UDC 669.245.1.046.5:621.365.9:533.9

プラズマ誘導炉溶解パーマロイ合金の 特性について

加藤 哲男*, 矢萩 慎一郎**

Properties of Two Fe-Ni Magnetic Alloys Melted by Plasma Induction Furnace

Tetsuo Katô and Shin-ichirô Yahagi

Synopsis

Using plasma induction furnace, two Fe-Ni magnetic alloys, 80Ni-4Mo-Fe and 45Ni-Fe were melted with marketed scrap as raw material and their properties were investigated.

There obtained such excellent magnetic properties of the alloys as almost similar to those from conventional vacuum induction furnace.

And some general characteristics of magnetic properties were confirmed as follows:

- (1) Improvement of magnetic properties with proceeding the working process from forging to cold rolling.
- (2) Growth of grain by increase annealing temperature and time with better magnetic properties.
- (3) Remarkable change of magnetic properties by cooling rate after annealing the 80Ni-4Mo-Fe alloy.

1. 緒 言

Fe-Ni 系高透磁率磁性材料は、一般にパーマロイと呼ばれており、その磁気特性は Ni 成分によって多様に変化し、種々の用途に多方面に利用されている。

このうち、JIS規格¹⁾でPCおよびPBパーマロイ合金は高透磁率材料として知られている。

PCパーマロイ合金は、約80%Ni-Feを主成分とし、これに、二の合金元素を添加したものであり、これまで知られている磁性材料のうちで、最も高い直流透磁率と最も小さい保磁力を有する高透磁率材料と

なっている。この高透磁率を利用して、磁気テープ記録装置において、磁気ヘッド材料としても利用されている。最近、クロムテープの出現に伴い、磁気ヘッドの耐摩耗性が急速に重要な問題として浮び上がってきており、種々の合金元素を含む耐摩耗性パーマロイが活発に研究開発されてきている^{2), 3)}。

PBパーマロイ合金は約45%Niを主成分とし、Fe-Ni系磁性材料のうち、飽和磁気が高く透磁率も比較的すぐれた値を示し、またPCパーマロイ合金に比べて安価で、かつ磁性の安定度も高いことから、広範な需要がある。最近では、被削性向上を図った材料の開発もすすんでいるようである。

パーマロイ合金に関しては、古くから数多くの研究がなされてきている⁴⁾が、たとえばC、Sやそのほか不純物元素はいずれも磁気特性上、きわめて有害とさ

昭和49年6月26日受付

*大同製鋼株式会社研究開発本部中央研究所、工博

**大同製鋼株式会社研究開発本部中央研究所

れており^{5), 6), 7)}, 安定した高透磁率を得るために, 従来から高純度原料を用いた真空誘導炉溶解による製造が行われてきている。

これに対して, さきに大同製鋼所においてプラズマ誘導炉が開発され^{8), 9)}, 炉の操業に関する研究がすすめられているが^{10), 11)}, これは下記のような特徴をもちパーマロイ合金の溶解に非常に適しているといえることができる。

- (1) Ar ふん囲気溶解により, 溶解中大气からの汚染がない。
- (2) 溶鋼上部からの高温プラズマアークの利用により, スラッグの使用が可能となることから, 脱炭, 脱硫, 各種の脱ガスなど溶解中の精錬ができる。

(3) 精錬により, 不純物を含むスクラップを原料としても溶解ができる。

以上の事由により, Mo 入りのPCパーマロイおよびPBパーマロイ合金をとりあげ, プラズマ誘導炉溶解による試作製造を行ない, 諸性質に関する調査, 試験を行なった。その結果について報告する。

2. 供試材および製造加工

PC, PBパーマロイ合金ともプラズマ誘導炉により500kg溶解し, 各250kgの鑄塊2本を造塊した。スクラップの配合量は両合金ともおよそ80%である。

化学成分をTable 1に示す。Table 2にPCパーマロイ合金の場合について, 溶解直後と精錬後の不純

Table 1. Chemical compositions of specimens.

