



Influência das fases ordenadas B_2 e DO_3 nas propriedades magnéticas da Liga Fe-6.5%Si obtida por conformação por spray

M. M. Cavalcante^{1*}, M. C. A. Silva², R. E. Coelho³, M. D. C. Sobral³

¹Departamento de Engenharia Elétrica - Instituto Federal da Bahia

Rua Marcondes Ferraz, 200, General Dutra, CEP 48607-000, Paulo Afonso – Bahia, Brasil

²Departamento de Tecnologia Mecânica e Materiais - Instituto Federal da Bahia

Rua Emídio dos Santos, s/n, Barbalho, CEP 41000-000, Salvador – Bahia, Brasil

³Laboratório de Materiais - Instituto Federal da Bahia,

Rua Emídio dos Santos, s/n, Barbalho, CEP 41000-000, Salvador – Bahia, Brasil

(Recebido em 25/04/2014; revisado em 06/06/2014; aceito em 16/06/2014)

(Todas as informações contidas neste artigo são de responsabilidade dos autores)

Resumo:

Os aços-silício são os principais materiais utilizados nos núcleos de transformadores e outros equipamentos elétricos e podem ser obtidos pelos processos convencionais e de solidificação rápida. O aumento do teor de silício ao ferro melhora suas propriedades magnética e para um teor de 6,5%Si as ligas apresentam excelentes propriedades magnéticas moles com magnetostricção praticamente nula. Contudo, essa otimização tem como consequência uma dramática perda de ductilidade, limitando o teor de silício em chapas comerciais de aços-silício a no máximo 3,5%Si. Logo, este trabalho tem como propósito analisar e discutir sobre os efeitos do tratamento térmico nas estruturas ordenadas B_2 e DO_3 e as consequências destas nas propriedades magnéticas da liga Fe-6,5%Si obtida pelo processo de conformação por Spray no laboratório do Departamento de Engenharia de Materiais da UFSCar (e com colaboração da Universidade da Flórida - Estados Unidos).

Palavras-chave: Liga Fe-Si; ordenamento atômico; propriedades magnéticas; conformação por spray.

Abstract:

The silicon steels are the main materials used in the cores of transformers and other electrical equipment and can be obtained by conventional and rapid solidification processes. Increasing content of silicon in iron improves its magnetic properties and a content of 6,5% Si in alloys exhibit excellent soft magnetic properties with practically zero magnetostriction. However, this optimization result in a dramatic loss of ductility, limiting the content of silicon in commercial steel of silicon steel plates the in the maximum 3,5% Si. Therefore, this work aims to analyze and discuss the effects of heat treatment on B_2 and DO_3 ordered structures and their consequences on the magnetic properties of Fe-6,5% Si alloy obtained by spray forming process by the laboratory of the Department of Engineering materials UFSCar (and collaboration with the University of Florida - United States).

Keywords: Fe-Si alloy; ordering reactions; losses magnetic; spray forming.

1. Introdução

As ligas de Ferro são excelentes materiais magnéticos moles e por esse motivo são muito utilizadas pelas indústrias automobilistas, na área de construção civil e em equipamentos elétricos, como no núcleo de transformadores por exemplo.

Essas ligas quando possuem em torno de 6-7%Si se tornam excelentes materiais para aplicações eletromagnéticas com alta permeabilidade, moderada indução de saturação, baixas perdas magnéticas e magnetostricção praticamente zero. Contudo, quando processadas por técnicas convencionais apresentam baixa ductilidade, dificultando a fabricação de chapas finas necessárias para aplicações eletromagnéticas. O processo conhecido por *Melt Spinning* é

capaz de processar satisfatoriamente estas ligas nas formas de fitas microcristalinas com relativa ductilidade. Entretanto, o baixo empilhamento das fitas resulta no aumento das perdas magnéticas [1].

Mais recentemente, surgiu o processo de Conformação por Spray como uma nova alternativa de solidificação rápida capaz de processar essas ligas nas formas de chapas finas e melhorando as propriedades magnéticas após tratamento térmico de recozimento. Tal processo é uma variante do método de solidificação rápida com base na atomização de uma corrente de metal líquido por um gás inerte [2].

Neste trabalho, foi dada ênfase ao estudo da reação de ordenamento atômico (estruturas B_2 e DO_3) e seus efeitos nas propriedades magnéticas através do tratamento térmico na liga

*Email: michellemelo@ifba.edu.br (M. M. Cavalcante)

de Ferro com 6,5% de Silício obtido pelo processo de Conformação por Spray. Além disso, o projeto salienta a viabilidade técnica deste método de solidificação rápida na produção de aços elétricos, ou também denominado aços-silício, para aplicações em equipamentos elétricos.

