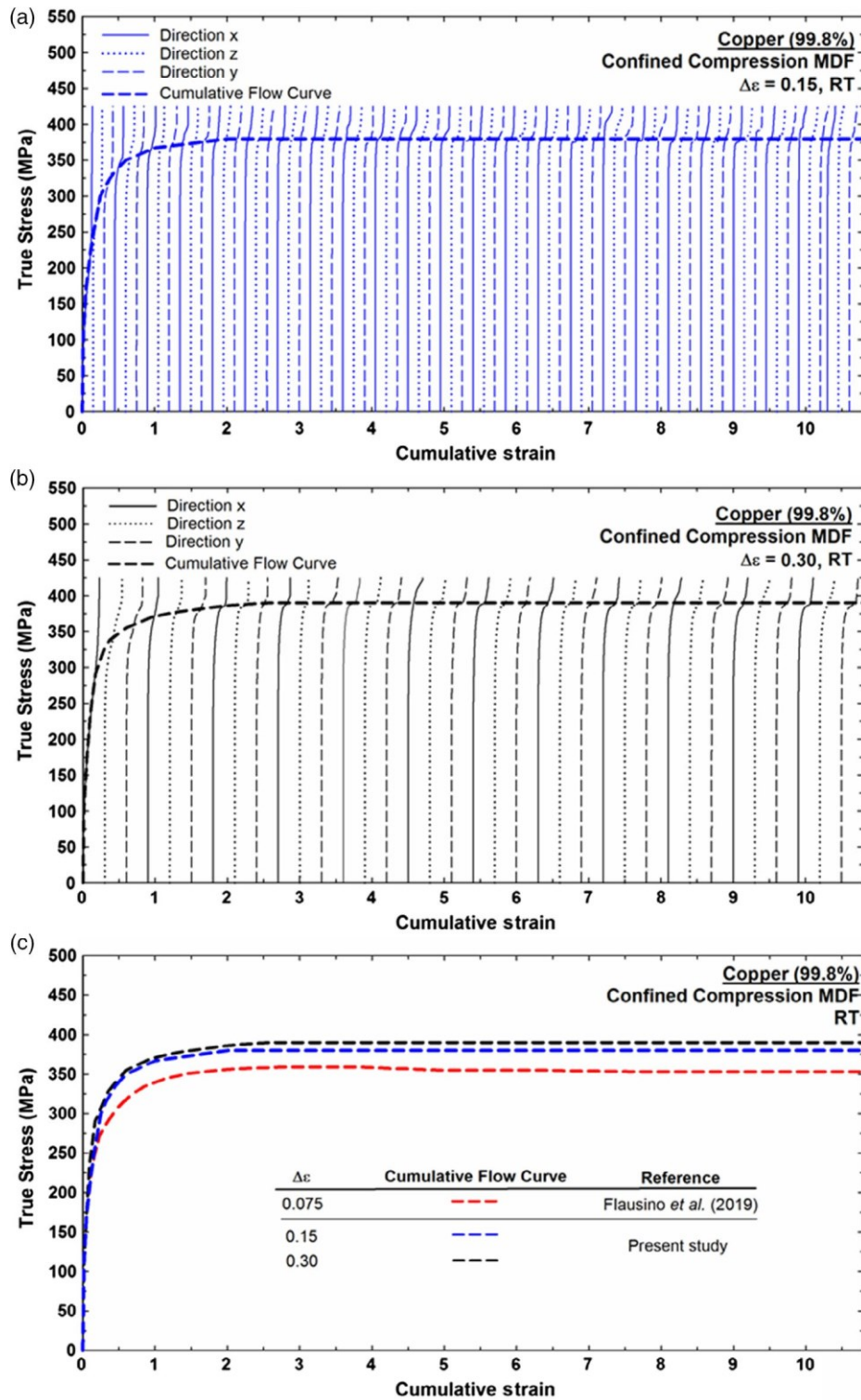


Figure 3.1 - Individual and cumulative flow stress curves for Cu specimens processed through a) $MDF_{0.15}$, b) $MDF_{0.30}$, and c) $MDF_{0.075}$ [23], $MDF_{0.15}$, and $MDF_{0.30}$.

3.3.2 Deformation Microstructures

Figure 3.2 shows optical microscopy (OM) images for Cu specimens processed by MDF_{0.15} (2, 4, 8, and 24 cycles) and MDF_{0.30} (1, 2, 4, and 12 cycles). The original grains were gradually fragmented as the imposed deformation was raised and this resulted in a heterogeneous microstructure formed by bright and dark areas, as shown in Figure 3.2. The latter likely correspond to highly strained regions that underwent profuse micro shear banding during deformation [13]. It should be further noted that the area fraction of these dark regions increases with increasing ϵ and $\Delta\epsilon$; for MDF_{0.075}, this fraction is $\approx 53\%$ after $\epsilon \approx 10.8$ [23], for MDF_{0.15} it evolves from $\approx 30\%$ ($\epsilon \approx 0.9$) to 58% ($\epsilon \approx 10.8$), and for MDF_{0.30} the evolution is from $\approx 39\%$ to 70% considering the same accumulated strains.

Figure 3.3 and 3.4 show orientation imaging microscopy (OIM) images and boundary maps generated by electron backscattered diffraction (EBSD) for the material processed by MDF with $\Delta\epsilon \approx 0.15$ and 0.30 . The boundaries in Figure 3.4 are represented using different colors according to their misorientation angles such that for $2 < \theta < 5^\circ$, $5 < \theta < 15^\circ$ and $\theta > 15^\circ$ they are delineated in red, green, and blue, respectively.

The color shades inside the grains in Figure 3.3a,b suggest the formation of substructures at the early stages of MDF ($\epsilon \approx 0.9$) as confirmed by the low-angle grain boundary (LAGB) networks in Figure 3.4a,b. The fraction of high-angle grain boundary (HAGBs) reaches its minimum (11%) already after the first cycle in MDF_{0.30}. Additional straining leads to an increase in the misorientation of the sub-boundaries, resulting in an increase of the HAGB fraction, which achieves a value of 38% after 12 MDF cycles with $\Delta\epsilon \approx 0.30$. It is worth mentioning that the density of either LAGBs or HAGBs is noticeably higher for Cu specimens processed by MDF_{0.30} compared with MDF_{0.075} [23] and MDF_{0.15} at equivalent imposed strains. This difference is more pronounced both in the initial ($\epsilon \approx 0.9$) and in the final stages of processing ($\epsilon \approx 10.8$).

