

磁気特性と破壊特性の両立した電磁鋼板用 Fe-Si-Al 合金の開発

研究代表者 香川大学 工学部 材料創造工学科 水口 隆

1. はじめに

電磁鋼では、機械的特性(高強度、高靱性および良加工性)と磁気特性(高透磁率、低鉄損および高飽和磁束密度)の両立が必要とされ¹⁾、Fe の電気抵抗を高める効果を有する Si を数%程度添加した Fe-Si 合金が用いられている。さらなる磁気特性向上のためには、3.5%以上の Si を含有した高 Si 鋼の開発が求められているが、脆化による難加工性が問題となっており²⁾、高 Si 鋼の脆化改善が必要である。実用電磁鋼の多くは Al を含有する。これは、Si 鋼の磁気特性³⁻⁸⁾と延性⁹⁾の向上を目的とする。このことから、高 Si 鋼の脆化を改善し、機械的特性と磁気特性の両立する電磁鋼板作製のためには、Fe-高 Si 合金への Al 含有は有効な手段と考えられ、種々の組成を有する Fe-Si-Al 合金の変形・破壊挙動と磁気特性を系統的に解明する必要がある。本研究では、種々の Al 含有量を有する多結晶 Fe-Si-Al 合金を対象に広範囲のひずみ速度で室温引張試験を実施し、ひずみ速度変化による破壊形態遷移と直流磁気特性におよぼす Al 含有量の影響を解明した。

本研究では、機械特性、特に靱性の評価方法として、ひずみ速度変化による破壊形態遷移現象を利用した。以下にその概要を示す。Fe-Si 合金などの体心立方構造を有する鉄鋼材料では、脆性 - 延性遷移温度が存在し、この温度を境にして脆性破壊から延性破壊への変化が起こる¹⁰⁻¹²⁾。この遷移温度の変形速度依存性から実験的に求まる活性化エネルギーの値は、遷移温度付近における転位移動の活性化エネルギーの値とほぼ等しくなることが示されており^{13, 14)}、脆性 - 延性遷移挙動は転位の熱活性化過程によって支配されると考えられている¹⁵⁾。また、おおむねひずみ速度 $10^{-4} \sim 10^3/s$ の範囲内では塑性変形を単一の熱活性化過程¹⁶⁻¹⁸⁾で考えることができ、変形挙動に与える温度変化とひずみ速度変化は等価であると考えられている¹⁹⁻²¹⁾。これらのことから、上記のひずみ速度の範囲内では、ひずみ速度変化によっても脆性 - 延性遷移挙動と同様の破壊形態の変化が再現できると考えられる。Arronson ら²²⁾により、種々の Si 添加量を有する多結晶 Fe-Si 合金を対象とした広範囲のひずみ速度による引張試験結果が報告されているが、破面形態は観察しておらず、ひずみ速度変化による破壊形態の遷移の存在については解明されていなかった。近年、Mizuguchi ら²³⁾は、多結晶 Fe-4wt%Si に対し、ひずみ速度上昇に伴う延性破壊から脆性破壊への破壊形態の遷移を明らかにし、靱性の簡便な評価方法を確立した。本研究においてもこのひずみ速度変化による破壊形態遷移を利用した。

2. 実験方法

2.1 合金作製

市販の純度 99.5%の電解鉄、99%のシリコン、および 99.99%のアルミニウムを原料として用い、種々の組成を有する Fe-Si-Al 合金を溶製した。無方向性電磁鋼板では、高磁束密度の観点から、Si や Al の含有量は合計で 4wt%程度に制限されている²⁴⁾。そのため、本研究では、Si と Al の合計が 4wt%となるように Si と Al の組成を変化させた。Table 1 には、本研究で作製した Fe-Si-Al 合金の化学組成を重量百分率と原子組成百分率で示す。また、本報告書中では既報²³⁾の 4Si 合金の結果を示すことから、4Si 合金の組成を併せてこの表に記載した。この表に示す化学組成となるよう原料を秤量し、ムライト製るつぼ中で高周波を用いて Fe-Si-Al 合金を溶製した。溶製は、 8.0×10^2 Pa での Ar 雰囲気中で実施した。

