

塑性変形で集合組織を付与した鉄粒子による圧粉体の開発

岐阜工業高等専門学校 機械工学科

准教授 本塚 智

(平成 27 年度 一般研究開発助成 AF-2015004)

キーワード：集合組織，磁化容易軸，鉄心

1. 研究の目的と背景

モーターやリアクトルなどの電磁気応用製品に用いられている鉄心は、圧延による塑性変形と熱処理によって、集合組織を形成した薄鋼板を積層して製造されている。集合組織の形成の目的は、電磁気製品中で磁束の通る方向と、鉄の結晶の方向の中で最も透磁率の高い[001]方向(以後、磁化容易軸)を一致させ、ヒステリシス損と呼ばれる電気-磁気エネルギー変換損失を低減することである。

一方、近年は太陽光発電用のパワーコンディショナや電気自動車に用いられる昇圧コンバータ用のリアクトルに代表される、高周波電源で作動する電磁気応用製品が増加している。高周波で作動する電磁気応用製品は、ヒステリシス損よりも渦電流損失の占める割合が多く、その抑制に有利な圧粉鉄心が注目されている。圧粉鉄心においても、集合組織を形成して、ヒステリシス損を低減させることが望ましいが、圧粉鉄心の原料である鉄粉に集合組織を形成する技術が存在しないため、実現には至っていなかった。

申請者らは鉄粉中に集合組織を形成する技術を見出した¹⁾。具体的には、鉄粉をボールミルで粉砕する際に、潤滑剤を添加することによって、鉄粉を塑性変形させ偏平化すると同時に、その偏平面と磁化容易軸を並行に配向できることを見出した。しかし、そのメカニズムは明らかではなく、より強い結晶配向性を持つ鉄粉を得るために、その解明が必要である。また、この集合組織を有する鉄粒子の鉄心への応用のためには、集合組織を維持したまま、成形を容易にするための軟化焼鈍を実施し、さらにその鉄粒子を鉄心形状に成型する技術の確立が必要である。そこで本研究では、1)潤滑下粉砕による集合組織の形成過程の解明、2)焼鈍に伴う集合組織の変化、3)集合組織を有する圧粉鉄心の創出を目的とした。

2. 実験方法

原料鉄粒子として、神戸製鋼所製の水アトマイズ純鉄粒子(ML35N, D50=125 μm, 純度 > 99.8%)を用いた。潤滑油として、呉工業製の 5-56 を用いた。その他、粉砕後の潤滑油の洗浄のために石油エーテル(ナカライテスク, 特級)を用いた。

粉砕のためのボールミルとしては、日新技研製の遠心ボールミル(NEV-MA-8)を用いた。ステンレス製の内容量 70 cc の粉砕容器に鉄粒子 5 g と潤滑油を 10 ml 加え、直径 9.52 mm の SUJ2 製の鋼球を 20 個導入した。比較のため、潤滑油を加えずに粉砕した試料も作製した。この粉砕容器

を遠心ボールミルに取り付け、回転速度 59.1 rad/s として所定時間粉砕した。粉砕中には鋼球と鉄粉および粉砕容器壁面間の衝突によって発生する熱を逃がすために、粉砕容器を水道水で冷却した。この過程を繰り返し、所定量の鉄粒子を得た。得られた鉄粒子を Ar-3%H₂ 雰囲気とした管状電気炉中で 1 時間、所定温度で焼鈍した。焼鈍時には粉砕によって試料に導入された加工ひずみを取り除かれるだけでなく、系内に残留する潤滑油の分解も生じる。炭素硫黄同時分析装置による分析では、系内の炭素分は検出限界以下であった。焼鈍後の鉄粒子は外径 45 mm、内径 33 mm のトロイダル形状に成形した。成形圧は 1.2 GPa とした。