Copper (99.8%)
 Annealing: 873 K, 2 h
 MDF, RT
 X plane

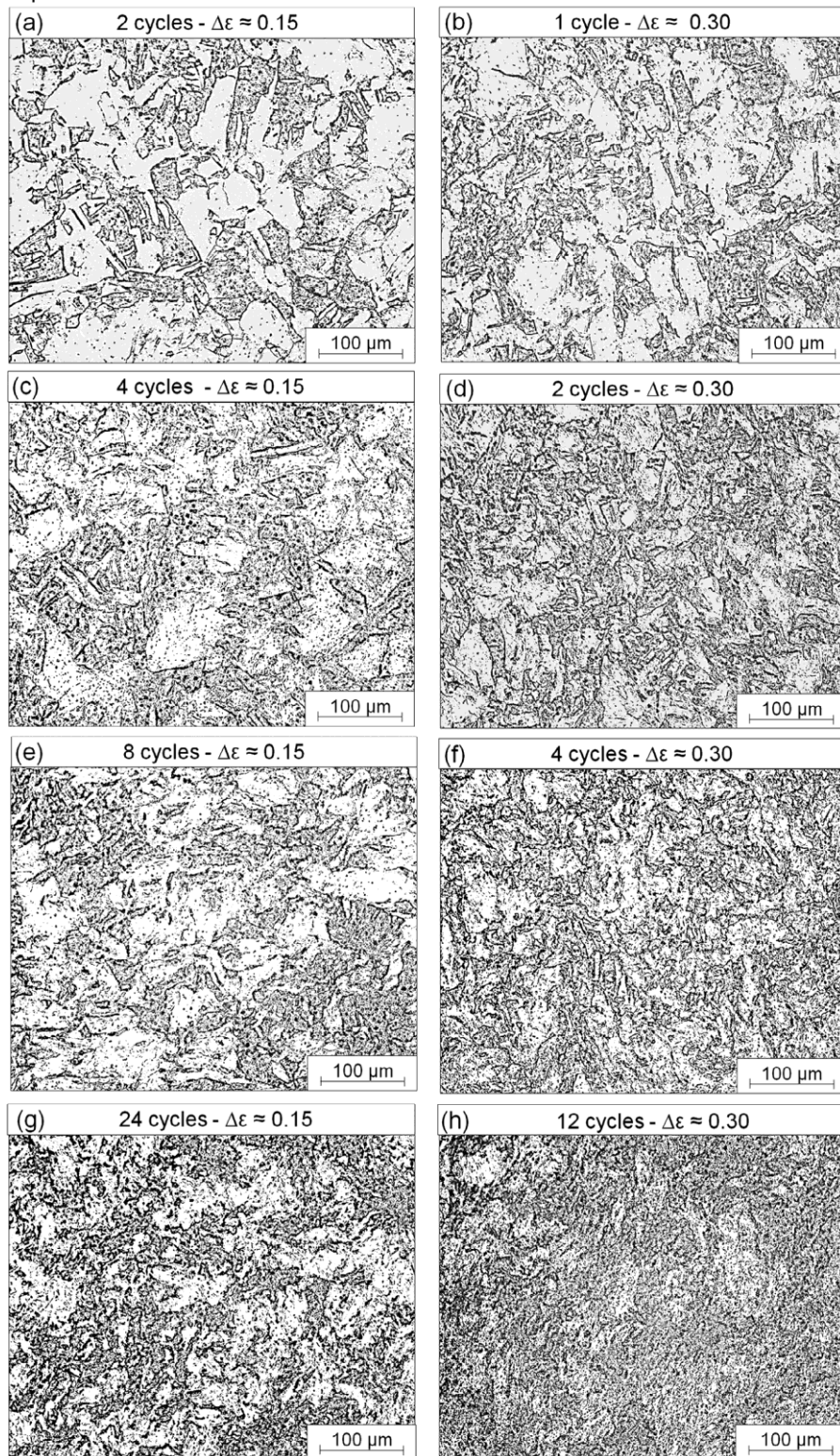


Figure 3.2 - OM images for Cu specimens after processing through $MDF_{0.15}$ and $MDF_{0.30}$ up to accumulated strains of a,b) 0.9, c,d) 1.8, e,f) 3.6, and g,h) 10.8.

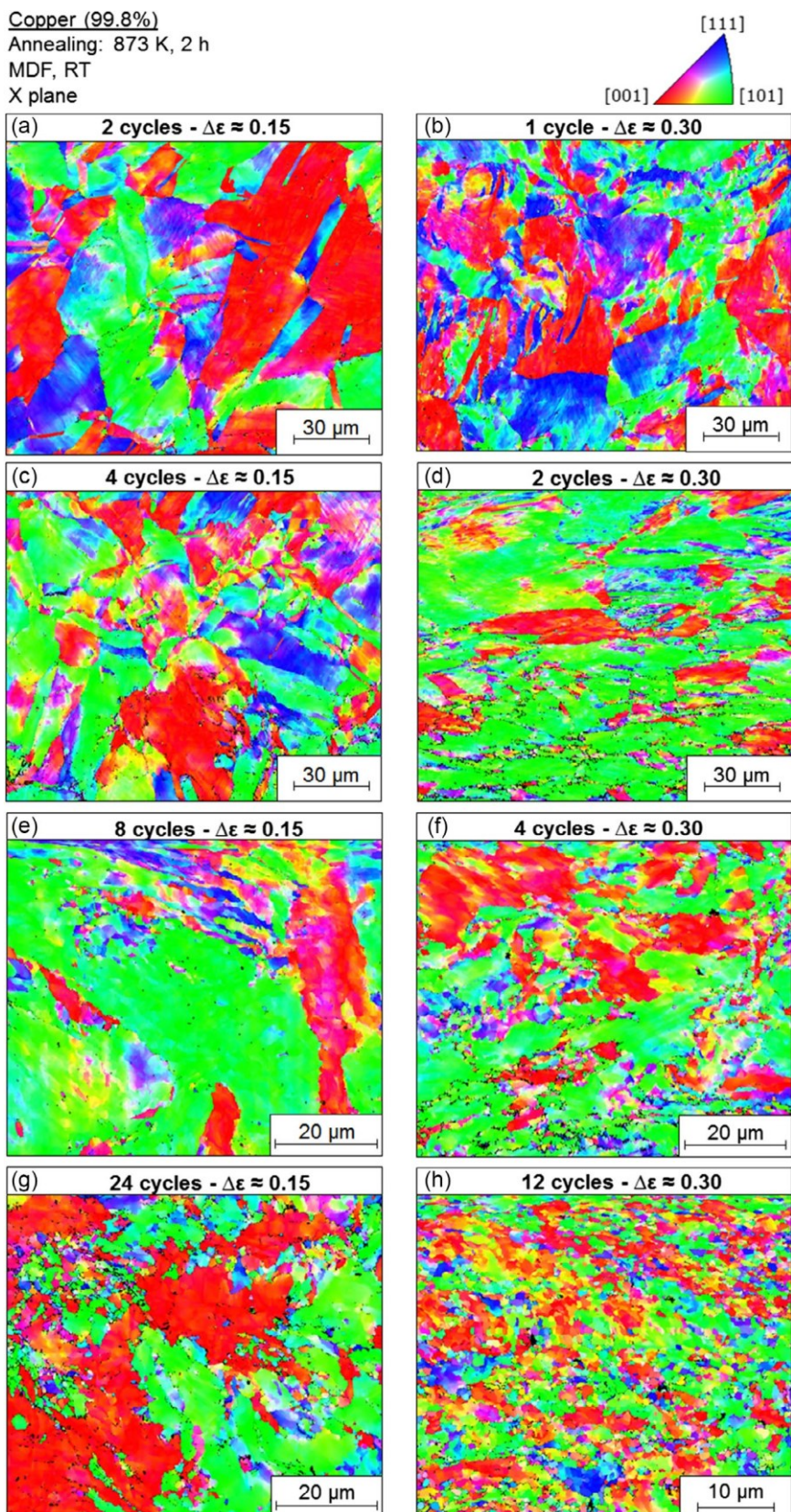


Figure 3.3 - OIM images for Cu specimens after processing through $\text{MDF}_{0.15}$ and $\text{MDF}_{0.30}$ up to accumulated strains of a,b) 0.9, c,d) 1.8, e,f) 3.6, and g,h) 10.8.