Table 1 本研究で作製した Fe-Si-Al 合金の化学組成と焼鈍条件

Alloy	Chemical compositions in wt%			Chemical compositions in at%			Annealing condition	
	Si (wt%)	Al (wt%)	Fe (wt%)	Si (at%)	Al (at%)	Fe (at%)	temperature (K)	time (h)
4Si	4.0	0.0	Bal.	7.7	0.0	Bal.	1073	2
3Si1Al	3.0	1.0	Bal.	5.8	2.1	Bal.		
2Si2Al	2.0	2.0	Bal.	4.0	4.1	Bal.		
1Si3Al	1.0	3.0	Bal.	2.0	6.1	Bal.		
4Al	0.0	4.0	Bal.	0.0	7.9	Bal.		1

2.2 引張試験と組織観察

前節で溶製したインゴットを高さ 15 mm に切断後、1073K での多パス温間圧延を行い、厚さ 3 mm とした。その後、冷間圧延を行い、厚さを 1.2 mm とした。さらに、 1.0×10^5 Pa(1 atm)での Ar 雰囲気での焼鈍により結晶粒径約 100 μm の完全再結晶組織を有する圧延板焼鈍材を得た。焼鈍条件を Table 1 に併せて示す。この結晶粒径は、既報の無方向性電磁鋼板の鉄損に及ぼす結晶粒径依存性のデータ²⁵⁾に基づいた最適値である。上述の圧延板焼鈍材より、ワイヤ放電加工機を用いて平板小型引張試験片を圧延方向と引張軸方向が平行となるように切り出し、引張試験に供した。引張試験片平行部の大きさは、厚さ 1.1 mm、長さ 6.0 mm、幅 2.0 mm である。引張試験は、検力ブロック式高速材料試験機²⁶⁾を用いて、初期ひずみ速度 10^{-3}s^{-1} から 10^3s^{-1} (ハンマー速度 0.006 mms^{-1} から $6,000 \text{ mms}^{-1}$) にて、室温 (293K) で実施した。引張試験片の破断面観察を SEM(FEI company 製 Quanta3D 200i)を用いて実施した。観察の際、SEM の加速電圧は、15 kV に設定した。

2.3 直流磁気特性試験

各 Fe-Si-Al 合金に対して、単板磁気特性試験方法による直流磁気特性試験に供した。完全再結晶組織を有する圧延板より、長さ 150 mm、幅 25 mm、厚さ 1.4 mm の試験片を切り出し、磁気特性に供した。磁気測定は、JFE テクノリサーチ株式会社所有の直流磁気特性試験装置を用い、最大印加磁界を 10 kAm^{-1} とし、室温で実施した。