鉄粒子およびトロイダル鉄心の形状と組織は走査型電子顕微鏡(SEM)、電子線後方回折散乱(EBSD)、X 線回折(XRD)によって評価した。SEM の加速電圧は 15 kV とし、EBSD のスキャンステップは 1.3 μm とした。SEM-EBSD 観察においては、試料を導電性樹脂(Technovit 5000, Kulzer Co. Ltd.)に包埋し、バフ研磨した後、研磨の際の応力除去のためにイオンミリング装置(IM4000, 日立ハイテク製)で 20 分間、表面イオンミリングを実施した。菊池パターンを元に、TSL OIM analysis 7 (TSL co. Ltd.)で逆極点(IPF)マップおよび逆極点図(IPF)を得た。XRD パターンはリガク社の smartlab で得た。一般的な 2θ のほかに、インプレーン法²⁾による極点測定も実施した。極点データは standard ODF(Norm engineering co. Ltd.)によって再計算し、IPF を得た。

3. 実験成果

3・1 潤滑下粉砕による集合組織の形成過程

図 1 に粉砕前((a), (b))、0.1 h 粉砕後((b), (e))、1.0 h 粉砕後((c), (f))の鉄粒子の外観((a)~(c))および断面((d)~(f))SEM 像を示す。断面図において、中央の粒子が鉄粉であり、その周辺の微粉は導電性樹脂中に分散している銅粉、画面左の灰色の箇所は粉砕によって偏平化した鉄粒子を添わせるために用いたステンレス板である。外観の変化からわかるように、粉砕によって鉄粒子は粒状から偏平形状に塑性変形した。0.1 h の粉砕では偏平鉄粒子は厚み 20 μm 程度の単一の粒子で形成されているが、1.0 h の粉砕を受けた鉄粒子は数 μm まで薄くなるだけでなく、複数の鉄粒子が積層して一つの偏平粒子を構成するようになる。その粒子界面を観察すると、例外なく粒子の長手方向に平行であり、粒子界面の曲がっている粒子は見当たらなかった。この観察結果から、粉砕球からの力は偏平面に

垂直な方向からの圧縮もしくは、粉砕球の回転による圧延の様式で、鉄粒子に伝達されていると考えられた。

図 2 に粉砕前後の鉄粒子の XRD パターンを示す。(a) は潤滑油中で粉砕された鉄粒子、(b) は潤滑油を伴わず、大気中で粉砕された鉄粒子のパターンを粉砕時間ごとに示している。ピークは全て α 鉄に帰属された。粉砕前の鉄粒子のピーク強度比は JCPDS カード (01-071-3763) と一致し、等方的な結晶配向を有していることが確認された。図 2(a) から明らかなように、潤滑油中で粉砕された鉄粒子においては、粉砕時間が増加すると共に、(002) の回折ピーク強度が増加し、(110) の回折ピーク強度が減少した。図 2(b) に示すように、潤滑油を伴わず、大気中で粉砕された鉄粒子においても同様の傾向が認められるが、ピーク強度比の変化はわずかであった。このことは、潤滑油中で粉砕された鉄粒子において偏平面に平行に (002) が強く配向していることを示唆している。

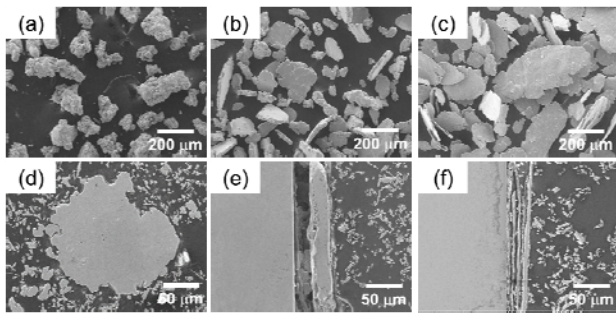


図 1 粉砕前 ((a), (b))、0.1 h 粉砕後 ((b), (e))、1.0 h 粉砕後 ((c), (f)) の鉄粒子の外観 ((a)~(c)) および断面 ((d)~(f)) SEM 像