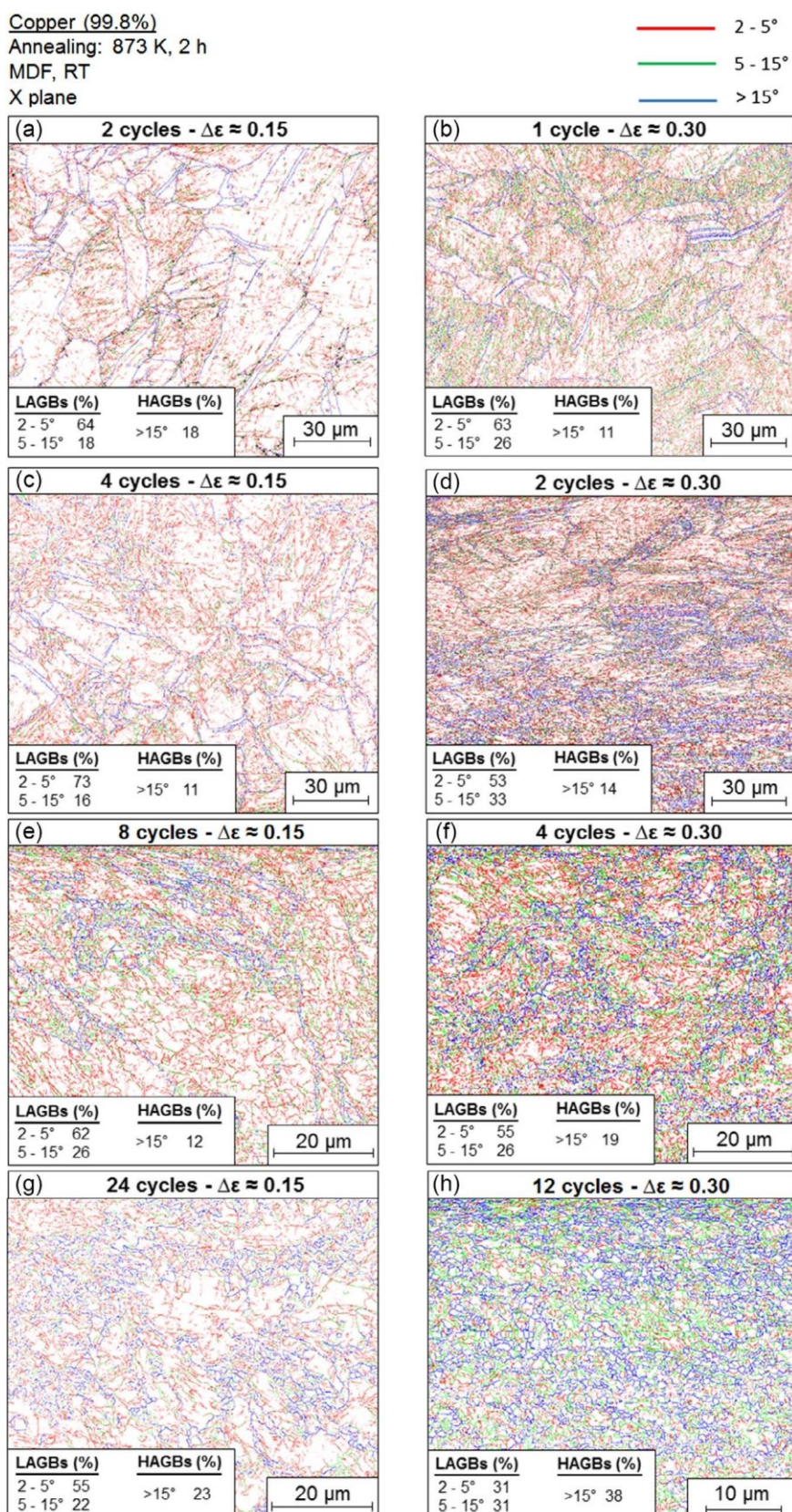


Figure 3.4 - Boundary maps and fractions of boundaries for copper after processing by $\text{MDF}_{0.15}$ and $\text{MDF}_{0.30}$ up to total strains of a,b) 0.9, c,d) 1.8, e,f) 3.6, and g,h) 10.8.

Figure 3.5 shows plots of average grain size (D) and fraction of submicrometric grains ($D \leq 1 \mu\text{m} - f_{D \leq 1}$) as a function of ε and $\Delta\varepsilon$ for Cu specimens processed by MDF. The results reveal that the grain size monotonically decreases with increasing strain and this evolution is rather similar for copper processed through MDF_{0.15} and MDF_{0.30}. At these processing conditions, grain refinement occurs at faster rates up to $\varepsilon \approx 3.6$; thereafter, the refinement kinetics appears to decelerate and the material processed by MDF_{0.15} and MDF_{0.30} exhibits grain sizes of $\approx 3\text{--}4 \mu\text{m}$ after deformation up to $\varepsilon \approx 10.8$. For MDF_{0.075}, the kinetics of grain refinement is noticeably slower and $D \approx 5.4 \mu\text{m}$ after $\varepsilon \approx 10.8$.

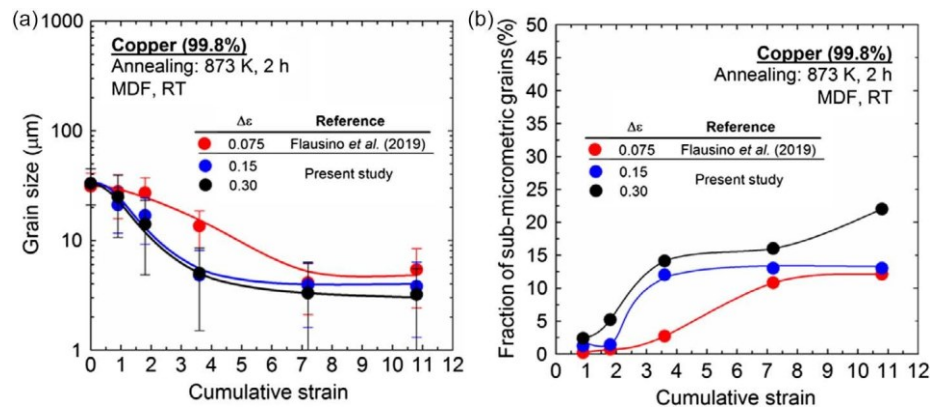


Figure 3.5 - Plots of a) grain size (D) and b) fraction of submicrometric grains ($f_{D \leq 1}$) as a function of ε and $\Delta\varepsilon$ for copper after MDF_{0.075}[23], MDF_{0.15}, and MDF_{0.30}.

These plots clearly demonstrate that for the same value of total strain higher strain amplitudes lead to lower values of D . Similar results were reported for nickel and Armco iron after either monotonic or cyclic HPT [24] whereby the size of the structural elements decreased with increasing strain amplitudes. In addition, the smallest size of the substructural elements was obtained through monotonic HPT.

There is an increase in the fraction of submicrometric grains with increasing numbers of MDF cycles as shown in Figure 3.5b. The evolution of $f_{D \leq 1}$ with ε displays a similar trend for MDF_{0.15} and MDF_{0.30}, although $f_{D \leq 1}$ reaches higher values and does not saturate even after $\varepsilon \approx 10.8$ for MDF_{0.30}. The kinetics of formation of submicrometric grains is slower for $\Delta\varepsilon \approx 0.075$ and $f_{D \leq 1}$ becomes superior to 10% only after $\varepsilon \approx 7.2$ [23].

Figure 3.6 shows transmission electron microscopy (TEM) images for copper processed by MDF using $\Delta\varepsilon \approx 0.15$ or 0.30 up to total strains of 0.9, 1.8, 3.6, and 10.8. It is readily seen in

Figure 3.6a,e that the initial stages of processing ($\epsilon \approx 0.9$) are characterized by the generation of a high amount of dislocations within the original grains. These dislocation structures are dense and still very diffuse, although it is apparent that they begin to organize into substructures delineated by thick LAGBs. Further straining up to $\epsilon \approx 3.6$ leads to the development of elongated sub-structures, with ill-defined boundaries and internal dislocation arrangements. These structures result from the intersection of MSBs and are aligned along the same direction, likely corresponding to a dominant shearing direction [32].

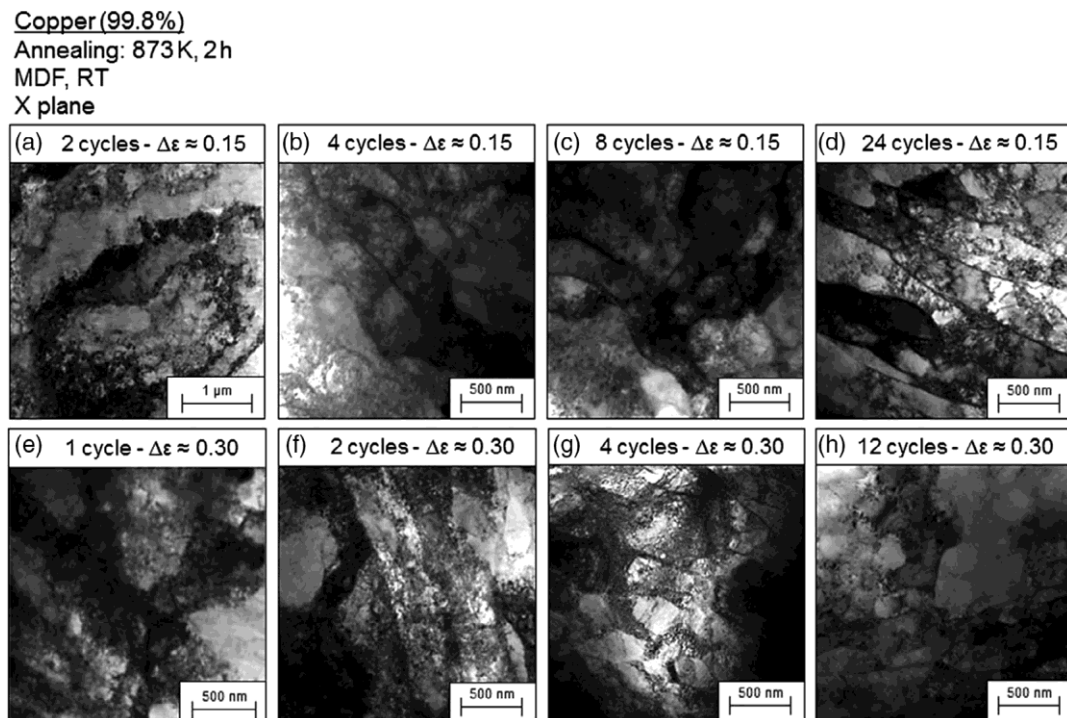


Figure 3.6 - TEM images for copper processed through $\text{MDF}_{0.15}$ or $\text{MDF}_{0.30}$ up to accumulated strains of a,e) 0.9, b,f) 1.8, c,g) 3.6, and d,h) 10.8.