3. 実験結果と考察

3.1 引張試験により得られた応力-ひずみ曲線

Fig. 1 は、各 Fe-Si-Al 合金に対し、初期ひずみ速度 10^{-3} s^{-1} から 10^3 s^{-1} での室温引張

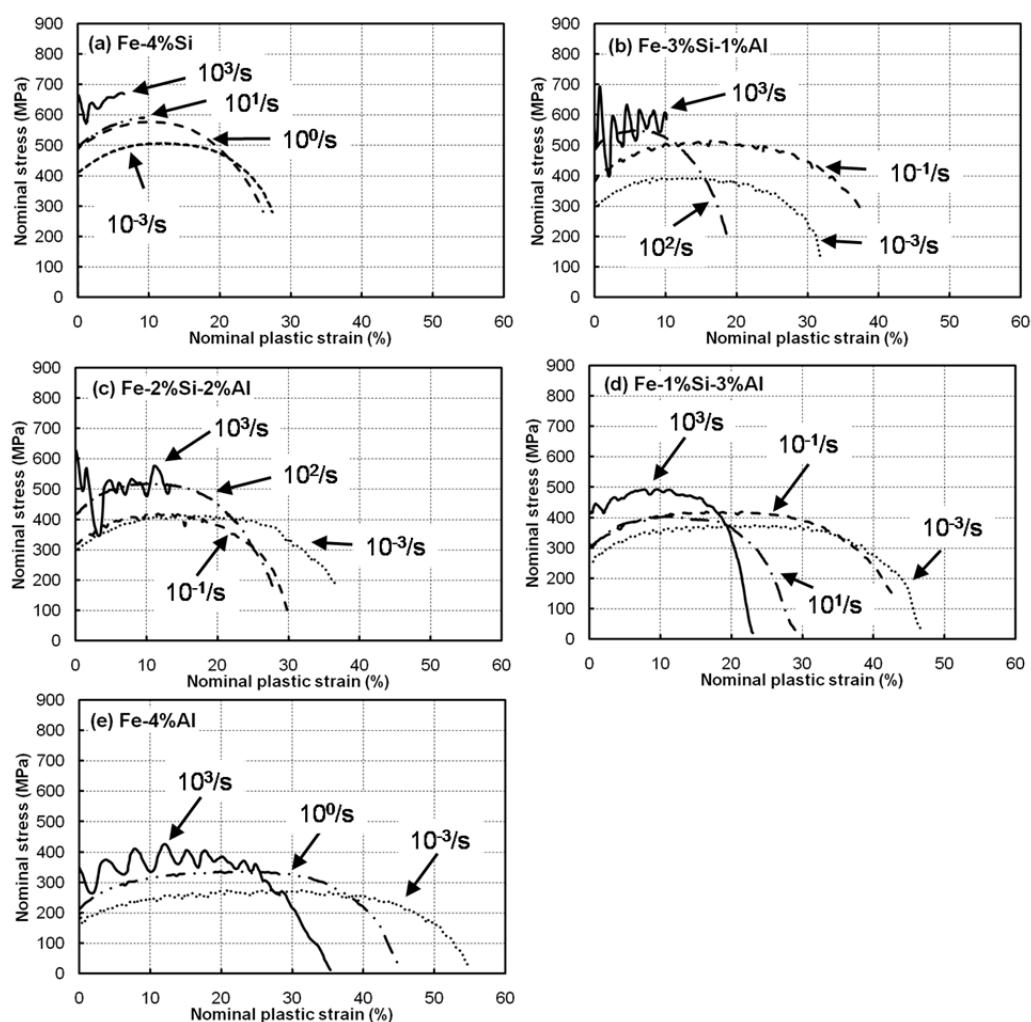


Fig. 1 各 Fe-Si-Al 合金に対し、初期ひずみ速度 10^{-3} s^{-1} から 10^3 s^{-1} での室温引張試験から得られた公称応力-公称塑性ひずみ曲線

試験から得られた公称応力-公称塑性ひずみ曲線である。全ての Fe-Si-Al 合金の 10^3 s^{-1} で確認された応力振動は、ハンマーの衝撃によって試験片内に生じた弾性波の干渉によるものである²⁶⁾。4Si 合金では、 10^0 s^{-1} 以下のひずみ速度領域では降伏後最大応力に達するまでの一様伸びと最大応力到達後に至るまでの局部伸びの両方を示したのに対し、 10^1 s^{-1} の高ひずみ速度では加工硬化途中で破断し局部伸びを示さなかった。このように、 10^0 s^{-1} と 10^1 s^{-1} を境にして局部伸びの有無が別れた。これと同様のひずみ速度による局部伸びの有無の変化は、3Si1Al 合金と 2Si2Al 合金でも確認された。しかし、これらの合金では、局部伸びの有無が遷移するひずみ速度は 10^2 s^{-1} と 10^3 s^{-1} の間であった。一方、1Si3Al 合金と 4Al 合金では、本研究で実施したすべてのひずみ速度において一様伸びと局部伸びの両方を示した。全ての Fe-Si-Al 合金において、引張応力と 0.2%耐力は、ひずみ速度の増加に伴い上昇する傾向を示した。また、同じひずみ速度で比較すると、これらは、Al 含有量の増加に伴い減少した。なお、Table 1 に示すデータを用いて 1 原子あたりの引張応力や 0.2%耐力の組成とひずみ速度依存性を検討したが、上述と同様の傾向であった。一方、全ての合金において、ひずみ速度の増加に伴い延性は低下する傾向を示した。高速変形の場合は変形中の発熱が無視できない。Tsuchida らは、ひずみ 20 %でのフェライト-セメンタイトおよびフェライト-パーライト 2 相鋼の高速変形中の温度上昇は、それぞれ約 60 K と 35 K であると報告している²⁷⁾。本研究で用いた合金はいずれもフェライト単相であること、また、ひずみ量が異なることから、Tsuchida らの結果を本研究結果に適用することはできないが、変形中での温度上昇は数十度程度であると予測される。このため、引張試験片の温度上昇に伴う応力低下が発生している可能性がある。公称応力-公称ひずみ曲線に与えるひずみ速度の影響を正確に議論するためには、この応力低下を補正した公称応力-公称ひずみ曲線を求める必要があるが、本研究ではこの補正は行っていない。

