Fe-6.2%Si 焼結体の圧延集合組織と磁気特性†

楨田 顕 山下 治

住友特殊金属株式会社研究開発部

J. Japan Inst. Metals, Vol. 63, No. 9 (1999), pp. 1121-1124
Papers from JIM Spring Meeting (1999)

Cold-Rolled Texture and Magnetic Properties of Fe-6.2%Si Sintered Material

Ken Makita and Osamu Yamashita

Research & Development Department, Sumitomo Special Metals Co., Ltd., Osaka 618-0013

Fe-6.2%Si sintered body with an average grain size of 50 μm has been synthesized by a powder metallurgy method. Mixture of carbonyl iron powder and the jet-milled powder of Fe-50%Si alloy ingot was spray-dried using polyvinyl alcohol as a binder. Slabs with a thickness of 1 mm were obtained by sintering the green compacts at 1160°C for 5 h under vacuum. These slabs were successfully cold-rolled to sheets with a thickness of 0.1 mm at room temperature without being annealed. The X-ray pole figures of cold-rolled sheets with reduction rate more than 90% revealed (100)[011] texture, while the recrystallized texture after annealing at 1100°C was (111)[112]. The magnetic properties of stamped ring after annealing were μ_m : 10500, B_g : 1.25 T, B_r : 1.11 T, H_c : 30 A/m, respectively. The extreme ductility of 1 mm thick slabs may be due to both reduced grain size of the sintered body and the adequate balance between pressure stress and tensile stress during cold-rolling.

(Received April 26, 1999; In Final Form June 14, 1999)

Keywords: silicon steel sheets, powder metallurgy, X-ray pole figure, rolled texture, soft magnetic properties

I. はじめに

けい素鋼板はトランスやモータのヨーク材として欠くことのできない材料である。近年、省エネルギーの観点から、より損失の少ない軟磁性材料への要求が高まっている。Fe-6.5%Si 材は磁歪が少なく、低損失の軟磁性材として古くから知られていたが⁽¹⁾、脆性のために薄板に圧延することができず、長らく実用化がはばまれていた。Narita らは、この合金にニッケルやマンガンを添加して結晶粒径を微細化することにより冷間圧延が可能になることを示した⁽²⁾。Tsuya らは、Fe-6.5%Si 組成の超急冷薄帯が優れた軟磁気特性を持つことを示した⁽³⁾。また、最近 NKK のグループが低 Si 鋼の薄板にけい素を後から拡散させるプロセスにより Fe-6.5%Si 薄板材の工業生産にはじめて成功した⁽⁴⁾。一方、Fe-6.5%Si 材に低温強圧下圧延を施して、板厚方向の粒界間隔が 50 μm 程度の層状組織にすると、冷間圧延が可能となることが報告されている⁽⁵⁾。

我々は、粉末冶金法によって結晶粒径が 100 μm 以下の焼結体を作製すれば、比較的容易に塑性変形が可能になるのではないかと考え、Fe-6.5%Si 焼結体の作製を試みた結果、

得られた試料が特定の条件下で冷間圧延できることを見出したので報告する。

II. 実験方法

出発原料として、市販のカルボニル鉄粉(平均粒径 5.0 μm)と、高周波溶解で作製した Fe-50%Si 合金を窒素ガス中でジェットミル粉碎したもの(平均粒径 2.8 μm)を、Si の量が 6.5%になるように混合して用いた。この混合粉に、バインダーとしてポリビニルアルコールの水溶液を添加し、さらに水を加えてよく混合した後、スプレードライヤーを用いて窒素雰囲気中、100°Cで噴霧乾燥を行い、平均の二次粒子径が 50 μm の造粒粉を得た⁽⁶⁾。造粒粉中のポリビニルアルコールの含有量は 0.5%とした。つぎに、得られた造粒粉を一辺が 40 mm の四角形のダイスに給粉し、上下方向に圧縮成形した後、成形体を真空中、500°Cで 2 h 脱バインダーし、引き続き真空中、1160°Cで 5 h 焼結を行い、厚みが 1~10 mm の焼結体スラブを得た。また、同じ手法で、複雑形状品の成形、焼結も試みた。

スラブの冷間圧延は、ロール径が $\phi 70$ mm の二段圧延機で行った後、引き続き焼鈍なしに、ワークロール径が $\phi 25$ mm の 4 段圧延機で行った。圧延後の試料から、打ち抜き機で $\phi 10$ mm $\times$ $\phi 6$ mm のリング試料を打ち抜き、さらに真

† 1999年3月30日本金属学会春期大会において発表

空中, 1100°Cで3 hの焼鈍を行った後, 磁気特性を測定した. 圧延集合組織の観察は, CuをX線源としたX線極点図の測定により行った.