Even after 24 cycles, the material processed through $\text{MDF}_{0.15}$ exhibits microbands with elongated substructures containing tangled dislocations in their interiors. Nevertheless, these lamellar sub-boundaries are evidently sharp and contain a low density of intrinsic dislocations in their interiors. Although such elongated substructures and internal complex dislocation arrangements are also noticed in copper after four MDF cycles with $\Delta\epsilon \approx 0.30$, equiaxed substructures frequently free of internal dislocation arrangements can also be observed, suggesting a decrease in the density of intrinsic dislocations in relation to the initial stages of MDF [13].

The substructural evolution of copper during MDF processing can also be followed through the influence of ε and $\Delta\varepsilon$ on the average cell/subgrain size (d) shown in Figure 3.7a. The results reveal that d decreases as ε increases, approaching an equilibrium state with $d \approx 600$ nm in MDF_{0.075}, $d \approx 420$ nm in MDF_{0.15}, and $d \approx 310$ nm in MDF_{0.30}. A similar evolution was reported in a previous study for copper after MDF using $\Delta\varepsilon \approx 0.4$ [24] and 0.83 [25], reaching saturation values of d 0.2 and 0.3 μm , respectively.

Figure 3.7b shows the evolution of the dislocation density with ε . For all MDF conditions, ρ increases up to $\varepsilon \approx 1.8$, evolving from 10^{14} m^{-2} in the annealed metal to 10^{15} m^{-2} after eight MDF_{0.075} cycles, $2 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ after four MDF_{0.15} cycles, and $3 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ after two MDF_{0.30} cycles. For $\varepsilon > 1.8$, the dislocation density decreases, suggesting a predominance of dynamic recovery processes [33]. Figure 3.7b also shows that ρ increases with increasing $\Delta\varepsilon$.

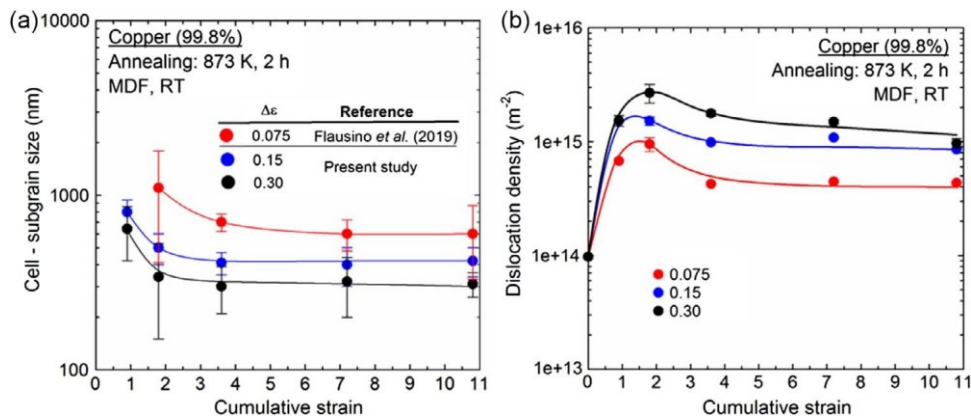


Figure 3.7 - a) Cell/subgrain size and b) dislocation density for copper processed up to 24 cycles of MDF_{0.15} and 12 cycles of MDF_{0.30}. Data for MDF_{0.075} [23] were also included.

3.4 Discussion

3.4.1 Grain Refinement

The present results demonstrate that the microstructural changes resulting from MDF_{0.15} and MDF_{0.30} of copper are connected to continuous reactions caused by cyclic straining. These reactions occur at the microstructural (Figure 3.3) and substructural levels (Figure 3.6) and involve the transformation of substructures separated by LAGBs to UFG structures [9]. This evolution is influenced by the formation and intersection of MSBs [3,9,12,17,18,28]. The successive compressive steps in MDF along orthogonal axes activate multiple shearing sys-

tems; as a consequence, MSBs are gradually developed and mutually intercepted, leading to fragmentation of the original grains [15].

The nearly stationary flow stress in copper at high strain levels (Figure 3.1c) indicates that dynamic recovery plays an important role in the development of new grains during MDF processing at all $\Delta\varepsilon$ [9]. For $\varepsilon > 1.8$, grain refinement is accompanied by a reduction in the dislocation density (Figure 3.7b) due not only to dislocation annihilation but also to their rearrangement into lower energy configurations. Figure 3.6 shows that, for both MDF_{0.15} and MDF_{0.30} at $\varepsilon \approx 10.8$, the sub-boundaries are sharp, which is connected to the lowering of ρ through dynamic recovery [34]. However, the microstructures for MDF_{0.075}[23] and MDF_{0.15} contain elongated subgrains, whereas it is basically composed of equiaxed domains having a low density of internal defects for MDF_{0.30}.

The process of grain fragmentation by MDF processing using different $\Delta\varepsilon$ is well portrayed in the EBSD pattern quality maps shown in Figure 3.8. These maps readily demonstrate that the number of MSBs at the initial stages of MDF ($\varepsilon \approx 0.9$) increases with increasing $\Delta\varepsilon$. This trend was also reported for an Al 7075 alloy processed by MDF with $\Delta\varepsilon$ 0.4 or 0.7 [16]. It has been shown that the development of MSBs coupled to grain refinement is more pronounced for $\Delta\varepsilon$ 0.7 than for 0.4, which results in an area fraction of fine grains at $\varepsilon \approx 3.5$ of 80–85%.

By contrast, this area fraction is 50% for the same alloy processed by MDF using $\Delta\varepsilon \approx 0.4$ for the same total strain. Even after $\varepsilon \approx 10.8$, the low number of intersecting MSBs in MDF_{0.075} and MDF_{0.15} generates a heterogeneous microstructure in which unrefined areas coexist with regions exhibiting fine equiaxed domains. The volume fraction of the latter increases with $\Delta\varepsilon$ and these areas cover practically all the material (Figure 3.4h and 3.8f), similarly to the microstructure of copper 99.99% after MDF processing up to $\varepsilon \approx 18$ with $\Delta\varepsilon \approx 0.4$ [9]. It is thus evident that the formation of new submicrometric grains is closely connected with the generation and intersection of MSBs [14] and the kinetics of grain refinement is faster for higher $\Delta\varepsilon$. This is consistent with experiments conducted through cyclic HPT, which demonstrated that decreases in $\Delta\varepsilon$ caused more intense dislocation annihilation induced by reverse shearing, which slowed the formation of HAGBs [24].

Mechanisms that accelerate recovery processes usually retard the formation of new grains through a decrease in the dislocation density [35]. Accordingly, SPD processes where strain

paths involve cyclic straining are less effective to promote grain refinement than monotonic processes as shown for monotonic HPT, cyclic extrusion compression, and ECAP [36]. MDF can thus be viewed as an SPD procedure where dynamic recovery is favored by orthogonal straining after each compression step. Therefore, a reduction in $\Delta\epsilon$ increases the number of strain path changes for the same accumulated strain, which favors dislocation annihilation and ultimately results in larger saturation grain sizes.