2. Liga Fe-Si e os efeitos da adição de silício

Materiais alternativos que apresentam baixas perdas magnéticas em aplicações eletromagnéticas na faixa de frequência baixa e média é a principal aplicação das ligas Fe-Si com alto teor de silício [3,4,5].

O aumento do teor de silício no ferro melhora suas propriedades magnéticas pela redução das perdas parasíticas devido ao aumento da resistividade [6,7,8].

As ligas com 6,5%Si em peso apresentam alta permeabilidade, baixa remanência, coercividade e anisotropia magnética, magnetostricção praticamente zero e uma boa magnetização de saturação. Para essa mesma composição e após tratada termicamente, essa liga apresenta a combinação das melhores propriedades magnéticas. Porém, essa otimização das propriedades magnéticas através dos tratamentos térmicos faz com que haja uma dramática perda de ductilidade devido a formação das fases ordenadas B_2 e DO_3 . Por esse motivo, o teor de silício em chapas comerciais de aço-silício tem sido limitado a no máximo 3,5% de silício [9, 10].

Logo, como as ligas de Fe-Si com teor de silício acima de 3,5% não podem ser processadas convencionalmente, utilizam-se rotas não convencionais como os processos de solidificação rápida e deposição por vapor químico [6-8, 11, 12].

3. Processo de conformação por spray

O processo de Conformação por Spray (CS) foi formulado em 1968 por A. R. E. Singer na Universidade de Swansea, Wales (Reino Unido), no qual, propôs primeiramente a produção de peças de geometria simples [13,14].

Tal processo vem despertando interesse nos últimos anos devido à capacidade de conjugar em uma única etapa do processo as vantagens das técnicas de solidificação rápida, como obtenção de microestrutura quase isenta de porosidade, segregações e refinada, com as vantagens do processo de fundição convencional, como alta produtividade. As pesquisas estão levando ao desenvolvimento de técnicas de melhoramento das ligas e materiais [15].

O processo de CS consiste na atomização por jatos direcionados de gás inerte ou não (N_2 , Ar) em alta velocidade contra um fluxo contínuo de metal líquido onde ocorre a desintegração do fluxo formando gotas de dimensões variadas, que são resfriadas e aceleradas pelo gás de atomização durante o voo na direção do substrato, no qual são solidificadas em um depósito coerente e próximo da densidade teórica [16-23]. A forma do depósito depende do movimento relativo entre o substrato e o cone de atomização [16-23].

A Figura 1, mostrada a seguir, ilustra simplificada o processo de Conformação por Spray.

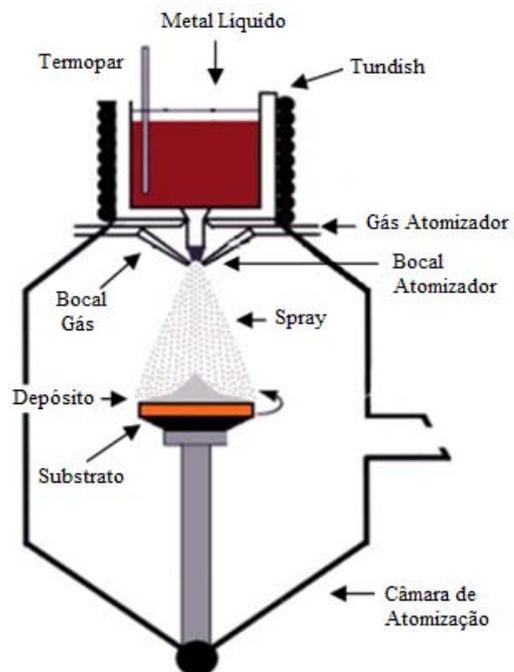


Figura 1. Desenho esquemático do processo de conformação por spray.

Na área de materiais a base de ferro o desenvolvimento concentrou-se na produção de aços rápidos e aços ferramentas de alta liga [16-23].