	C	Si	Mn	P	S	Cu	Ni	Cr
PC permalloy	0.002	0.08	0.55	0.006	0.003	<0.01	80.40	<0.02
PB permalloy	0.002	<0.02	0.68	0.008	0.004	<0.02	46.21	<0.03
	Mo	Co	S. Al	I. Al	N	O	Fe	
PC permalloy	4.05	<0.03	0.005	<0.002	0.001	0.0010	bal.	
PB permalloy	0.02	<0.03	0.003	<0.002	0.005	0.002	bal.	

Table 2. Comparison of impurities in PC permalloy immediately after melt down and after refining.

	Immediately after melt down	After refining
C	0.025	0.002
S	0.010	0.003
O	0.020	0.0010

物(C, S, O)量について比較した結果を示した。充分精錬効果が発揮されているといえることができる。

PCパーマロイおよびPBパーマロイ合金それぞれについて厚さ1.0mmの冷間圧延板材について, 清浄度試験を実施したが, いずれの場合も全介在物は面積率にして0.01%であった。両合金ともB系介在物はまったく認められず, プラズマ誘導炉溶解により充分清浄な材料の得られることが確認できた。

鋼塊の鍛造は低いおう重油を用い, 約1,250°Cに加熱して厚さ約75mmのビレットを作った。高温での強度が比較的高く, 少し低温になると加工性の低下がみられるので, 鍛伸作業には充分な注意を払った。続いて厚さ約3.5mmまで熱間圧延し, それから冷間圧延を行なった。熱間および冷間加工性にはとくに大き

な問題はなく, 冷間圧延は圧下率をほぼ50%と一定にして, 中間焼なましを施しながら加工を進め, 最終0.35mmから0.1mm厚さの板とした。

3. 実験方法

3.1 磁気試験片および磁気焼なまし

試験素材から切削または打抜きにより, JISにきめられた外径45mm, 内径33mmの環状試片を作成した。

磁気試験に先立って, 環状試片の磁気焼なましを行なった。使用した熱処理炉は, 棒状エレマ発熱体による外熱式である。炉心管内部にガスを通過させ, 水素気流中で焼なましした。水素ガスは日本純水素製の水素精製装置LW-06 SC(パラジウム膜通過方式)を使用させ, 高純度にして使用した。高温加熱保持後は炉中冷却とした。冷却速度は600°Cで約140°C/hr, 300°Cで100°C/hr, 600~300°Cまでの平均冷却速度は120°C/hrであった。

3.2 直流磁気測定

JIS法に基づいて試験を行なった。測定は東英工業製の自動自記磁束計(Type TRF 4A)を用いて, 磁化およびヒステリシス曲線を描き, それにより最大透磁率 μ_m , 初透磁率 $\mu_{0.005}$ および保磁力 H_c などを求めた。測定に先立って, 各試片とも理研電子製E

MS 1型により 60Hz で交流消磁を行なった。

3. 3 実効透磁率測定

実効透磁率 (μ_e) は, JIS 法に基づき, 安藤電気製 AE-27 型マクスウェルブリッジを用いて測定した。発振器は安藤電気製 TCO-22B, 検波増幅器は横河ヒューレットパッカード製 4403A を使用した。消磁方法は前記と同じである。

4. PC パーマロイ合金に関する試験結果

4. 1 一般的諸特性

Fig. 1 に熱間加工性を調べる目的で, 950~1,250 °C の各温度で行なった熱間ねじり試験の結果を示した。試験片ゲージ部は直径 8 mm, 長さ 32 mm である。試験温度が上昇するにつれて, 破断ねん回値は増大し, 最大トルク値は低下している。とくに 1,200 °C 以上でのねん回値の上昇が大きく, この温度において充分鍛造可能な熱間加工性を示している。

Fig. 1. Results of hot-torsion test of PC permalloy.

Fig. 2. Effect of annealing temperature on Erichsen value and hardness of PC permalloy.

Fig. 2 に厚さ 0.1mm の冷延板について, 200~900 °C の各温度でそれぞれ 30min 熱なましした時のマイクロビッカースかたさ, およびエリクセン値の測定結果を示す。400 °C までは, 焼なまし温度が上がるとややかたさ上昇の傾向がみられる。これは低温焼なまし硬化であろうと推定される¹²⁾。600 °C 以上の焼なましにより軟化が認められ, エリクセン値は単調に増加している。

その他の二, 三の物理的性質についての測定結果を Table 3 にまとめて示した。

Table 3. General properties of PC permalloy.

