UDC 621.318.132-415:669.15.782:621.783

論文

57-A21

高ケイ素鉄薄帯の熱処理

正員 大森 賢次 (東北大)

正員 津屋 昇 (東北大)

正員 荒井 賢一 (東北大)

非会員 青池 達行 (東北大)

1. はじめに

ケイ素鋼板は優れた軟磁気特性を有し、低鉄損、高磁束密度、高抵抗であり、更にキュリー温度が高く、かつ安価であることから電気鉄板として欠くことのできない電気材料である。

現在使用されているケイ素鋼板のケイ素含有量は1~4%程度であり、その磁氣的ならびに電気的特性の改善を図るための最適圧延および焼きなましの研究が従来盛んに行なわれてきた。その結果、先鋭に発達した二次再結晶組織をもった方向性ケイ素鋼板が得られるようになり、鉄損が激減してきた⁽¹⁾。

さて、ケイ素鉄合金の結晶磁気異方性は、ケイ素の添加量の増加に伴い減少すると同時に、磁気ひずみが6.5%ケイ素添加でほぼ零になることが古くから知られている⁽²⁾。このことは、6.5%ケイ素添加により現在使用されているケイ素鋼板より更に優れた軟磁気特性および低鉄損が期待される⁽³⁾。また特に磁気ひずみが零となることから、動作時に発生する騒音公害を著しく減少させることが期待できる。しかし、高ケイ素含有のケイ素鋼板は固くてもろいため、大規模圧延が困難であり、工業化は実現しなかった⁽⁴⁾。

近年、エネルギー節約の観点からケイ素鋼板作製時の使用エネルギー、および動作時のエネルギー損を減少させることの必要性が強く叫ばれるようになり、新たに6.5%ケイ素鋼板が見直され始め、その大規模な圧延工程が可能となるように種々の研究が行なわれて

きた⁽⁵⁾⁽⁶⁾。

著者らは、既に軟磁気特性が優れた6.5%程度のケイ素を含む、いわゆる高ケイ素鉄合金薄帯を得る目的で、この合金を加熱溶融し、これを噴流として、高速回転する金属性ディスクで起急冷する融体超急冷法により高ケイ素鉄合金の薄帯化実験を行ない、期待どおり極めて優れた機械的および磁気的特性を有する薄帯が得られることを報告した⁽⁷⁾⁽⁸⁾。

本論文では、ロール法による融体超急冷法により得られた6.6Si-93.4Feなる組成を有する高ケイ素鉄合金薄帯を真空中で焼きなましする際、真空度の違いによる結晶粒組織の変化、ならびにそれに伴う磁気特性の変化について測定した結果を報告する。

2. 実験方法

本実験で用いた6.6Si-93.4Fe薄帯試料は、ロール法による融体超急冷法で作製した⁽⁸⁾。本方法は高ケイ素鉄母材を先端に小孔を有する石英管中に収め、SiC電気炉で加熱溶解し、溶融母材を先端の小孔から噴出させ、高速回転しているロールより超急冷、圧延し、長尺薄帯を得るものである。

本実験では、純度99.7%の電解鉄、純度99.9%のケイ素を高純度アルミナをつば中でアルゴン気中高周波溶解を行なうことにより高ケイ素鉄母材を得た。

薄帯作製の条件は、ロール直径 $6.5 \times 10^{-2} \text{ m}$ 、回転数1,000rpm、溶融ケイ素鉄母材温度1,773K、小孔直径 $4 \times 10^{-4} \text{ m}$ 、噴出圧力 $4 \times 10^2 \text{ Pa}$ であり、得られた寸法は幅 $2 \sim 4 \times 10^{-3} \text{ m}$ 、厚さ $6 \sim 8 \times 10^{-5} \text{ m}$ 、長さ $2 \sim 4 \text{ m}$ であった。薄帯の格子定数は $2.65 \times 10^{-10} \text{ m}$ 、薄帯表面における結晶粒直径は約 10^{-5} m 、薄帯断面の中心部には薄帯面に平行に結晶粒界が観測された。

得られた高ケイ素鉄薄帯を0.1m長に切断し、実験試料とした。実験装置の概略を示したのが図1であ

Annealing of High-Silicon Iron Ribbons. By Kenji Ohmori, Member, Noboru Tsuya, Member, Kenichi Arai, Member & Tatsuyuki Aoiike, Non-member (Research Institute of Electrical Communication, Tohoku University).