4. Ordenamento atômico e sua influência na liga de Fe-Si

A Figura 2 apresenta o diagrama de equilíbrio de fases para uma região rica em Ferro no sistema Fe-Si nas proximidades da Temperatura de Curie (T_c). Nela identificam-se as fases ordenadas B_2 e DO_3 e a fase desordenada A_2 sendo todas cúbicas de corpo centrado (CCC). A reação ordenada B_2 é do tipo CsCl e caracteriza-se pela ocupação preferencial dos sítios I com átomos de Fe e dos sítios II com átomos de Si. Contudo, na estrutura desordenada A_2 esta ocupação é aleatória [24]. A estrutura ordenada DO_3 é do tipo BiF_3 e é formada por oito células unitárias (CCC).

As reações de ordenamento nas ligas Fe-Si com alto teor de silício influenciam consideravelmente nas propriedades magnéticas (que são sensíveis a arranjos atômicos) e são afetadas sensivelmente pelas condições do tratamento térmico [24].

A baixa ductilidade das ligas de Fe-Si com teores entre 5,3-11,2%Si em peso é atribuída à presença de dois tipos de fases com estruturas ordenadas: B_2 e DO_3 , todas CCC. Para ligas com valores de silício entre 5,9-7,9% em peso, ambas as estruturas estão presentes [24,25]. O ordenamento de longo alcance da estrutura B_2 é a causa principal da fragilidade

apresentada por estas ligas, devido a formação de super-rede, e elevada concentração de tensão irregular, acarretando assim a fratura prematura do material durante o processamento termodinâmico [26].

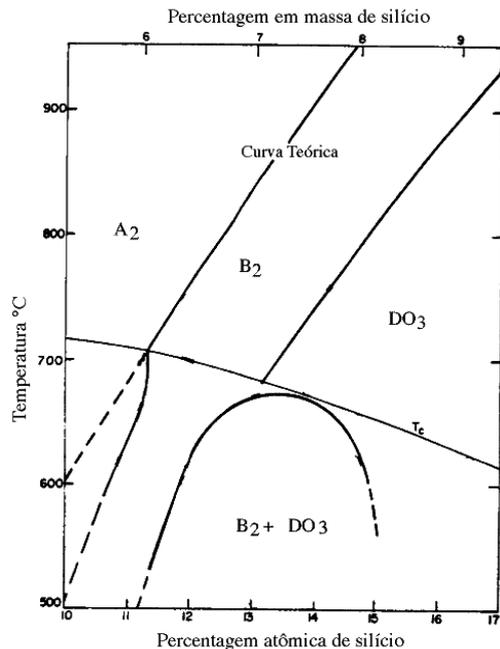


Figura 2. Fases ordenadas no sistema Fe-Si

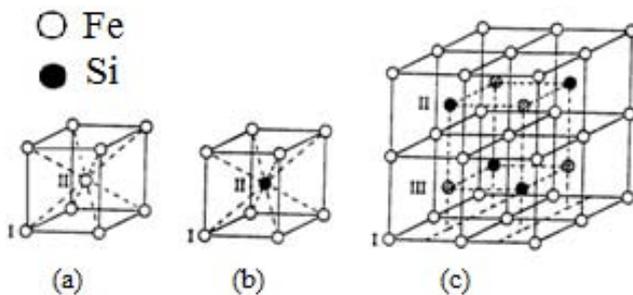


Figura 3. Estruturas do sistema Fe-Si: (a) Estrutura desordenada A₂; (b) Estrutura ordenada B₂ e (c) Estrutura ordenada DO₃ [24]

5. Materiais e Métodos

A parte experimental foi realizada nos laboratórios do Departamento de Engenharia de Materiais da Universidade Federal de São Carlos (DEMa/UFSCar) tendo uma colaboração do Departamento de Materiais da Universidade da Flórida (EUA).

Os parâmetros de processos utilizados são apresentados abaixo na Tabela 1.

Tabela 1. Parâmetros de Processos utilizados para obtenção da Liga Fe-6,5%Si

Parâmetros de Processos	Valores
Pressão do gás (Mpa)	0,5
Diâmetro do Tubo (m)	0,06
Distância de voo ² (m)	0,04
Razão Gás-Metal (GMR)	0,12

²Distância de voo: representa a distância entre o bocal atomizador e o substrato e pode ser visualizada através da Figura 1

A partir da região central dos depósitos da liga Fe-6,5%Si processados diretamente do estado líquido pelo Processo de Conformação por Spray, obtidos na pesquisa de Leal [26], foram usinados corpos de prova na forma de anéis toroidais com uma relação de diâmetros interno e externo de 0,82 (de acordo com a norma ASTM-773-80/C), sendo o diâmetro externo de aproximadamente 200mm.