Electrical resistivity	57.8 $\mu\Omega \cdot \text{cm}$
Curie temperature	403 °C
Lattice constant	3.56 Å
Density	8.6 g/cm ³

4. 2 磁氣的性質

Fig. 3 は, 鍛造状態から熱間圧延し, 1.0mm 厚の冷延状態としたときの各加工段階における磁性について試験した結果を示す。この間, 工程が進むに従い磁性が向上していることが認められる。この原因として (i)板厚の違いによる表面効果 (ii)加工状態の違いによる結晶粒成長速度の違いなどが考えられるが, こ

Fig. 3. Change of magnetic properties with working process of PC permalloy.

のような加工工程による特性変化および薄板での変化状況と原因の調査について、別途さらに詳細な調査を予定している。

Fig. 4 に、厚さ 1.0mm の冷延材から切り出したサンプルについて測定した焼なまし温度と磁性の関係を示した。焼なまし試験は 400~1,200°C の間で行なった。焼なまし温度の上昇と共にほぼ単調に磁性が向上している。800°C 以上での向上が大きい。これは高

Fig. 4. Effect of annealing temperature on magnetic properties in PC permalloy.

Fig. 5. Effect of annealing time on magnetic properties and grain size of PC permalloy.

温側の焼なまし温度で結晶粒の成長が起こることに起因しているものといえる。実用上は約 1,100°C の温度で焼なましすることが多いが、これにより最大透磁率約 310,000、保磁力約 0.010Oe の磁性が達せられた。1,200°C 焼なましによりさらに特性は向上している。

Fig. 5 は、前と同一寸法の試片について、焼なまし温度を 1,100°C に一定に保った時の焼なまし時間による磁性と結晶粒の変化について試験した結果を示す。1 hr から 6 hr まで変化したが、焼なまし時間が長くなるにつれて結晶粒は粗大化し、初透磁率、最大透磁率とも単調に増加し、すぐれた磁性となっている。

Fig. 6 に、上記の結果から結晶粒と透磁率の関係をまとめ直して図示した。すでに知られているように、両者に明らかな相関が認められる。保磁力と結晶粒径についても、同様な相関が観察された。

Fig. 7 に、厚さ 1.0mm の冷延材から切り出したサンプルについて、焼なまし後の冷却速度と磁性の関係について試験した結果を示した。本試験では設備の都合により、いったん、1,100°C × 2 hr 水素気流中で焼なまし後、室温まで炉冷し、続いて 900°C に再度 1 hr 加熱保持してから種々の冷却速度で約 100°C まで制御冷却した。冷却速度が 40°C/hr 近くで、磁性はピークを示している。冷却速度の変化により、最大透磁率は約 30×10^4 から 40×10^4 、初透磁率について

Fig. 6. Grain size dependence of magnetic properties of PC permalloy.

Fig. 7. Effect of cooling rate after annealing on magnetic properties of PC permalloy.

は、約 11×10^4 から 25×10^4 までの変動が測定された。

この変動については、PCパーマロイ合金の短範囲規則化状態が冷却速度により変化し、それにより異方性定数などが変化するため、磁性へ大きな影響を与えるものといわれているが^{(18), (14)}、実際に透磁率はきわめて冷却速度に敏感であることが確認された。さらに、主成分により最適冷却速度が変わるとされているが^{(18), (15), (16)}、実用上からも冷却速度と成分のは握は重要な事項である。

Fig. 8 は、0.1mm から 0.35mm までの板厚の試片について、測定周波数による実効透磁率の変化について試験した結果を示した。充分すぐれた値と考えられる。

Fig. 8. Frequency dependence of effective permeability of PC permalloy.

5. PBパーマロイ合金に関する試験結果

PCパーマロイ合金の場合と同様に、PBパーマロイ合金についても試験を行なった。

5.1 一般的諸特性

Fig. 9. Effect of annealing temperature on mechanical properties of PB permalloy.

Fig. 9 に厚さ 1.0mm の冷延材について 200~1,100°C の各温度で、それぞれ 1 hr 焼なまし時の機械的性質の変化を示す。400°C までは、耐力、引張強さおよびかたさがいずれも若干増しているが、この状況は P C パーマロイ合金においても見られた傾向である。軟化は約 750°C 近くで起こり、P C パーマロイ合金よりもわずかに低温である。

物理的特性の測定結果を Table 4 に示した。

Table 4. General properties of PB permalloy.