大森賢次：正員，東北大学電気通信研究所
津屋 昇：正員，東北大学電気通信研究所
荒井賢一：正員，東北大学電気通信研究所
青池達行：非会員，東北大学電気通信研究所

図 1 熱処理用実験装置

Fig. 1. Experimental apparatus for annealing.

る。電気炉としては赤外線集中加熱炉（真空理工社製 8kW）を用いた。炉のヒータ長は $2.54 \times 10^{-1} \text{m}$ 、炉の中心から $\pm 5 \times 10^{-2} \text{m}$ 以内の温度差は 5K 以下である。また電気炉には、真空中熱処理を可能とするために長さ 1m、内径 $1.25 \times 10^{-2} \text{m}$ の透明石英管を通し、その一端のステンレス鋼フランジにピラニー真空計を接続した。薄帯試料は内径 $4.5 \times 10^{-3} \text{m}$ の不透明石英管中に収め、上記石英管中にそう入し電気炉の中心部に設置した。ピラニー真空計の真空度測定範囲は $1.3 \times 10^{-1} \sim 1.3 \times 10^2 \text{Pa}$ である。油回転式真空ポンプを使用した場合の到達真空度は $6 \times 10^{-1} \text{Pa}$ 、油拡散式真空ポンプを使用した場合には $2 \times 10^{-1} \text{Pa}$ であり、熱処理中の真空度はリークバルブの調節により制御した。電気炉の昇温速度はすべて実験において 3 K/s とし、冷却は炉冷としたが、その冷却速度は、例えば 1,453K から 423K までに約 10 分を要した。

3. 実験結果

ロール法により作製された 6.6Si-93.4Fe 薄帯を用い、真空度を変化させ熱処理を施した場合の薄帯の磁気特性および結晶粒組織の変化を観測した。

図 2 6.6Si-93.4Fe 薄帯を 1,453K で 1 時間熱処理した場合の真空度と保磁力の関係

Fig. 2. Pressure dependence of the coercive force of 6.6Si-93.4Fe ribbon in annealing at 1,453K for 1 hour.

〈3・1〉 磁気特性 図 2 は 6.6Si-93.4Fe 薄帯を 1,453K で 60 分間真空度を変えて熱処理した場合の真空度と保磁力 H_c の関係を示したものである。ただし、測定はすべて前述のように長さ 10^{-1}m の薄帯を用い、特に反磁界による補正は行なっていない。また保磁力は印加直流磁界 160 A/m のもとでの値を示している。図 2 から明らかなように、40Pa 付近の低真空度で熱処理を施した場合、保磁力は 4.4 A/m を示し、他の真空度で熱処理を施した場合と比較すると最低値を示す。この真空度より更に低真空度のもとで熱処理を施した場合、薄帯表面が白濁し酸化が著しく進行した状態を示し、それに伴って保磁力も増大する傾向を示した。また、真空度を 40Pa より向上させた場合も保磁力は増大する傾向がみられ、2Pa では 8.8 A/m、油拡散式真空ポンプを用い 0.3~0.4 Pa 程度の高真空に保った場合は 8.0 A/m の値を示した。しかしながら、油拡散式真空ポンプと油回転式真空ポンプの切換え真空度付近では、保磁力が $\pm 0.16 \text{A/m}$ 程度のばらつきを示した。

図 3、図 4 および図 5 は 40Pa、2Pa および 0.2Pa の真空度で熱処理を施した薄帯の静的ヒステリシス特性を示したものである。これらの図から理解されるように、低真空度で熱処理を施した薄帯のヒステリシス曲線は通常の軟磁気特性を有する薄帯の、例えばセンダスト薄帯などのヒステリシス曲線とよく似ている⁽⁹⁾。一方、2Pa の真空度で熱処理した薄帯のヒステ

図 3 40Pa の真空度で熱処理を施した薄帯の静的ヒステリシス特性

Fig. 3. Static B - H loop of ribbon annealed at pressure 40Pa.