Ⅲ. 実験結果と考察

焼結後の試料は, その厚みにかかわらず緻密で, 形状は平坦であった. Fig. 1に試料の断面の光学顕微鏡写真を示す. 平均の結晶粒径は約50 μm であった. 焼結試料の組成分析値はSi 6.2%, O 0.06%, C 0.01%, 残部Feであった. また, 焼結試料中の各元素の分布を電子線マイクロアナライザーで観察した結果, 粒界部分にSiとOの偏析が見られたものの, 各結晶粒の内部ではSiが均一に分布していた. 磁気天秤で測定した焼結試料のキュリー温度は696°Cで, 溶製法で得られたSi濃度6.2%のFe-Si合金のキュリー温度の文献値⁽¹⁾とよく一致していた. これらの結果から, 焼結試料に含まれるSiのほとんどは主相中に均一に固溶しているものと考えられる.

ロール径 $\phi 70$ mmの二段圧延機で厚さが1 mm以下の焼結体スラブの冷間圧延を試みた結果, ワレを生ずることなく, 10回の圧延で厚さ0.3 mmまで圧延することができた. さらに, ワークロール径 $\phi 25$ mmの4段圧延機により厚さ0.1 mmまで圧延できた. 一方, 厚さが1 mm以上の焼結体スラブでは, 圧延途中で試料の圧延方向に垂直な方向に必ずワレが生じ, 圧延することができなかった.

Fig. 2に, 厚さ1 mmの焼結体スラブを冷間圧延したときの圧下率の違いによる試料表面の(110)X線極点図の変化を示す. 圧下率56.2%では(111)[112]の集合組織が見られ, さらに圧延すると圧下率90%以上では集合組織が(100)[011]に変化することがわかる. また, 圧下率93.3%の圧延試料を1100°Cで焼鈍し, その再結晶集合組織を調べた結果, 再び(111)[112]にもどることがわかった.

ところで, ここで観察された集合組織は, 例えば軟鋼やFe-3%Si材⁽⁷⁾などで報告されているものと類似しており, それ以外の特徴的な集合組織は見られない. したがって, 本

Fig. 1 Typical photograph showing grain configuration of Fe-6.2%Si sintered material before cold-rolling.

研究で得られた焼結体スラブの塑性変形は, 溶製法でつくられたけい素鋼と同様の変形機構(すべり面, すべり系など)で起こっているものと推定される. そこで, 本研究でFe-6.2%Si材が冷間圧延できた理由について, 圧延理論からの考察を試みた.

Fig. 3に, 引張り試験片の形状に加工した成形体を焼結して得られた厚さ1 mmの焼結体試料の真応力-真歪み曲線を示す. 引張り強さは700 MPa, 塑性変形域の変形抵抗 k は 500 ± 200 MPaであることがわかる. また, 結晶粒径が微細化された影響から降伏点以上の伸びが大きく, ねばい性質が現れている.

つぎに, ロール径 $\phi 70$ mm, 板厚差0.05 mmの条件下で, 摩擦係数を0.1, 降伏応力を500 MPaと仮定して, ロール圧延に関するKarmanの微分方程式のNadaiの解法により中立点付近での圧延方向の引張り応力 σ_x と圧下方向の圧縮応力 σ_y を初期板厚 h_2 をパラメータとして計算した. 計算結果をFig. 4に示す. 圧延応力は初期板厚が厚いほど低下する傾向にあるが, 特に初期板厚が1 mmを越えると引張り応力 σ_x が塑性変形に要する変形抵抗 k の最小値よりも低くなる. このとき, σ_x と σ_y のふたつの圧延応力のバランスが崩れ, ワレが生じるものと考えられる. すなわち, 本研究にお

Fig. 2 (110) pole figures of cold-rolled Fe-6.2%Si sheets.

Fig. 3 Stress-strain curve of Fe-6.2%Si sintered material.

Fig. 4 Calculated stress under cold-rolling as a function of initial thickness. σ_x and σ_y are the tensile stress along the rolling direction and the pressure stress along the vertical direction, respectively.