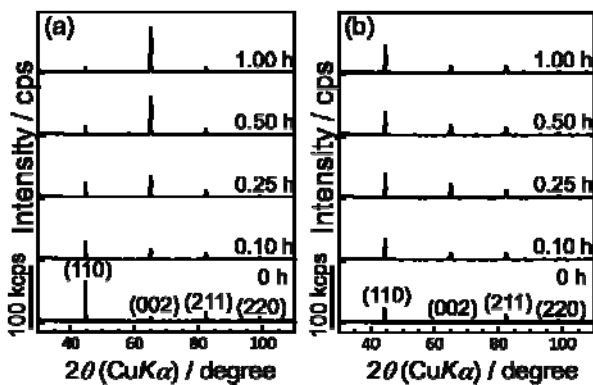


図 2 潤滑剤と共に粉砕した鉄粒子 (a) および大気中で粉砕した鉄粒子の XRD パターン

図 3 に得られた鉄粒子の IPF マップを示す。(a)~(c) は SEM 像、(d)~(e) は SEM 像に垂直な方向 (以後 ND と表記) を基準とした IPF マップ、(f)~(h) は SEM 像に対して左方向 (以後 InPlane: IP と表記) を基準とした IPF マップである。図 3(a, d, f) に示すように、粉砕前の鉄粒子は粒径 100 μm 程度の結晶粒で構成されていることが分かる。また、

その方位に一定の傾向は認められず、等方的な結晶構造を有していることが分かる。0.1 h の粉砕を受けた鉄粒子の ND 方向の IPF マップでは徐々に (001) を示す赤い領域と (111) を示す青い領域が増加し、それ以外の色が減少する。1.0 h の粉砕を受けた鉄粒子の ND 方向の IPF マップでは、この傾向がますます強調される。また、IP 方向の IPF マップにおいては、(001) を示す青い領域が減少し、残った色は図 3(d) のカラーキーとの比較からわかるように、カラーキーのステレオ三角における 001 と 101 を結ぶ辺上の色であることが分かる。

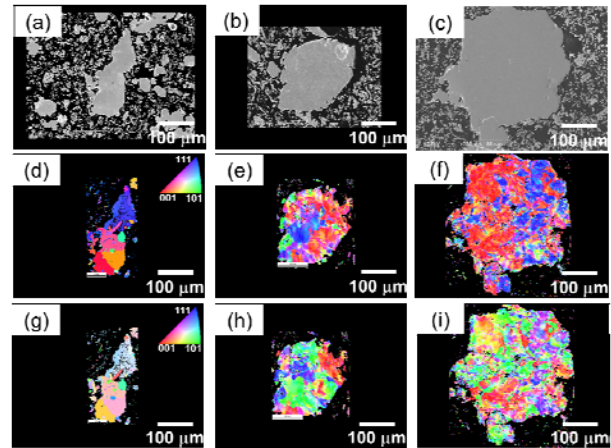


図 3 粉砕前 ((a), (d), (g))、0.1 h 粉砕後 ((b), (e), (h))、1.0 h 粉砕後 ((c), (f), (i)) の鉄粒子の外観 ((a)~(c))、ND 方向の IPF マップ ((d)~(f))、IP 方向の IPF マップ ((g)~(i))

図 4 に得られた鉄粒子の IPF を示す。本 IPF は XRD による極点解析結果を ODF ソフトウェアで再計算して得られたものである。従って、単一粒ではなく、多数の粒子の平均的な配向に関する情報が反映されている。(a)~(c) は ND 方向を基準とし、(d)~(f) は IP 方向を基準とした IPF である。ステレオ三角の頂点の数値は、各頂点に対応する方位における極密度を示している。粉砕前の鉄粒子の IPF 上の極密度はどの方位においても平均的に 1 前後であり、結晶学的に等方的な組織を有していることが分かる。0.1 h の粉砕を受けた鉄粒子の ND 方向の IPF マップでは、001 周辺の極密度が 2 近くまで増加している。1.0 h では 001 周辺の極密度が 5 を超えている。101 の極密度はほぼ 0 まで低下し、111 周辺の極密度はやや高く、111 から少し離れたところに極密度のピークが存在し、2 程度の極密度を持っている。さらに、IP 方向の IPF においては、111 の極密度が低下し、001 と 101 を結ぶ辺上の極密度が増加している。この傾向は IPF マップの傾向と一致する。この EBSD と XRD による組織解析結果の一致から、粉砕による集合組織は粉体全体に形成されていることが分かる。また、001 標準ステレオ投影図から明らかなように 001 が ND 方向を向いていると仮定すると、偏平面内には 0vw が向くことになる。EBSD および XRD の結果はこの仮説とよく一致する。