Os anéis foram submetidos a tratamentos de recozimento na faixa de temperaturas de 900-1300°C sob vácuo de 1Pa durante 1h e também com temperatura na faixa de 400-700°C sem atmosfera protetora durante 1h. Através da curva de histerese, calculada pelo Traçador de Curvas de Histerese Magnética TCH-8600/B e produzido pela AGMS Automação Industrial Ltda, com uma frequência de 60Hz, foram avaliados a indução magnética de 1T e formas de onda de indução trapezoidal, permeabilidade magnética máxima, força coercitiva e perdas para as amostras tratadas e não tratadas. Três amostras foram utilizadas para as medições magnéticas.

O tratamento foi realizado em um forno de indução a vácuo modelo 1100-4080-W2 da Thermal Technology Inc. do DEMa/UFSCar para as amostras tratadas na faixa de temperatura de 900-1300°C e em forno de resistência tipo mufla para as amostras tratadas na faixa de temperatura de 400-700°C. Além disso, a técnica de microscopia eletrônica de transmissão (MET) (Philips 120Kv do DEMa/UFSCar) foi utilizada com o objetivo de identificar as fases ordenadas presentes, o tamanho dos domínios e contornos dos domínios de antifase.

6. Resultados e Discussão

As propriedades magnéticas em função da temperatura de recozimento são apresentadas nas Figuras 4 e 5. As melhores propriedades magnéticas obtidas após tratamento térmico a 1250°C foram: Perda Total (P_T) de 1,3 W/kg, Permeabilidade máxima ($\mu_{\text{máx}}$) de 15400 e Força Coerciva (H_C) de 40 A/m, a B = 1T, f = 60Hz. Enquanto que para as amostras não tratadas os valores foram de 3,66 W/kg, 5400 e 123 A/m, respectivamente.

Os resultados mostraram que a perda e a força coerciva tendem a diminuir enquanto que aumenta a permeabilidade máxima com o aumento da temperatura de recozimento.

Este comportamento, visualizado nas curvas de variação das perdas e da força coercitiva mostradas nas Figuras 4 e 5, está relacionado com a redução da densidade dos contornos de

antifase B₂ (APBs), no qual, sugere uma interação entre os contornos de antifase (APBs) e as paredes de domínio magnético (DWS), onde a forte interação é resultado da quebra de simetria.

Como as propriedades magnéticas são sensíveis ao arranjo atômico, a interação de deslocamento do domínio

magnético por fronteiras de antifase surge da variação perto do APBs. Assim, as propriedades magnéticas mudam proporcionalmente a densidade do domínio APBs.

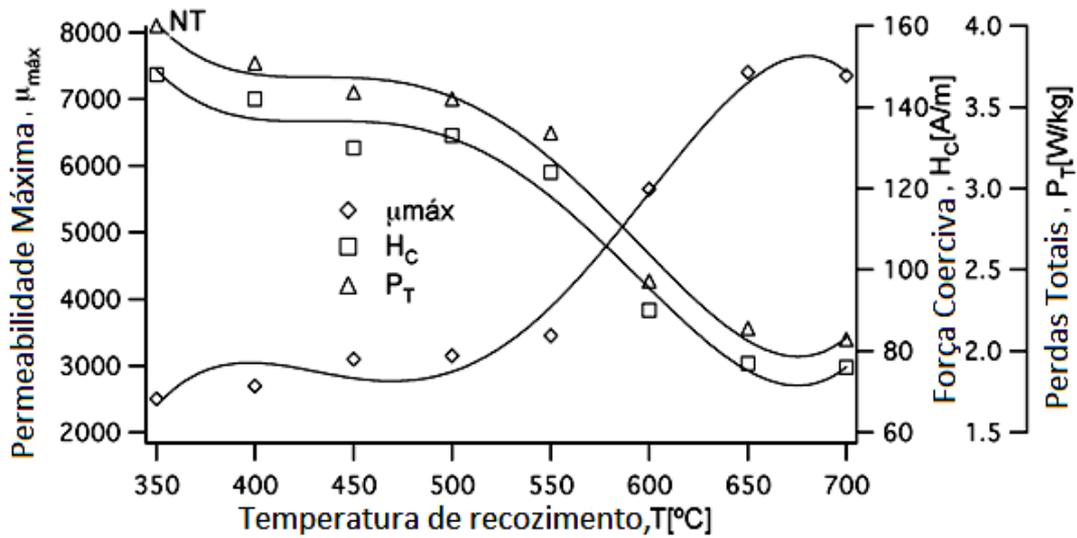


Figura 4. Perdas, Força Coerciva e Permeabilidade máxima em função do tratamento térmico na faixa de temperatura de 400-700°C. Os valores são: P_T = 4.08 W/kg, H_C = 150 A/m e μ_{max} = 2500