Fig. 2 は、各 Fe-Si-Al 合金における破断伸びのひずみ速度依存性を示した図である。全ての合金において、破断伸びはひずみ速度の増加に従って低下する傾向を示した。Al 含有量 2 %以下の合金では、図中の矢印に示すように、特定のひずみ速度を境にして破断伸びが急激に減少した。この破断伸びの急激な減少は、Fig. 2 中に示した応力-ひずみ曲線での局部伸びの消滅に対応している。この減少は、4Si 合金では 10^0 s^{-1} から 10^1 s^{-1} の間、3Si1Al 合金と 2Si2Al 合金では 10^2 s^{-1} から 10^3 s^{-1} の間で起こった。一方、Al 含有量が多い 1Si3Al 合金と 4Al 合金では、本研究で実施したひずみ速度の範囲内では、このような破断伸びの急激な低下は存在しなかった。これは、本実験で実施したすべてのひずみ速度において局部伸びが観察されたことと対応する。このことから、Al 含有量の増加に従って、破断伸びの急激な低下を引き起こすひずみ速度は高ひずみ速度側に移行した。

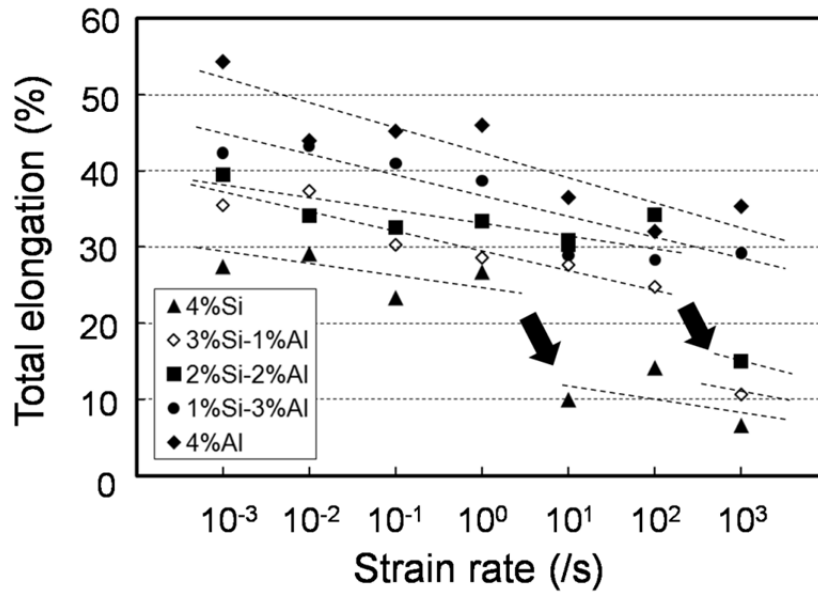


Fig. 2 各 Fe-Si-Al 合金における破断伸びのひずみ速度依存性

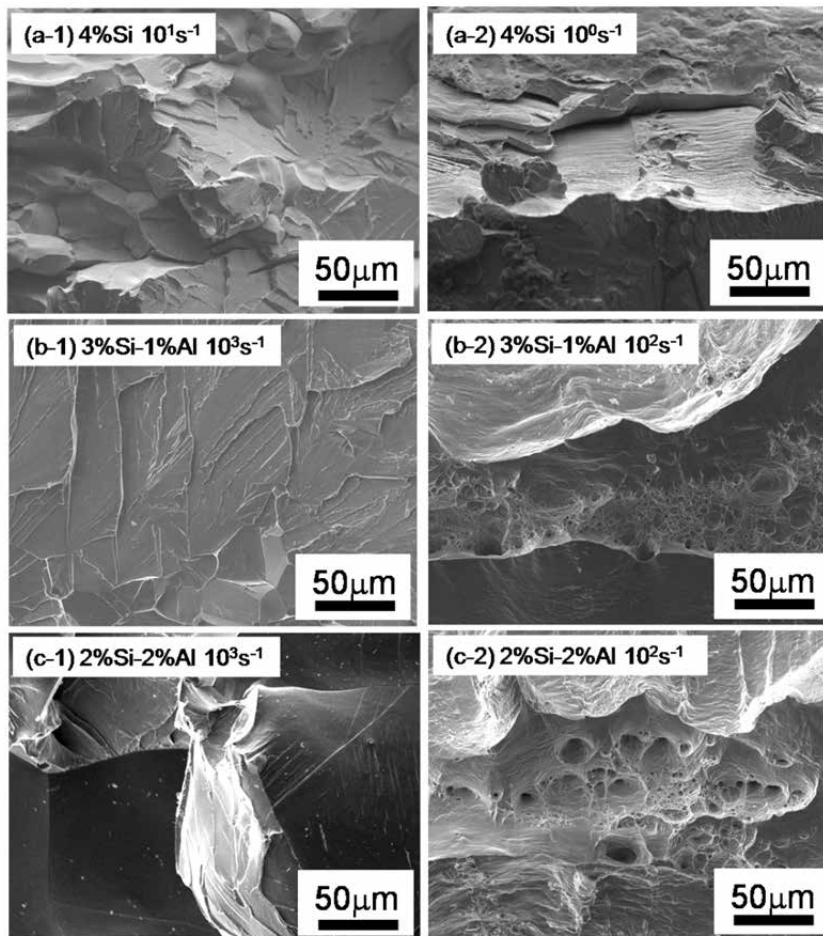


Fig. 3 4Si 合金(a), 3Si1Al 合金(b)および 2Si2Al 合金(c)の各種ひずみ速度における引張試験破断後の破面 SEM 像

3.2 SEMによる破断面観察結果

Fig. 3は、4Si合金(a)、3Si1Al合金(b)および2Si2Al合金(c)における引張試験破断後の破面のSEM像である。4Si合金において、ひずみ速度 10^0 s^{-1} ではディンプルパターンが観察でき、引張試験片が延性的な破壊により破断していることを示す。この図には示していないが、 $10^{-3}\sim 10^{-1}\text{ s}^{-1}$ のひずみ速度域でもこれらのようなディンプルパターンが観察されている。一方、ひずみ速度 10^1 s^{-1} 以上では、引張試験片は、脆性的に破壊した。これらの結果から、4Si合金では、 10^0 s^{-1} と 10^1 s^{-1} の間で、延性的な破壊から脆性的な破壊へと破面形態が遷移したことがわかる。この破面形態の遷移はFig. 2に示した応力-塑性ひずみ曲線での局部伸びの消滅に対応した。