従って、粉砕によって形成された集合組織は $\{001\}\langle 0vw\rangle$ が主成分で、弱い $\{111\}$ 繊維集合組織も含まれていることがわかった。さらに、形成された集合組織は変形が進むごとに発達しているため、本集合組織は変形集合組織の一種であることが分かった。一般に、金属が変形する際の配向面は、その金属の結晶構造と変形様式で決定される。 $\{001\}+\{111\}$ 二重繊維集合組織は、単軸圧縮されたbcc金属によく観察される。また、SEMによる粉砕粒子の断面の観察から明らかになったように、粉砕中に鉄粒子は扁平化すると同時に、その扁平面に対して垂直な方向から繰り返し圧縮力を受け、もしくは転動する粉砕球から圧延を受けて変形していることが推察された。以上より、粉砕による集合組織は変形集合組織の一種で、粉砕による単軸圧縮もしくは多方向圧延様式による変形によって誘起されたものと考えられた。

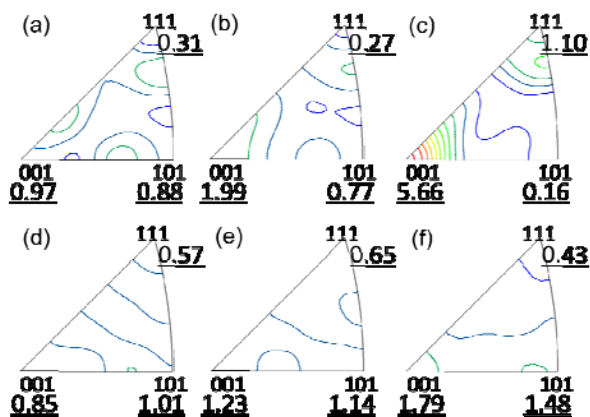


図4 粉砕前((a), (d))、0.1 h 粉砕後((b), (e))、1.0 h 粉砕後((c), (f))の鉄粒子のND方向のIPF((a)~(c))、IP方向のIPFマップ((d)~(f))

3・2 焼鈍に伴う集合組織の変化

粉砕によって鉄粒子内部に導入された加工ひずみは、その後の鉄心成形における変形能を低下させるのみならず、磁壁のピンニングサイトとなり、鉄心の磁気特性を悪化させる⁴⁾。そのため、焼鈍によって粉砕された鉄粒子から加工ひずみを取り除く必要がある。

図5に1.0 h粉砕後の扁平鉄粒子((a), (d))、その鉄粒子を500℃で1.0 h焼鈍した鉄粒子((b), (e))および700℃で1.0 h焼鈍した鉄粒子((c), (f))のIPFマップおよびIPFを示す。500℃で焼鈍された鉄粒子においては、焼鈍前に見られた赤(001面に対応)および青(111面に対応)の領域以外の中間的な色がより少なくなっている。またIPFにおいても001の極密度が増加している。700℃ではIPFマップに結晶粒界が明確に観察されるようになり、再結晶が生じていることが分かる。IPFにおいては001の極密度が6台から4台まで低下した。鉄のような積層欠陥エネルギーの高い金属においては、再結晶に先行して回復が生じる。本扁平粒子において、SEMによる粒子断面の厚みと、粉砕前の粒子の直径の比率から算出した対数ひずみ

(真ひずみ)は-3程度であり、かなり大きなひずみが導入されている。このようにおおきなひずみの中で、回復に伴う結晶の回転の振る舞いを統一的に説明する理論はまだないが³⁾、回転の方位は等方的ではなく、異方性を持つことが知られている。500℃における001の極密度のわずかな増加はこのような回復に伴う回転による現象と推察される。700℃で1.0 h焼鈍した鉄粒子においては、再結晶が生じた。一般に、鉄を含むbcc金属はfcc金属と比較して相対的に、再結晶後も加工集合組織を保つ傾向があることが知られている³⁾。本試料の場合も、極密度が回復後の6.43と比較して4.34まで低下したものの、001周辺に高い極密度、111周辺にやや高い極密度を持つ全体の傾向には変わりはない。しかし、IPFマップとカラーキーを比較すると分かるように、001を示す赤色部分が、全体的に紫がかっていることから、111方向に結晶方位が遷移しており、磁気特性の悪化が予想されるため、その改善が必要である。