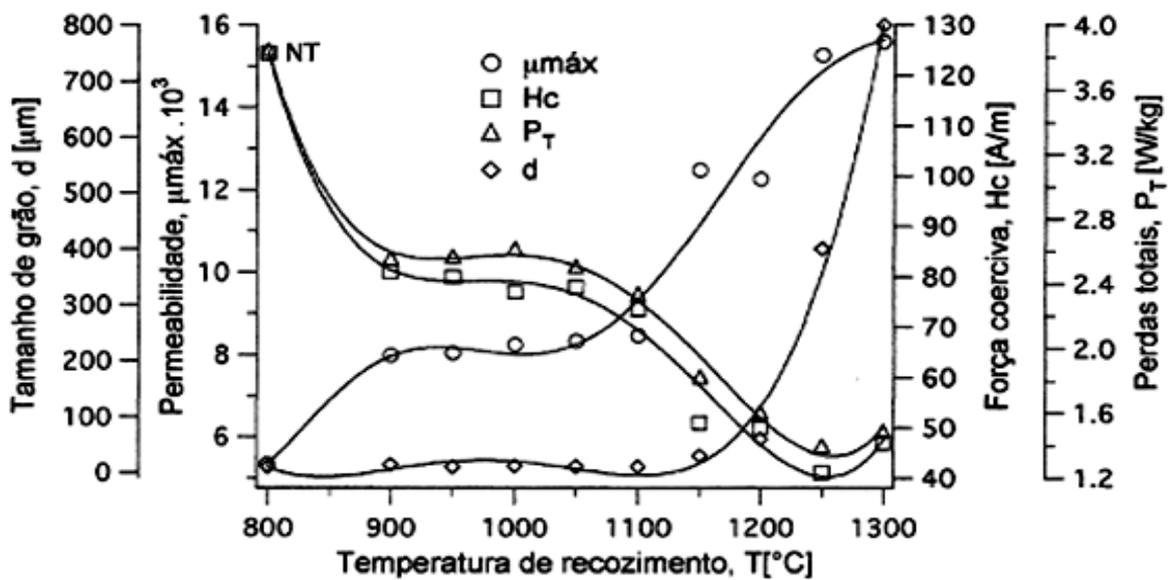


Figura 5. Tamanho do grão, Perdas, Força Coerciva e Permeabilidade Máxima em função do tratamento térmico na faixa de temperatura de 800-1300°C. Os valores são: P_T = 3.66 W/kg, H_C = 121 A/m e μ_{max} = 5400

As Figuras 6 e 7 mostram áreas selecionadas de padrões de difração de elétrons [001] e [012] e micrografias obtidas em campo escuro usando reflexão de super-rede 200, no qual apresentou contornos antifase com vetor de Burgers 1/4 <111>

imperfeitos em volta dos domínios de antifase B₂ (cerca de 100 a 750nm de tamanho).

A estrutura de domínio B₂, bem desenvolvido para o depósito recozido, foi formada por uma segunda transição A₂→B₂ que ocorreu devido à taxa de resfriamento após a

solidificação do depósito e as condições de recozimento, respectivamente.

O resfriamento relativamente rápido por Conformação por Spray e as condições de tratamentos térmicos impediram a formação da fase DO_3 .

Micrografias de MET, obtidas em campo escuro, contendo imagens de contornos de antifase são mostrados nas Figuras 6 e 7. A reflexão 200 foi utilizada para obter as imagens de campo escuro. O tamanho dos domínios de antifase B_2 é na faixa de 100 a 500nm para o tratamento térmico à temperatura de 700°C e 100 a 750nm para temperatura de 1250°C para as amostras.

Neste experimento, o excesso de energia livre no contorno de antifase é isotrópico, então ele é suavemente curvado [27]. O limite suavemente curvo tem um vetor de deslocamento do tipo $(\alpha/2) \langle 111 \rangle$ [27].

O recozimento a 700 ° C não afeta o tamanho de grão (que só cresce para temperaturas acima de 1100°C), mas induz um aumento significativo do tamanho dos domínios de antifase B_2 , como mostrado nas Figuras 5 e 6b.