これと同様の対応が、3Si1Al合金と2Si2Al合金における 10^2 s^{-1} と 10^3 s^{-1} の間で確認された。3Si1Al合金では、粒内破壊を引き起こす場合が多いのに対し、2Si2Alでは、粒界破壊を起こす場合も観察された。これは、Al含有量の増加により、結晶内の変形が促進され、粒内破壊が起こりにくくなったことを示唆する。一方、1Si3Al合金と4Al合金では、本研究で実施した全てのひずみ速度で延性的な破面が観察された。

以上の結果から、応力-ひずみ曲線で得られた局部伸びの有無と破壊形態は対応し、破壊形態が遷移するひずみ速度はAl含有量の増加に従って上昇した。転位の移動が熱活性化過程によって支配されているのであれば、破壊形態が遷移するひずみ速度の上昇は、遷移温度の低下と等価である。これは、Al含有量の増加によるFe-高Si合金の脆化改善を意味している。

3.3 直流磁気特性結果

Fig. 4(a)は、各Fe-Si-Al合金に対しての直流磁気特性試験より得られたB-H曲線である。B-H曲線は磁化力の増加に伴い単調に増加するが、その増加率は、 1 kAm^{-1} 付近以降緩やかになり、 10 kAm^{-1} においては約1.7 T程度の値に到達した。同じ磁化力で比較すると、Al含有量の増加に従って磁束密度は低下する傾向を示した。一般的に使用される電磁鋼板の一種であるJIS記載の50A230では、磁化力 5 kAm^{-1} において磁束密度1.60 T以上が規定されている。本研究で調査した合金いずれもこの条件を満たす。このB-H曲線の傾きから比透磁率を算出し、これを磁化力に対してプロットした図がFig. 4(b)である。同じ磁化力で比較すると、Al含有量の増加に伴い、 $10\sim 100\text{ Am}^{-1}$ の範囲で、比透磁率が低くなる傾向を示した。この磁気測定から得られた最大比透磁率は3000~3200程度である。この値はAl含有量の増加にしたがって低下した。市販されている0.5 mm無方向性電磁鋼板の最大比透磁率は5000~10000程度とされている。今回の測定から得られたFe-Si-Al合金の最大比透磁率は市販の無方向性電磁鋼板のそれと比べると少し小さい結果となった。その原因として、焼鈍処理による加工応力が除去しきれていない、合金溶解の際にムライトのつぼから混入した不純物の影響などが考えられるが、現時点では原因は解明できていない。