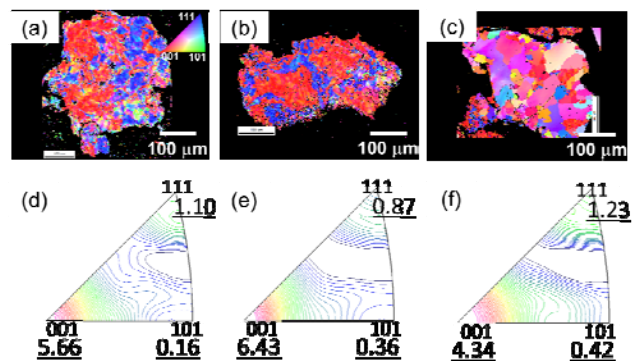


図5 1.0 h粉砕後((a), (d))、500℃で1.0 h焼鈍後((b), (e))、700℃で1.0 h粉砕後((c), (f))の鉄粒子のND方向のIPFマップ((a)~(c))、ND方向のIPFマップ((d)~(f))

3・3 集合組織を有する圧粉鉄心の創出

図6に成形したトロイダル鉄心の外観(a)とその断面(b)のSEM像および磁化容易軸の配向イメージ(c)を示す。(a)に示すように、トロイダル形状の鉄心を得ることに成功した。成形体密度は7.38 g/cm³であった。成形した鉄粒子は、粉砕後、500℃で焼鈍した試料である。成形体密度は粉砕前の水アトマイズ粉を同一方法で成形して得られた鉄心と比較して5%程度低下した。鉄心においては、わずかな空隙が磁気特性の悪化に直結する。これは、鉄と比較して4ヶタ以上真空の透磁率が低いためである。そのため、この成形体密度の低さを今後改善する必要がある。成形体密度低下の要因としては、焼鈍温度が低く、加工ひずみの残留のため、鉄粉の塑性変形能が低いことが挙げられる。さらには、水アトマイズ粉のような粒状粉と比較して、扁平粉の比表面積が大きく、成形後の粒子界面も大きくなり、空隙が生じやすいことも挙げられる。

図(b)の断面から明らかのように、鉄粒子の扁平面が加

圧方向に対して垂直になっている。これは、形状が扁平であるために、粒子が成形型内で粒子配向するためである。ここまでで示してきたように、磁化容易軸は扁平面と平行に配向されている。そのため、図(c)のイメージ図で示すように、扁平粒子が鉄心のトロイダル方向に粒子配向すると同時に、その扁平面に平行に配向されている磁化容易軸も鉄心のトロイダル方向に配向していることが推測される。

図7に成形した鉄心の中央部の断面 SEM 像(a)と、当該箇所 IPF マップ(b)を示す。SEM 像は上下方向が成形時の加圧方向となっている。SEM 像(a)から明らかのように、粒子界面が像の水平方向に走っている。このことから、扁平粒子が成形型内で配向していることが分かる。次に、IPF マップから、001 を示す赤色が支配的であることが分かる。本 IPF マップは画像の上方向を基準としている。仮に、上方向を[001]とすると、水平方向には[010]や[001]が配向していることになる。すなわち、IPF マップ(b)は図6(c)に示すように、磁化容易軸がトロイダル方向に平行に配向されていることを示している。