O crescimento de domínio antifase B_2 foi associada com a diminuição da perda de energia devido a diminuição dos contornos de antifase que atuam como defeitos estruturais, no qual dificultam o movimento das paredes de domínio [28].

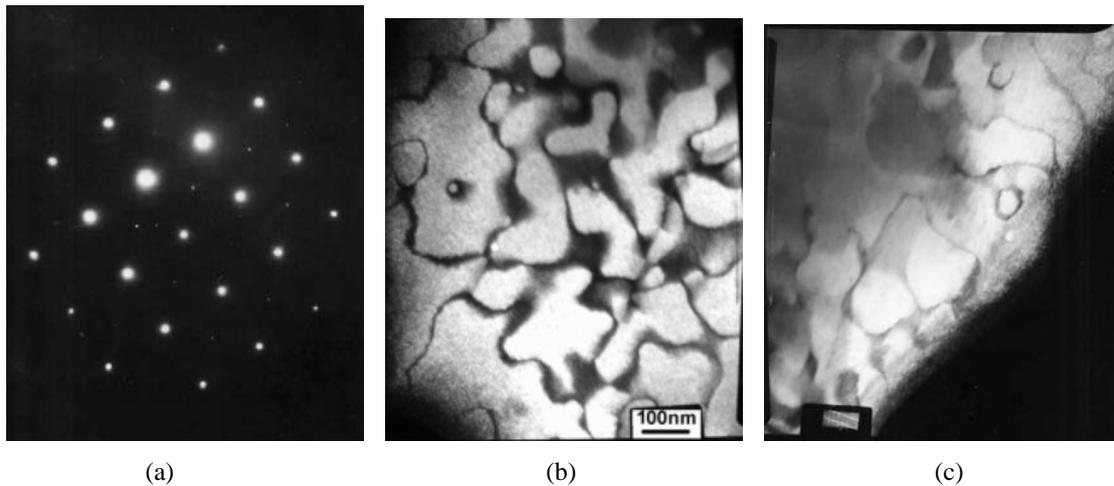


Figura 6. Micrografias: (a) Padrão de difração de elétrons [001] característico da estrutura B_2 ; (b) Domínios de antifase B_2 e (c) MET dos domínios de antifase $\frac{1}{4}\langle 111 \rangle$ da fase ordenada B_2 da liga Fe-6.5%Si para a temperatura de resfriamento a 700°C, obtidos usando reflexão de super-rede 200

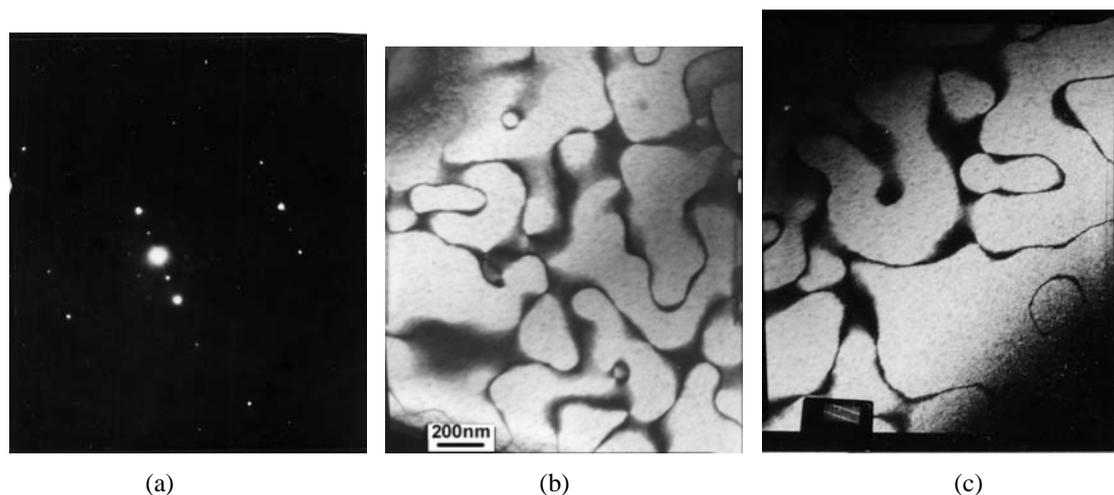


Figura 7. Micrografias: (a) Padrão de difração de elétrons [012] característico da estrutura B_2 ; (b) Domínios de antifase B_2 mostrando os contornos de domínios de antifase (c) MET do domínio de antifase da estrutura B_2 da liga Fe-6.5%Si para as condições de recozimento a 1250°C por 1h sob vácuo, obtido usando a reflexão de super-rede 200

A Figura 8 apresenta a microestrutura e o padrão de difração de elétrons [110] obtidos por micrografia MET. A existência de pares de superdiscordâncias pode ser claramente

visto (Figura 8b). O padrão de difração estabelece a fase ordenada DO_3 sob esta condição de processamento.