Electrical resistivity	47.7 $\mu\Omega\cdot\text{cm}$
Curie temperature	423 °C
Lattice constant	3.59 Å
Density	8.2 g/cm ³

5. 2 磁 気 特 性

Fig. 10 に加工工程による磁性の変化を示した。P C パーマロイ合金の場合と同様、鍛造、熱間圧延、冷間圧延と加工工程が進むにつれて磁性が向上している。

Fig. 11 に焼なまし温度と磁性の関係について試験した結果を示した。試片板厚は 1.0mm である。900~1,200°C の間で試験を行なったが、各温度 2 hr 保持後、炉中冷却としている。焼なまし温度の上昇と共に、単調に磁性は向上している。通常、工業的に実施される 1,100°C 焼なまし後、最大透磁率 51,000、保磁力 0.10Oe が測定された。

上記の結果から、Fig. 12 に結晶粒径と保磁力および最大透磁率の関係をまとめ直して示した。明らかに

Fig. 10. Change of magnetic properties with working process of PB permalloy.

Fig. 11. Effect of annealing temperature on magnetic properties of PB permalloy.

Fig. 12. Grain size dependence of magnetic properties of PB permalloy.

Fig. 13. Erequency dependence of effective permeability of PB permalloy.

結晶粒粗大化と共に磁性の向上が観察される。

Fig. 13 に厚さ 0.35mm の冷延板について、1,100°C × 2 hr 焼なまし後の実効透磁率と測定周波数の関係について試験した結果を示した。図中に JIS 規格値を示したが、明らかに JIS をはるかに上回る高い実効透磁率が得られている。

6. 総括および結言

プラズマ誘導炉溶解により、PC および PB パーマロイ合金を溶解し諸特性の調査を行なった。その結果、スクラップ原料を用いても精錬効果によりすぐれた特性のパーマロイを製造することができた。そのほか両材料について、つぎのような特性が確認された。

- (1) 加工工程が、鍛造、熱間圧延、冷間圧延と進むほど、磁性の向上が認められた。
- (2) 最終焼なましにおいて、焼なまし温度の上昇および時間の増加に従い結晶粒が粗大化し、それにつれて磁性は向上する。
- (3) PC パーマロイ合金の場合には、高温加熱保持後の冷却速度によって磁性が大きく変化する。
- (4) 一、二の機械的性質のほか、交流磁性についてもほぼ満足すべき値が得られた。

(文 献)

- 1) JIS C2531-1971 鉄・ニッケル磁性合金板および条
- 2) 長島：電気学会誌，91 (1971) 7, 14
- 3) 増本，村上，比内：日本金属学会誌，35 (1971)，985, 36 (1972)，63, 38 (1974)，238
- 4) たとえば G. Y. Chin : Trans. IEEE Mag, MAG-7 (1971) 1, 102
- 5) S. L. Ames : J. Appl. Phys., 41 (1970) 3, 1032
- 6) D. A. Collins & R. G. Aspden : J. Appl. Phys., 40 (1969) 3, 1571
- 7) D. A. Collins & R. G. Aspden : J. Appl. Phys., 41 (1970) 3, 1040
- 8) 江口，加藤：電気製鋼，28 (1967) 3, 113
- 9) 野田，浅田，江口，足立，林：電気製鋼，41 (1970) 4, 267
- 10) 梶山，手塚，杉浦：Proceedings of 4th International Conference on Vacuum Metallurgy, Tokyo in Japan (1973) Jun.
- 11) 梶山，手塚，杉浦，栗本：電気製鋼，45 (1974) 3, 155
- 12) 永井，辺見：日本金属学会誌，34 (1970)，943
- 13) R. D. Enoch & A. D. Fudge : Brit. J. Appl. Phys., 17 (1966)，623
- 14) H. H. Scholefield, R. V. Major, B. Gibson & A. P. Martin : Brit. J. Appl. Phys., 18 (1968)，41
- 15) K. Aoyagi : Japan. J. Appl. Phys., 4 (1965) 8, 551
- 16) P. Cohen : J. Appl. Phys., 38 (1967) 3, 1173