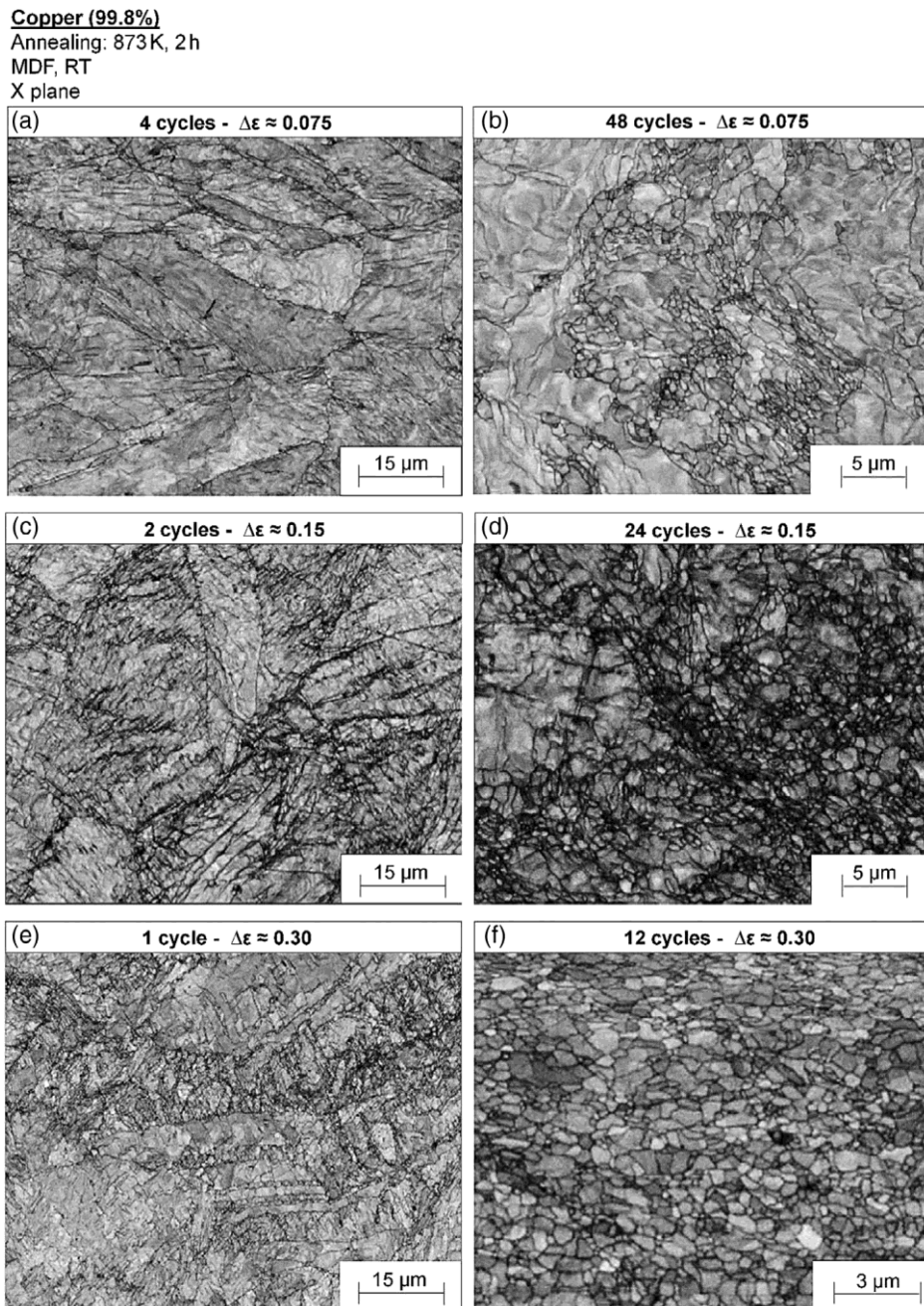


Figure 3.8 - EBSD pattern quality maps of copper at comparable total strains after a,b) 4 and 48 $\text{MDF}_{0.075}$ cycles, c,d) 2 and 24 $\text{MDF}_{0.15}$ cycles, and e,f) 1 and 12 $\text{MDF}_{0.30}$ cycles.

3.4.2 Flow Properties and Bauschinger Effect

The SS curves of copper processed by MDF_{0.075} [23], MDF_{0.15}, and MDF_{0.30} display a close resemblance to curves obtained at high homologous temperatures in deformation conditions dominated by dynamic recovery [9,13,20,23,28]. There is an initial work-hardening stage followed by the saturation of the flow stress that increases with increasing $\Delta\epsilon$. The saturation stress (σ_s) of copper processed by MDF_{0.30} is 390 MPa and this value is consistent with the maximum stress achieved in copper 99.99% during MDF processing with $\Delta\epsilon \approx 0.4$ [13]. Similar results concerning the influence of $\Delta\epsilon$ on σ_s have been reported for tension-compression low cycle fatigue (LCF) [30,31], cyclic HPT [24] and MDF processing of Al 1100 with $0.075 \leq \Delta\epsilon \leq 0.33$ [20].

During each compression step in MDF processing, dislocations are generated and move toward a direction in which the critical resolved shear stress (CRSS) is sufficiently high to promote slip within a particular crystalline domain. As a consequence, as deformation proceeds, more dislocations are created and eventually pile up at the domain boundaries. When the same metal is strained in a consecutive MDF step, a compressive load is applied in a plane orthogonal to that in the previous step. This changes the stress state in the metal and allows the motion of dislocations in other directions. Accordingly, dynamic recovery is favored at the beginning of each MDF compression as the former piled up dislocations are allowed to glide in different slip systems and may eventually encounter and annihilate dislocations with opposing signs. The lower the MDF strain amplitude, the more frequent are the changes in the strain path for the same accumulated deformation and the higher the mechanical recovery promoted by these changes.

As a result, both the saturation stress and the minimum strain needed for its attainment increase as $\Delta\epsilon$ is raised, in accordance with experiments conducted using cyclic HPT [24]. This follows from the lower rate of dynamic recovery due to cyclic straining in MDF at higher strain amplitudes, which permits the storage of a higher density of dislocations (Figure 3.7b) and delays the achievement of a balance between the rates of generation and elimination of defects.

Grain boundary strengthening is usually described by the Hall–Petch equation which states that the yield strength (σ_y) is proportional to $D^{-1/2}$ [37,38]. In severely deformed metals having grain sizes larger than the equilibrium subgrain size obtained under dynamic recovery conditions, the

first boundaries acting as obstacles to dislocations are mainly cells/subgrain boundaries [39]. In this case, the sub-boundaries prominently contribute to the material strengthening such that the flow stress is inversely proportional to the subgrain size (d) [40].

To verify whether HAGBs or sub-boundaries are the strengthening structures in copper at different MDF stages, Figure 3.9 displays the relationships σ_y versus $D^{-1/2}$, σ_y versus d^{-1} , and σ_s versus d^{-1} for Cu specimens processed through MDF_{0.075} [23], MDF_{0.15}, and MDF_{0.30}. The 0.2% yield strength for a given MDF cycle was determined based on the SS curve of the first compression step in the following cycle in which the loading direction is orthogonal to the previous compression direction. A line was drawn in Figure 3.9a using an equation from a recent study [23] fitted based on data for SPD-processed copper [23,41–45].

Figure 3.9c demonstrates that, in general, samples processed up to higher amounts of strain under increasing $\Delta\varepsilon$ exhibit higher saturation flow stresses. The datum points shown in this plot can be reasonably adjusted through a straight line in agreement with the expected behavior for metals having a dense array of subgrains. It is noteworthy that there is a sizable drop in the dislocation density in copper after MDF processing up to $\varepsilon > 1.8$ (Figure 3.7b). The decrease in ρ originates from the rearrangement of internal dislocations into boundaries having low-energy configurations through dynamic recovery. These structures are initially formed by thick dislocation cells which are gradually replaced by thin subgrain boundaries or even HAGBs. Accordingly, the drop ρ is not followed by a decrease in the flow stress as it occurs simultaneously with an increase in the density of boundaries having either low (5° – 15°) or high ($>15^\circ$) misorientation angles. This ultimately leads to more prominent participation of boundary strengthening in the overall material strength.

It is readily seen in Figure 3.9a,b that neither of the data sets corresponding to different MDF amplitudes appears to follow the expected trends for the relationship of σ_y as a function of either $D^{-1/2}$ or d^{-1} . It is also surprisingly revealed that, for the same accumulated strain, σ_y in Cu specimens processed by MDF_{0.30} (black marks) is lower than the values determined for MDF_{0.075} [23] and MDF_{0.15}, despite their smaller grain and cell/subgrain sizes. Furthermore, Figure 3.9a,b clearly shows that σ_y decreases with increasing ε after eight MDF_{0.15} cycles ($\varepsilon \approx 3.6$) and two MDF_{0.30} cycles ($\varepsilon \approx 1.8$), similarly to the situation observed in MDF_{0.075} for $\varepsilon > 1.8$ [23].