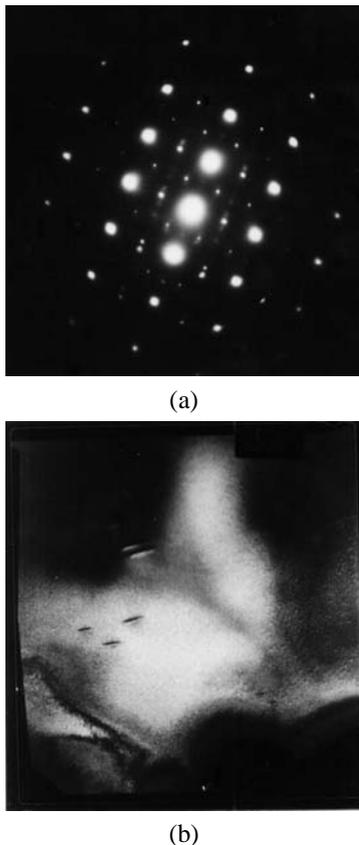


Figura 8. Micrografias: (a) Padrão de difração de elétrons [110] característico das estruturas $B_2 + DO_3$; (b) Micrografia em campo claro para amostra recozida a 1250°C e de resfriamento a 700°C, obtidos usando a reflexão de super-rede 200 (Nota-se os pares de superdiscordância)

7. Conclusões

Para o tratamento térmico de resfriamento a 700°C por 1h e para as amostras após o recozimento a 1250°C durante 1 hora sob vácuo, as propriedades magnéticas foram melhoradas. As melhorias no tratamento térmico de resfriamento a 700°C por 1h foram atribuídas ao crescimento do domínio de antifase B_2 , pois não foi observado crescimento de grão.

Para as amostras após o recozimento a 1250°C durante 1 hora sob vácuo, as melhorias nas propriedades magnéticas foram atribuídas à diminuição da densidade dos contornos de antifase, discordâncias e defeitos estruturais e ao crescimento de grão.

Essas propriedades, que são consideravelmente melhores que os da liga comercial Fe-3%Si de grão não-orientado, e a isotropia, conseguidas pelo processo de Conformação por spray e depois de recozidas, torna o material atraente para aplicações em dispositivos rotativas e transformadores de pequena potência. Além disso, não houve melhoria nas propriedades magnéticas após recozimento a 500 ° C por 1

hora seguinte e a presença da superestrutura DO_3 causou a deterioração das propriedades magnéticas nas amostras obtidas por Conformação por Spray.

Referências

- [1] Silva, M. C. A., Bolfarini, C., Kiminami, C. S., Machado, R., Kaufman, M. J. Magnetic Properties of Spray Formed Fe-6.wt%Si Alloy. *Petch'99, Key Engineering Materials*, 1, 640-646, 2001.
- [2] Raviprasad, K., Tenwick, M., Davies, H. A., Chattopadhyay K. The nature of ordered structures in melt spun iron-silicon alloys. *Scripta Metallurgica*, 20 (9), 1265-1270, 1986.
- [3] Matsumura, K., Fukuda, B. Recent developments of non-oriented electrical steel sheets. *IEEE. Trans. Mag.*, 7, 48-60, 1971.
- [4] Andrade, P. R. C., Fernandes, W. M. A., Lana, N. O. A. Fabricação de aços ao silício de grão orientado na ACESITA. I Seminário de Materiais Magnéticos, 1987 Nov 9-12, São Paulo: Associação Brasileira de Materiais, p.103-115, 1987.
- [5] Honma, K., Nozawa, H., Shimoyama, Y. Development of non-oriented and grain-oriented silicon steel. *IEEE. Trans. Mag.* 21, 1903-1908, 1985.
- [6] Fiorillo, F. Advances in Fe-Si properties and their interpretation. *J.M.M.M.*, 157/158, 428-431, 1996.
- [7] Okada, K., Yamaji, T. e Kasai, K. Basic investigation of CVD method for manufacturing 6.5%Si steel sheet. *ISIJ International*. 36 (6), 706-713, 1996.
- [8] Haiji, H. Okada, K., Hiratani, T., Abe, M. and Ninomiya, M. Magnetic properties and workability of 6.5%Si steel sheet. *J.M.M.M.*, 160, 109-114, 1996.
- [9] Maniar, G. N., Debold, T. A. Soft magnetic Alloys. *Advanced Materials & Process*, 1, 57-59, 1998.
- [10] Arai, K. I., Ishiyama, K. Recent development of new soft magnetic materials. *J.M.M.M.*, 133, 233-237, 1994.
- [11] Takada, Y., Abe, M., Masuda, S., Inagaki, J. Commercial scale production of Fe-6.5wt.%Si sheet and its magnetic properties. *J. Appl. Phys.*, 6410, 5367, 1988.
- [12] Ciurzynska, W. H. Magnetic susceptibility disaccommodation and mössbauer studies of high silicon-iron obtained by different methods. *J.M.M.M.*, 188, 346-352, 1998.
- [13] Singer, A. R. Recent developments in the spray forming of metals. *International Journal of Powder Metallurgy & Powder Technology*, 21 (3), 219-234, 1985.
- [14] Grant, P. S. Spray Forming. *Progress in Materials Science*, 39 (4-5), 497-499. 1995.