これらの結果から、Fe-高Si合金に含有されるAlは、靱性を向上させるが磁束密度と透磁率を低下させる役割を有することが明らかとなった。

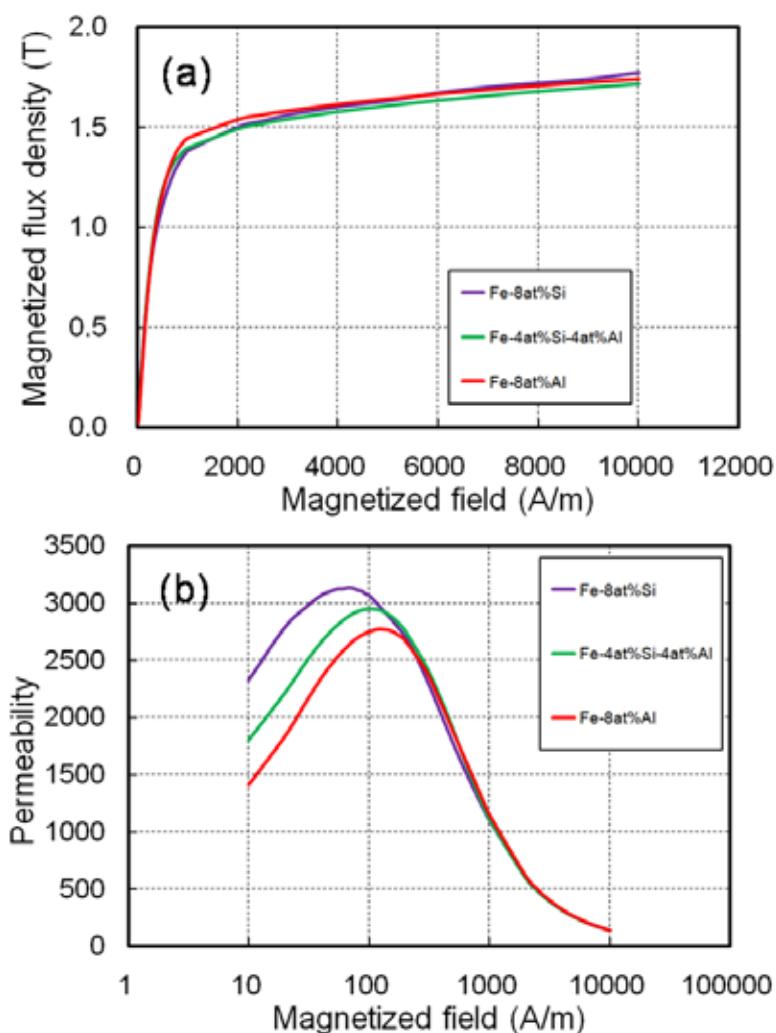


Fig. 4 各 Fe-Si-Al 合金に対しての直流磁気特性試験より得られた B-H 曲線(a)と比透磁率曲線(b)

4. まとめ

本研究では、種々の Al 添加量を有する多結晶 Fe-Si-Al 合金を対象に、広範囲のひずみ速度で室温引張試験を実施し、ひずみ速度変化による破壊形態遷移に及ぼす Al 含有量の影響を明らかにした。

Al 含有量が多い Fe-Si-Al 合金では、実施したすべてのひずみ速度において延性的な破壊を示した。一方、Al 含有量が少ない合金では、あるひずみ速度を境にして、公称