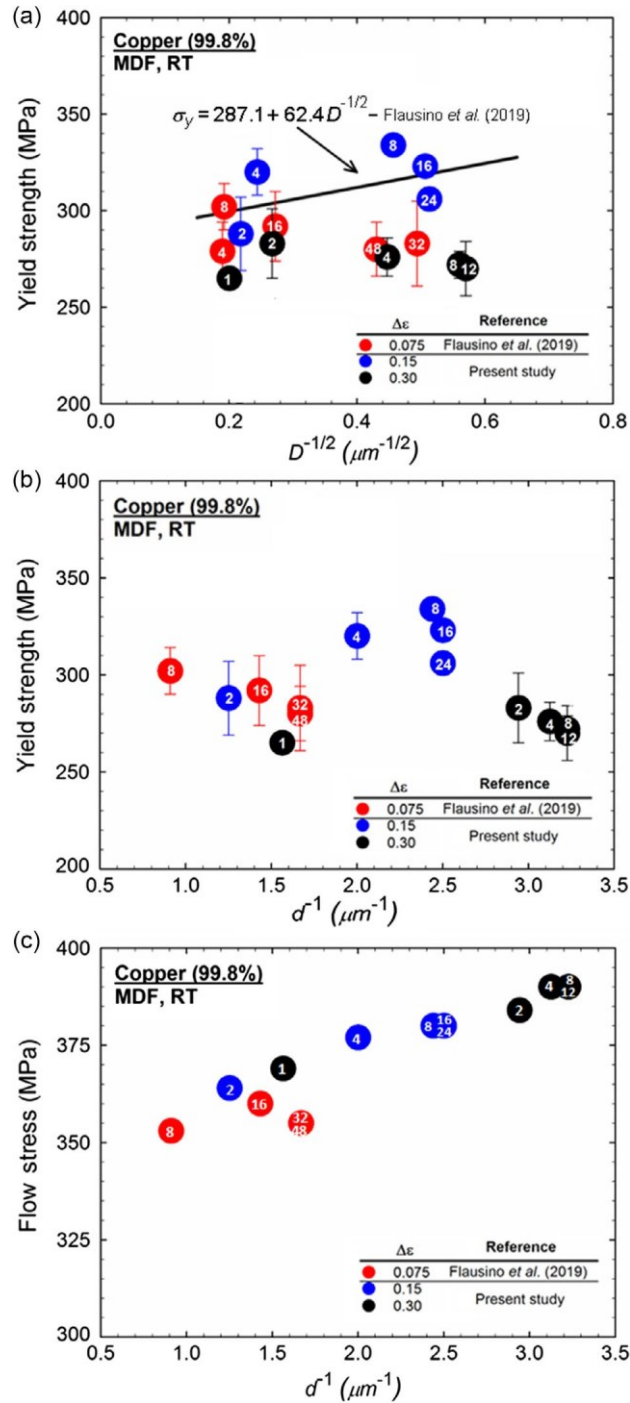


Figure 3.9 - a) Yield strength versus $D^{-1/2}$, b) yield strength versus d^{-1} , and c) saturation flow stress versus d^{-1} for Cu specimens processed through MDF_{0.075} [23], MDF_{0.15}, and MDF_{0.30}. The numbers inside the markers correspond to the number of cycles.

To understand the anomalous values measured for σ_y , it should be remembered that dislocations in MDF, whose movement was blocked at the end of a compression step, can move more easily and eventually even undergo annihilation when the straining direction is changed at the next compression step. In this investigation, the dislocation density was estimated through XRD

immediately after yielding for a Cu specimen processed by 12 MDF_{0.30} cycles and further compressed in a direction orthogonal to the previous compression step. The results revealed that ρ decreases from $1 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ after 12 MDF_{0.30} cycles to $5 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ immediately after yielding for a subsequent compression.

This justifies the behavior observed in Cu specimens processed by MDF where the values of σ_y upon reloading are lower than the flow stress at the end of the previous compression step, similarly to the phenomena known as Bauschinger effect [46]. Wetscher and Pippan [24] reported that an analogous situation was observed in Ni and Armco Fe discs subjected to cyclic HPT; after a change in the deformation direction there was a decrease in the torque in relation to the value observed at the end of the previous torsion step.

The increase of the pre-deformation enhances the Bauschinger effect under orthogonal loading: σ_y on reloading decreases as the pre-strain increases. This may be caused by the higher number and the more frequent interactions of dislocations as ε is raised, which develop a higher “back-stress” assisting dislocation motion [47]. As cyclic straining favors dislocation annihilation in relation to monotonic strain paths, the back-stress, for a given total strain, will be lower under cyclic deformation with low strain amplitudes, thus affecting the Bauschinger effect [48].

Higher strain amplitudes and accumulated strains also favor dislocation annihilation within the UFG structures generated during SPD. As a result, the microstructure of Cu specimens deformed under higher $\Delta\varepsilon$ will exhibit an extended free path for the moving dislocations unlocked due to changes in the strain path [6,34,41]. This is consistent with the TEM observations in copper after MDF processing up to $\varepsilon \approx 10.8$ which revealed the existence of a denser dislocation network inside boundaries created during deformation at lower strain amplitudes. This hypothesis is also supported by recent experiments [49] which showed that “soft regions” with low dislocation densities, such as the interiors of subgrains, exhibit lower yield strength than “hard regions” with higher dislocation densities. Accordingly, the “soft regions” would yield before the “hard regions” upon reverse shearing and thus the higher the amount of “soft regions”, the more prominent is the reduction of σ_y in relation to σ_s .

To summarize the observations concerning the microstructures generated in copper after sufficient straining through MDF, Figure 3.10 shows the main microstructural features observed in Cu specimens deformed by MDF up to $\varepsilon \approx 10.8$ using $\Delta\varepsilon \approx 0.075$ or 0.30. In these

illustrations, HAGBs are colored in blue and LAGBs, including dislocation arrangements/tangles, cells and subgrains, are delineated in red.

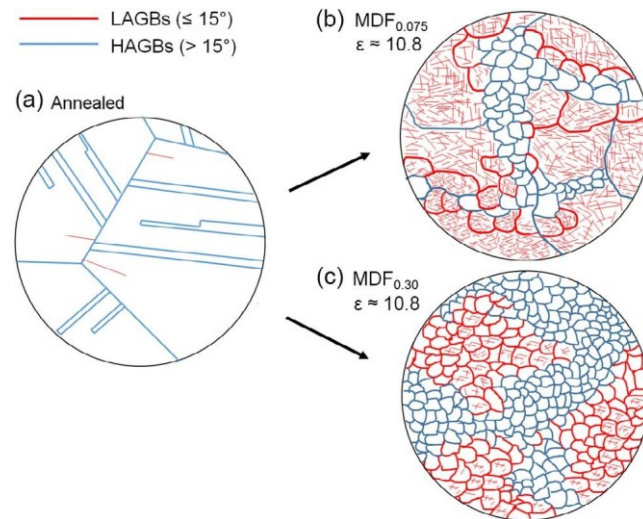


Figure 3.10 - Schematic representations of the microstructures of copper a) after annealing followed by MDF processing up to $\varepsilon \approx 10.8$ with b) $\Delta\varepsilon \approx 0.075$ or c) $\Delta\varepsilon \approx 0.30$.

The annealed metal exhibited several annealing twins within coarse polygonal grains as shown in Figure 3.10a. Processing through $\text{MDF}_{0.075}$ up to $\varepsilon \approx 10.8$ (Figure 3.10b) led to the development of a highly inhomogeneous microstructure composed of regions having refined equiaxed grains having a low density of internal dislocations. These grains were formed next to the original grain boundaries and they coexist with unrefined regions with a high density of LAGBs. By contrast, the material processed by $\text{MDF}_{0.30}$ up to the same strain displays a higher fraction of UFG structures than after $\text{MDF}_{0.075}$, coupled with not fully refined areas having well-defined subgrains and much less dislocation tangles in their interiors (Figure 3.10c). These differences therefore result in a higher mean free path for dislocation motion in copper after $\text{MDF}_{0.30}$, which ultimately leads to a lower yield strength upon orthogonal loading compared with the same material processed through either $\text{MDF}_{0.075}$ or $\text{MDF}_{0.15}$.