- [15] Leatham, A. G., Elias, L., Yaman, M., Itami, T., Kawashima, Y., Brooks, P. J. S., Hummert, K., Tyler, D. E., Cheskis, P., Dalal, R. P. And Prichard, P. D. Spray forming - commercialisation and applications. Proc. of P/M World Congress, San Francisco, USA, 1, 66–76, 1992.
- [16] Juarez-Islas, J. A., Campillo, B., Perez, R., Su, S. and Lavernia, E. J. Characterization of a Solid Solution of Cu in Al-Cu-Si-Cp Metal Matrix Composites Processed by Spray Atomization and Co-Deposition. Journal of Materials Science, 33, 259-263, 1998.
- [17] Lawley, A. Proceedings of a seven session symposium on enhanced properties in structural metals via rapid solidification, 1986 Oct 6-9. Orland, Flórida, 1986.
- [18] Ricksison, B. A., Davies, D. R. G. CSD: A Novel Process for Particle Metallurgy Products. Petch'99, Power Met. 24 (1), 1-6, 1981.
- [19] Megusar, J., Lavernia, E. J., Domalavagep., Grant, N. J. Structures and Properties of Rapidly Solidified 9 Cr-1 Mo Steel. Journal of Nuclear Materials, 122-123, 789-793, 1984.
- [20] Hartmann, G., Hansen, P. N., Sahm, P. R. Spray casting modeling. Conference on modeling of casting and welding process, 1988 April, Palm Coast, Florida, USA. Proceeding, 1988.
- [21] Mocelin, A., Fougères, R., Gobin, P. F. A study of damage under tensile loading in a new Al-Si-Fe alloy processed by the osprey route. J. Mat. Sci. and Eng, 28, 4855-4861, 1993.
- [22] Annavapar, S., Apelian, D., Lawley, A. Spray casting of steel strip: process analysis. Metallurgical transaction, 21A, 3237-3254, 1990.
- [23] Lavernia, E. J., Grant, N. J. Spray deposition of metals: A review. Journal Materials Science and Engineering, 98, 381-394. 1988.
- [24] Swann, P. R., Grannas, L., Lehtinen, B. The B₂ and DO₃ ordering reactions in iron-silicon alloys in the vicinity of the curie temperature. Metal Science, 9, 90-95, 1975.
- [25] Matsumura, S., Matsumura, S., Tanaka, Y., Koga, Y., Oki, K. Concurrent ordering and phase separation in the vicinity of the metastable critical point of order-desorder transition in Fe-Si alloy. Materials Science & Engineering A. vol. 312, p284-292. 2001.
- [26] Leal, V. S. Conformação por spray da liga Fe-6%Si: Estudo do processo e da microestrutura [Tese de doutorado]. São Carlos: Universidade Federal de São Carlos, 1999.
- [27] Narita, K., Enokizono, M. Effect of ordering on magnetic properties of Fe-6.5%Si alloy. IEEE Transactions on Magnetics, 15, 911-915, 1979.
- [28] Silva, M. C. A. Bolfarini, C., Kiminami, C. S., Machado, R., Kaufman, M. J. Magnetic Properties of Spray Formed Fe-6.wt%Si Alloy. Key Engineering Materials, 189-191 (189-191), 643-648, 2001.