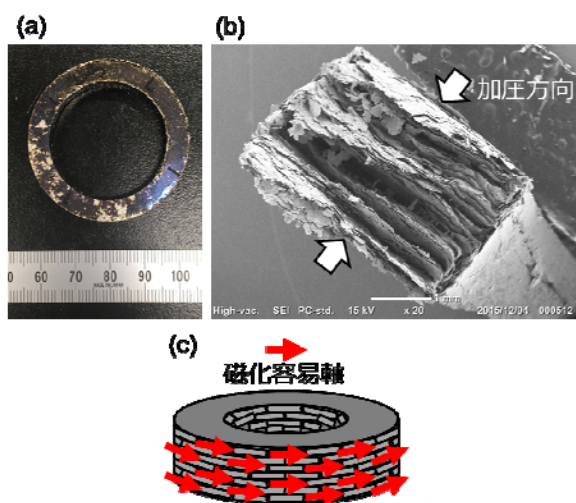


図6 成形したトロイダル鉄心の外観(a)とその断面(b)のSEM像および磁化容易軸の配向イメージ(c)

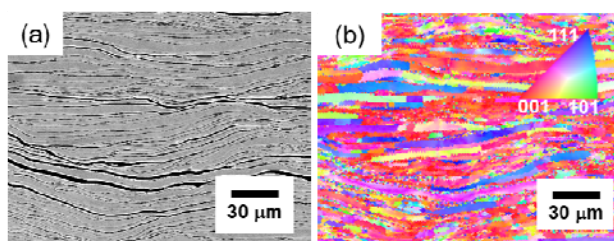


図7 成形した鉄心の中央部の断面 SEM 像(a)と、当該箇所の IPF マップ(b)

以上の様に、集合組織を有する圧粉鉄心を創出することに初めて成功した。磁気特性を直流 B-H カーブで試みに評価したところ、比透磁率は水アトマイズ粉と比較して、2.4 倍まで高まることを確認した。また、10000 A/m では、磁

束密度が 5.0 % 増加することを確認した。ただし、水アトマイズ粉は粒状、粉碎粉は扁平状であり、この形状の違いによって形状磁気異方性⁴⁾による比透磁率の改善が生じる。そこで、潤滑せずに粉碎し、磁化容易軸が制御されていない扁平粉を作って比較したところ、1.8 倍、3.6 %、比透磁率と磁束密度の改善を認めた。すなわち、集合組織の制御による、圧粉鉄心の磁気特性が改善されることを確認した。

4. 結び

高周波における磁気的特性に優れる圧粉鉄心の性能改善に寄与する、(001)集合組織を有する鉄粒子の圧粉体開発に取り組んだ。集合組織の形成過程を分析・評価した結果、粉碎中の鉄粒子は、粉碎用の鋼球によって、圧縮もしくは多方向圧延様式で変形を受け、その結果、同様式による塑性加工を付与された bcc 金属で典型的に観察される、(001)繊維集合組織が形成されることを明らかにした。

粉碎された鉄粒子に残留する加工ひずみを取り除くために、焼鈍を行い、それに伴う集合組織の変化を分析・評価した。その結果、回復においては、粉碎によって増加した 001 周辺の極密度がわずかではあるが増加することが分かった。より高温での焼鈍では再結晶が誘起され、001 周辺の極密度は低下した。しかし、再結晶後の結晶方位は完全なランダムではなく、むしろ粉碎後の結晶の配向状態をかなりの割合で維持した。

粉碎および焼鈍して得られた(001)集合組織を有する扁平鉄粒子をトロイダル形状に成形した。鉄粒子はその形状のために、型内で粒子配向し、トロイダル方向と平行に配向した。同時に、扁平面に配向している[001]磁化容易軸も配向していることを確認した。以上より、集合組織を有する圧粉鉄心を創出することに初めて成功した。

謝 辞

本研究を支援してくださった公益財団法人天田財団に感謝の意を表します。

参考文献

- 1) S. Motozuka, M. Tagaya, K. Hayashi, M. Morinaga, Texture formation in iron particles using mechanical milling with graphite as a milling aid, AIP Adv. 5 (2015), 097127.
- 2) K. Nagao, E. Kagami, X-ray thin film measurement techniques VII. Pole figure measurement, The Rigaku Journal 27(2) (2011) 6-14.
- 3) J.F. Humphreys, M. Hatherly, Recrystallization and Related Annealing Phenomena, second ed., Elsevier, Amsterdam, 2004.
- 4) J. David, Introduction to Magnetism and Magnetic Materials, CRC press, Boca Raton, 1998.