3.5 Conclusions

Commercial-purity copper (99.8%) was processed at RT through 2, 4, 8, 16, and 24 MDF cycles using a strain amplitude ($\Delta\varepsilon$) of 0.15 ($\text{MDF}_{0.15}$) and 1, 2, 4, 8, and 12 cycles with $\Delta\varepsilon \approx 0.30$ ($\text{MDF}_{0.30}$), corresponding, in both cases, to total strains (ε) of 0.9, 1.8, 3.6, 7.2, and 10.8. After processing up to $\varepsilon \approx 10.8$ the microstructures of copper were refined down to grain sizes of 3.8

and 3.2 μm for $\text{MDF}_{0.15}$ and $\text{MDF}_{0.30}$, respectively. The flow stress versus accumulated strain curves of copper processed by MDF using different $\Delta\varepsilon$ are very similar and display a typical shape associated with deformation assisted by dynamic recovery. Nevertheless, the saturation stress increases with increasing $\Delta\varepsilon$ due to a more “monotonic” character of straining which permits the accumulation of higher amounts of dislocations and generates more refined grains. Grain refinement through MDF occurs due to a continuous reaction that involves the creation and intersection of MSBs assisted by dynamic recovery. The refinement kinetics is slower for lower values of $\Delta\varepsilon$. This follows from the increased number of strain path changes for the same total strain, which favors dislocation annihilation, produces fewer MSBs, and generates grains with larger sizes. After deformation up to $\varepsilon \approx 10.8$, the microstructures generated through $\text{MDF}_{0.075}$ and $\text{MDF}_{0.15}$ are highly heterogeneous and exhibit high fractions of unrefined areas having a dense network of dislocation tangles. By contrast, $\text{MDF}_{0.30}$ produces more uniform microstructures which display a higher fraction of ultrafine grains with a low density of internal defects. As a consequence, Cu specimens processed by MDF up to higher values of ε using higher strain amplitudes present extended mean free paths for dislocation motion. This leads to more prominent drops in the yield strength upon orthogonal loading in relation to the saturation flow stress at the previous compression step.

3.6 Experimental Section

Commercial-purity copper (99.8%) was obtained as long bars with a square section of 15.8 x 15.8 mm^2 . These were cut in specimens ≈ 100 mm long and thereafter annealed at 873 K for 2 h. The annealed bars were then machined into MDF samples with dimensions along the X, Y, and Z directions of 13.00, 11.19, and 12.06 mm for $\Delta\varepsilon \approx 0.15$ ($\text{MDF}_{0.15}$) and 13.00, 9.63, and 11.19 mm for $\Delta\varepsilon \approx 0.30$ ($\text{MDF}_{0.30}$).

In both cases, the X direction was parallel to the bar length. MDF processing was conducted using a confining die whose cross-section dimensions led to adequate dimensions of the sample after each compression. All compressions started along the direction of the specimen having 13.00 mm and this dimension was reduced down to 11.19 mm for $\text{MDF}_{0.15}$ or 9.63 mm for $\text{MDF}_{0.30}$. The lateral dimensions of the specimens were such that at the end of this first compression one of the lateral dimensions of the cuboids evolved to a length of 13.00 mm, and would thus be the next direction to be compressed. The compression steps followed the

direction sequence X, Z, and Y such that at the end of each cycle the specimens returned to their original dimensions along these axes.

Compressions were carried out at RT using an INSTRON 5582 testing machine under a constant crosshead speed of 0.05 mm s^{-1} . Before processing and after each two cycles the specimens and dies were lubricated with MoS_2 . The use of the confining die eliminated the need of specimen remachining after each compression [50], as the confining walls led to flat specimen faces after each compression. $\text{MDF}_{0.15}$ was performed up to 24 cycles and $\text{MDF}_{0.30}$ up to 12 cycles, achieving, in both cases, $\varepsilon \approx 10.8$. Microstructural analyses were conducted by means of OM, EBSD, TEM, and X-ray diffraction (XRD). The MDF-processed specimens were examined in their midsectional plane parallel to the last forging direction after total strains of 0.9, 1.8, 3.6, 7.2, and 10.8 for all strain amplitudes. These strains are the same previously utilized by the authors when processing copper by MDF using $\Delta\varepsilon \approx 0.075$ ($\text{MDF}_{0.075}$) [23].

Samples for OM were examined in a Union model VERSAMET 3 micro-scope. EBSD scanning was performed using a Quanta FEG 3D FEI microscope equipped with a QUANTAX-EBSD Bruker analysis system; the step size was 80 nm for specimens deformed up to $\varepsilon \approx 0.9$ and 1.8, and 65 nm for the remaining conditions. Misorientation angles (θ) $\geq 15^\circ$ were considered for detection of HAGBs and a minimum cut-off angle of 2° was chosen for identification of LAGBs. The area-weighted grain size (D) was determined based solely on HAGBs.

A TECNAI F20 (FEG) operating at 200 kV was utilized for TEM examinations. The average size of dislocation cells/subgrains (d) was estimated through the linear intercept method using at least five TEM images for each processing condition. XRD analyses used a PANalytical X'Pert Pro diffractometer with $\text{Co K}\alpha 1$ ($\lambda \approx 0.178901 \text{ nm}$) radiation, a scanning angle range of 45° – 115° , and a step size of 0.02° . Dislocation density (ρ) was determined based on the diffractograms and using the Convolutional Multiple Whole Profile (CMWP) software, as described in detail by Ribárik [51]. The instrumental profile was determined through lanthanum hexaboride (LaB_6) powder.

Mechanical properties were determined based on the in situ SS curves. The yield strength ($0.2\% \sigma_y$) for a given compression step was measured in the subsequent compression, performed in a direction orthogonal to the previous loading axis.

3.7 Acknowledgements

The authors wish to express their gratitude to Prof. Luiz Paulo Mendonça Brandão and Dr. Talita Gama de Sousa from Instituto Militar de Engenharia (IME) for the fruitful discussions and valuable support concerning the XRD analyses using CMWP. This study was financed in part by CAPES (Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior —Brasil) Finance Code 001 and CNPq (National Council for Research and Technological Development) Grant 301034/2013-3. The authors acknowledge financial support from project PICT 2017-0427 – ANPCyT (Agencia Nacional de Promoción Científica y Tecnológica - Argentina).

3.8 Conflict of Interest

The authors declare no conflict of interest.

3.9 References

- [1] R. Z. Valiev, R. K. Islamgaliev, I. V. Alexandrov, *Prog. Mater. Sci.* 2000, 45, 103.
- [2] T. G. Langdon, *Acta Mater.* 2013, 61, 7035.
- [3] T. Sakai, A. Belyakov, R. Kaibyshev, H. Miura, J. J. Jonas, *Prog. Mater. Sci.* 2014, 60, 130.
- [4] S. S. S. Kumar, T. Raghu, *J. Mater. Eng. Perform.* 2015, 24, 726.
- [5] S. S. S. Kumar, K. Priyasudha, M. S. Rao, T. Raghu, *Mater. Des.* 2016, 101, 117.
- [6] R. Kapoor, A. Sarkar, R. Yogi, S. K. Shekhawat, I. Samajdar, J. K. Chakravartty, *Mater. Sci. Eng. A* 2013, 560, 404.
- [7] I. Shakhova, Z. Yanushkevich, I. Fedorova, A. Belyakov, R. Kaibyshev, *Mater. Sci. Eng. A* 2014, 606, 380.
- [8] Y. Estrin, A. Vinogradov, *Acta Mater.* 2013, 61, 782.
- [9] C. Kobayashi, T. Sakai, A. Belyakov, H. Miura, *Philos. Mag. Lett.* 2007, 87, 751.
- [10] P. J. Apps, M. Berta, P. B. Prangnell, *Acta Mater.* 2005, 53, 499.
- [11] G. A. Salishchev, N. D. Stepanov, A. V. Kuznetsov, S. V. Zhrebtsov, O. R. Valiakhmetov, A. A. Kuznetsov, S. V. Dobatkin, *Mater. Sci. Forum* 2010, 667–669, 289.
- [12] T. Sakai, H. Miura, X. Yang, *Mater. Sci. Eng. A* 2009, 499, 2.