いて冷間圧延が可能となった理由は、結晶粒の微細化により延性が付与されたためと、2方向の圧延応力のバランスがとれた状態で塑性変形応力の範囲内で圧延が行われたためと推定される。

厚さ 0.1 mm に圧延された試料は、450 以上のビッカース硬度を有し、容易に打ち抜き加工することができる。打ち抜き後、焼鈍した試料の結晶粒径は、圧延前と同等の 50 μm であった。得られたリング形状試料の磁気特性を、密度、比抵抗の値とともに Table 1 に示す。また、比較のために、焼結後の試料の特性も合わせて示す。本研究の Fe-6.2%Si 焼結試料、および圧延試料の比抵抗は $106 \times 10^{-8} \Omega\text{m}$ で、同じ組成の溶製材での測定値 $72 \times 10^{-8} \Omega\text{m}$ に比べてやや高い。

Table 1 Density, electrical resistivity and magnetic properties of cold-rolled or sintered Fe-6.2%Si material.

	Cold-rolled	Sintered
Density (Mg/m^3)	7.49	7.49
Electrical resistivity (Ωm)	106×10^{-8}	106×10^{-8}
DC magnetic properties		
μ_m	10500	23600
B_8 (T)	1.25	1.29
B_r (T)	1.11	1.09
H_c (A/m)	30	16
Core loss*		
P_c (W/kg)	49	—

* $B_m = 1 \text{ T}$, 1 kHz

Fig. 5 An example of powder metallurgical class IV parts of Fe-6.2%Si sintered material.

これは、焼結体の結晶粒界に存在する Si の酸化物が電気抵抗を高めるはたらきをしているためと考えられる。また、磁気特性については、圧延材の保磁力は焼結材の約 2 倍、同じく最大透磁率は約半分となった。これは、焼結体試料に比べて、冷間圧延・焼鈍後の試料中に磁壁のピンニングサイトとなる欠陥が多く残存しているためと推測される。また、鉄損の値は、拡散法による Fe-6.5%Si 材の文献値⁽⁵⁾と比べて約二倍の大きさがある。これは、結晶粒径、および Si の濃度の違いによるものと思われる。

以上に述べたように、粉末冶金法を用いれば添加元素によらずとも結晶粒径の微細化によって Fe-6.2%Si 材の塑性変形能が増し、冷間圧延が可能になることがわかった。一方、本研究で用いたスプレー造粒粉は流動性が優れているため、粉末冶金法の特徴を生かして機械加工では製造の困難な複雑形状品を容易に成形することができる。Fig. 5 は、多段プレス成形機によるスプレー造粒粉の成形により作製した水準 IV⁽⁸⁾のツバ付き形状をした Fe-6.2%Si 焼結体の例を示す写真である。

IV. ま と め

本研究では、脆性のために冷間圧延が困難な Fe-6.5%Si

材の粉末冶金法による作製を試み、結晶粒径を 50 μm まで微細化して延性を付与することにより、1 mm 以下の厚みの試料の冷間圧延が可能となることを示した。つぎに、焼結体試料の圧延集合組織の観察結果から、この圧延が特別な変形機構によるものではないこと、また、試料厚みの制限はロール圧延理論の幾何学的な条件から説明できることを示した。さらに、粉末冶金法の適用により、複雑な形状と優れた軟磁気特性をあわせ持つバルク材をも作製できることを示した。

このように、粉末冶金法は、優れた軟磁気特性を有する Fe-6.5%Si 材に冷間圧延性や形状自由度などの付加価値を付与するのに有効な手段のひとつであると考えられる。

文 献

- (1) R. M. Bozorth: *Ferromagnetism*, D. Van Nostrand Company, Inc., New York, (1951), pp. 67-101.
- (2) K. Narita and M. Enokizono: IEEE Trans. Magn., **MAG-14**(1978), 258-262.
- (3) N. Tsuya and K. I. Arai: J. Appl. Phys., **50**(1979), 1658-1663.
- (4) 例えば, T. Yamaji, M. Abe, Y. Tanaka, K. Okada and T. Hiratani: J. Magn. Magn. Mat., **133**(1994), 187-189, など.
- (5) 日裏 昭, 高田芳一, 阿部正広, 田中 靖: 電気学会マグネティックス研究会資料, **MAG-92-38**(1992), 115-121.
- (6) 榎田 顕, 山下 治, 中西昭男: 日本応用磁気学会誌, **22**(1998), 365-368.
- (7) J. G. Na, C. H. Park, J. Kim, N. H. Heo, S. R. Lee, C. S. Lee and J. S. Woo: J. Appl. Phys., **83**(1998), 6483-6485.
- (8) R. Burns: *Metals Handbook* Ninth Edition, Vol. 7, American Society for Metals, Ohio, (1984), p. 332.