応力-公称塑性ひずみ曲線での局部伸びの有無が発生した。このひずみ速度より低ひずみ速度側では延性的な破面形態が、高ひずみ速度側では脆性的な破面形態を示し、局部伸びの有無と破面形態は対応した。このことから、ひずみ速度変化による破壊形態の遷移が存在した。この遷移ひずみ速度は、Al含有量の増加に従って上昇し、Al含有によるFe-高Si合金の脆化が改善した。直流磁気特性試験から得られた最大磁束密度と最大比透磁率は、Al含有量の増加にしたがって低下した。これらの結果から、Fe-高Si合金に含有されるAlは、靱性を向上させるが磁束密度と透磁率を低下させる役割を有することが明らかとなった。

謝辞

本研究は、公益財団法人 JFE21 世紀財団技術研究助成の支援を受けて遂行されたものである。いただいた支援に心より感謝申し上げます。

参考文献

- 1) Y. Oda and T. Kubota: *Bulletin of the Iron and Steel Institute of Japan (Ferrum)*, 14(2009), 339.
- 2) K. Fujita and Y. Takada: *J. Jpn. Soc. Heat Treatment*, 39(1999), 200.
- 3) R.M.Bozorth: *Ferromagnetism*, IEEE Press, New York, (1993), 40.
- 4) Y. Yoshitomi, K. Iwayama, T. Nagashima, J. Harase and N. Takahashi: *J. Jpn. Inst. Met.*, 55(1991), 630.
- 5) J. Harase, K. Takashima, R. Shimizu and T. Watanabe: *Tetsu-to-Hagané*, 73(1987), 1746.
- 6) J. Harase, R. Shimizu and S. Nakashima: *J. Jpn. Inst. Met.*, 55(1991), 748.
- 7) S. Nakashima, K. Takashima and J. Harase: *Tetsu-to-Hagané*, 77(1991), 1717.
- 8) T. Matsuoka: *Tetsu-to-Hagané*, 53(1967), 1007.
- 9) R.W. Cahn and P. Haasen: *Physical Metallurgy volume 3*, North-Holland, (1996) 2528.
- 10) K.F. Ha, C. Yang and J. S. Bao: *Scri. Metall Mater.*, 30(1994), 1065.
- 11) F. Sorbello, P. E. J. Flewitt, G. Smith and A. G. Crocker: *Acta Mater.*, 57(2009), 2646.
- 12) Y. Qiao and A. S. Argon: *Mech. Mater.*, 35(2003), 129.
- 13) A.Giannattasio, M. Tanaka, T. D. Joseph and S. G. Roberts: *Phys Scr.*, T128(2007), 87.
- 14) P.B. Hirsch and S.G. Roberts: *Acta Mater.*, 44(1996), 2361.
- 15) K. Higashida and M. Tanaka: *Tetsu-to-Hagané*, 97(2011), 195.
- 16) 加藤雅治、熊井真次、尾中晋著: *材料強度学*、朝倉書店、東京、(1999)、81.

- 17) 加藤雅治著: 入門転位論、裳華房、東京、(1999)、103.
- 18) H. Conrad and S. Frederick: *Acta Metall.*, 10(1962), 1013.
- 19) S. Sakui: *Tetsu-to-Hagané*, 57(1971), 2300.
- 20) S. Sakui and T. Sakai: *Tetsu-to-Hagané*, 58(1972), 1438.
- 21) S. Sakui, K. Sato and T. Sakai: *Tetsu-to-Hagané*, 58(1972), 842.
- 22) B. Aronsson and L. Granas: *Metall. Trans.*, 2(1971), 1087.
- 23) T. Mizuguchi, R. Oouchi, R. Ueji, Y. Tanaka and K. Shinagawa: *Mater. Sci. Forum*, 654–656(2010), 1303.
- 24) K. Matsumura and B. Fukuda: *IEEE Tran. Magn.*, 20(1984), 1533.
- 25) H. Shimanaka, Y. Ito, T. Irie, K. Matsumura, H. Nakamura and Y. Shono: Energy Efficient Electrical Steels, ed. By. A. R. Marder and E. T. Stephenson, Metall. Soc. AIME, (1981), 193.
- 26) Y. Chuman, K. Kimura, K. Kaizu and S. Tanimura: *Int. J. Impact Eng.*, 19(1997), 165.
- 27) N. Tsuchida, Y. Tomota and K. Nagai: *Tetsu-to-Hagané*, 90(2004), 1043.