- [13] A. Belyakov, T. Sakai, H. Miura, K. Tsuzaki, *Philos. Mag.A* 2001, 81, 2629.
- [14] O. Sitdikov, T. Sakai, A. Goloborodko, H. Miura, R. Kaibyshev, *Philos. Mag.* 2005, 85, 1159.
- [15] O. Sitdikov, E. Avtokratova, T. Sakai, K. Tsuzaki, *Metall. Mater. Trans. A* 2013, 44, 1087.
- [16] O. Sitdikov, A. Goloborodko, T. Sakai, H. Miura, R. Kaibyshev, *Mater. Sci. Forum* 2003, 426–432, 381.
- [17] J. Huang, Z. Xu, *Mater. Lett.* 2006, 60, 1854.
- [18] T. Sakai, A. Belyakov, H. Miura, *Metall. Mater. Trans. A* 2008, 39A, 2006.
- [19] A. Belyakov, W. Gao, H. Miura, T. Sakai, *Metall. Mater. Trans. A* 1998, 29, 2957.
- [20] P. E. Armstrong, J. E. Hockett, O. D. Sherby, *J. Mech. Phys. Solids* 1982, 30, 37.
- [21] X. Yang, Y. Okabe, H. Miura, T. Sakai, *J. Mater. Sci.* 2012, 47, 2823.
- [22] S. S. S. Kumar, T. Raghu, *Int. J. Mater. Res.* 2015, 106, 1230.
- [23] P. C. A. Flausino, M. E. L. Nassif, F. C. Bubani, P. H. R. Pereira, M. T. P. Aguilar, P. R. Cetlin, *Mater. Sci. Eng. A* 2019, 756, 474.
- [24] F. Wetscher, R. Pippan, *Philos. Mag.* 2006, 86, 5867.
- [25] A. Kundu, R. Kapoor, R. Tewari, J. K. Chakravartty, *Scr. Mater.* 2008, 58, 235.
- [26] A. K. Parimi, P. S. Robi, S. K. Dwivedy, *Mater. Des.* 2011, 32, 1948.
- [27] D. C. C. Magalhães, A. L. Pratti, A. M. Kliauga, J. B. Rubert, M. Ferrante, V. L. Sordi, *J. Mater. Res. Technol.* 2018, 358, 1.
- [28] A. Takayama, X. Yang, H. Miura, T. Sakai, *Mater. Sci. Eng. A* 2008, 478, 221.
- [29] H. Miura, M. Kobayashi, T. Aoba, H. Aoyama, T. Benjanarasuth, *Mater. Sci. Eng. A* 2018, 731, 603.
- [30] L. F. Coffin, J. F. Tavernelli, *Trans. Metall. Soc. AIME* 1959, 215, 794.
- [31] C. E. Feltner, C. Laird, *Acta Metall.* 1967, 15, 1621.
- [32] B. Bay, N. Hansen, D. A. Hughes, D. Kuhlmann-Wilsdorf, *Acta Metall. Mater.* 1992, 40, 205.
- [33] I. V. Alexandrov, R. Z. Valiev, *Scr. Mater.* 2001, 44, 1605.
- [34] F. Dalla Torre, R. Lapovok, J. Sandlin, P. F. Thomson, C. H. J. Davies, E. V. Pereloma, *Acta Mater.* 2004, 52, 4819.

- [35] C. W. Su, L. Lu, M. O. Lai, *Mater. Sci. Eng. A* 2006, 434, 227.
- [36] H. Petryk, S. Stupkiewicz, *Mater. Sci. Eng. A* 2007, 444, 214.
- [37] E. O. Hall, *Proc. Phys. Soc. B* 1951, 64, 747.
- [38] N. J. Petch, *J. Iron Steel Inst* 1953, 174, 25.
- [39] J. Gubicza, N. Q. Chinh, G. Krállics, I. Schiller, T. Ungár, *Curr. Appl. Phys.* 2006, 6, 194.
- [40] F. J. Humphreys, M. Hatherly, *Recrystallization and Related Annealing Phenomena*, 2nd ed., Pergamon Press, Oxford, UK 2004.
- [41] M. Y. Alawadhi, S. Sabbaghianrad, Y. Huang, T. G. Langdon, *J. Mater. Res. Technol.* 2017, 6, 369.
- [42] J. Xu, J. Li, D. Shan, B. Guo, *Mater. Sci. Eng. A* 2016, 664, 114.
- [43] C. Xu, Q. Wang, M. Zheng, J. Li, M. Huang, Q. Jia, J. Zhu, L. Kunz, M. Buksa, *Mater. Sci. Eng. A* 2008, 475, 249.
- [44] O. F. Higuera-Cobos, J. M. Cabrera, *Mater. Sci. Eng. A* 2013, 571, 103.
- [45] Y. L. Wang, R. Lapovok, J. T. Wang, Y. S. Qi, Y. Estrin, *Mater. Sci. Eng. A* 2015, 628, 21.
- [46] M. Haouaoui, I. Karaman, H. J. Maier, *Acta Mater.* 2006, 54, 5477.
- [47] J. K. Mahato, P. S. De, A. Sarkar, A. Kundu, P. C. Chakraborti, *Procedia Eng.* 2014, 74, 368.
- [48] J. K. Mahato, P. S. De, A. Sarkar, A. Kundu, P. C. Chakraborti, *Int. J. Fatigue* 2016, 83, 42.
- [49] L. E. Levine, M. R. Stoudt, A. Creuziger, T. Q. Phan, R. Xu, M. E. Kassner, *J. Mater. Sci.* 2019, 54, 6579.
- [50] P. M. A. Stemler, P. C. A. Flausino, P. H. R. Pereira, C. G. de Faria, N. G. S. Almeida, M. T. P. Aguilar, P. R. Cetlin, *Mater. Lett.* 2019, 237, 84.
- [51] G. Ribárik, *Modeling of Diffraction Patterns Based on Microstructural Properties*, Eötvös Loránd University, Budapest 2008.

CAPÍTULO 4 – CONSIDERAÇÕES FINAIS

4.1 Conclusões Gerais

O refino de grão induzido pelo processo de deformação no MDF ocorre a partir de uma reação contínua em nível micro e subestrutural, sendo significativamente influenciado pela criação e interseção das MSBs e assistido pelo processo de recuperação dinâmica.

O aumento da amplitude de deformação no MDF aumenta o caráter monotônico do processo, com maior geração e acúmulo de deslocações, formação de maior número e interseção de MSBs e cinética de refino de grão (em termos de deformação total acumulada) mais acelerada em comparação ao MDF de menor amplitude, resultando em menor tamanho médio de grão e de célula-subgrão.

Com a redução de $\Delta\varepsilon$ no MDF, um maior número de alterações no caminho de deformação será necessário para um dado valor de ε , acentuando o processo de recuperação dinâmica. Isto favorece a aniquilação de deslocações, resulta em formação de menor número de MSBs e cinética mais lenta de refino de grão. Em resposta, a microestrutura é altamente heterogênea com elevada fração de regiões não refinadas com densa rede de emaranhado de deslocações mesmo para $\varepsilon \approx 10.8$ no MDF_{0,075} e MDF_{0,15}. Por outro lado, o MDF_{0,30} produz maior fração de grãos submicrométricos e estrutura mais uniforme, com menor densidade de deslocações livres.

A deformação acumulada também exerce influência no refino de grão, que ocorre de maneira progressiva e heterogênea; a fração relativa das subestruturas de LAGBs e HAGBs mudam continuamente com o aumento de ε resultando em aumento gradual da fração de grãos submicrométricos e refino de grão no MDF.

A forma curva de fluxo acumulativa resultante do processamento do cobre 99,8% por MDF de amplitude de deformação 0,075, 0,15 e 0,30 à temperatura ambiente até $\varepsilon \approx 10.8$ é similar àquela verificada em processos assistidos por recuperação dinâmica, sendo o encruamento e a tensão de saturação tanto maiores quanto maior $\Delta\varepsilon$. Por outro lado, o limite de escoamento (σ_y), medido a 0.2% em direção ortogonal àquela da última compressão, é menor que a tensão de saturação do passe imediatamente anterior, comportamento análogo ao “efeito Bauschinger”. Para um mesmo valor de ε , devido à configuração microestrutural com maior caminho livre para

movimentação das deslocações, o σ_y verificado para o MDF de $\Delta\varepsilon \approx 0,30$ é menor que o verificado para $\Delta\varepsilon \approx 0,15$ e $0,075$.

4.2 Sugestões para Trabalhos Futuros

Realizar o processamento do cobre por MDF de maiores amplitudes de deformação para avaliar a evolução microestrutural, comportamento mecânico e a cinética de refino de grão.

Realizar o processamento do cobre por ECAP de amplitude de deformação semelhante à do MDF, para avaliar a influência do caminho de deformação na evolução microestrutural e propriedades mecânicas.

Avaliar a influência da amplitude de deformação na estabilidade térmica de metais processados por MDF.

Processar por MDF, de baixa, média e alta amplitude de deformação, metal de mais baixa energia de falha de empilhamento para avaliar a influência deste parâmetro na evolução microestrutural e comportamento mecânico resultantes do MDF.