図 4 2Pa の真空度で熱処理を施した薄帯の静的ヒステリシス特性

Fig. 4. Static B - H loop of ribbon annealed at pressure 2Pa.

図 5 0.2Pa の真空中で熱処理を施した薄帯の静的ヒステリシス特性

Fig. 5. Static B - H loop of ribbon annealed at pressure 0.2 Pa.

リシス曲線は、少々ではあるが蛇形特性を示し、同時に 160 A/m の印加磁界のもとでの磁束密度で低下する。更に 0.2 Pa の高真空中で熱処理した場合、磁束密度は 2 Pa の場合とほとんど変わらず、ヒステリシス曲線の蛇形特性は消失するものの、角形性を帯びてくることが理解される。

〈3・2〉 結晶粒組織 真空中で熱処理を施した薄帯は、67 Pa より低真空側で熱処理を施した薄帯を除き、すべて金属光沢を有する。しかしながら、その表面状態は熱処理中の真空度の違いによって異なる。図 6、図 7 は 40 Pa および 2 Pa の真空中で熱処理を施した薄帯表面を光学顕微鏡で観測した結果を示したものである。図 6 では明らかに薄帯表面に Striation が見られ、図 7 では見られない。この Striation は薄帯

図 6 40 Pa の真空中で熱処理を施した薄帯の表面
Fig. 6. Ribbon surface annealed at pressure 40 Pa.

図 7 2 Pa の真空中で熱処理を施した薄帯の表面
Fig. 7. Ribbon surface annealed at pressure 2 Pa.

表面が(100)面の場合に現われるものであることから、40 Pa の真空中で熱処理した薄帯面は(100)面であることが推察される。また薄帯の結晶粒径は、すべての試料において大体 $5 \sim 30 \times 10^{-4}$ m 程度であった。

40 Pa, 2 Pa および 0.2 Pa の真空度のもとで熱処理を施した薄帯を用い、Co の $K\alpha$ 線による(200)面の極点図を観測した結果を図 8、図 9 および図 10 に示した。40 Pa の真空中で処理した薄帯では 0° を中心に極めて高く鋭い極大が見られ、薄帯面は高度に集積した(100)集合組織を有していることが理解される。このことは(110)面極点図からもまた薄帯表面に Striation が現われたことから裏付けられた。一方、2 Pa の真空度および 0.2 Pa の真空中で熱処理した薄帯では、

図 8 40 Pa の真空中で熱処理を施した薄帯の(200)面の極点図

Fig. 8. (200) pole figure of ribbon annealed at pressure 40 Pa.

図 9 2 Pa の真空中で熱処理を施した薄帯の(200)面の極点図

Fig. 9. (200) pole figure of ribbon annealed at pressure 2 Pa.

図 10 0.2 Pa の真空中で熱処理を施した薄帯の (200) 面の極点図

Fig. 10. (200) pole figure of ribbon annealed at pressure 0.2 Pa.

図 11 X線により観測された薄帯面の支配的集合組織

Fig. 11. Main grain orientation of ribbons observed by X-ray measurement.

45° 付近にほぼ同心円的に極大が観測され、薄帯面は (110) 面内無方向となっていることが理解される。しかしながら、2 Pa の真空中で熱処理した薄帯では、(110) 面の外に 0° 付近に小さな極大値が見られ、(110) 面の外に少々ではあるが (100) 面も混在しており、0.2 Pa で処理した薄帯では (110) 面以外の面はほとんど見られず、ほぼ完全な (110) 面無方向組織を有していると言える。

図 11 は、6.6Si-93.4Fe 薄帯を用い、熱処理時間を 60 分とし、熱処理温度を 1,273 K から 1,523 K、真真空度を 40 Pa から 0.5 Pa まで変えた場合の薄帯面の支配的集合組織を X 線により観測した結果を示したものである。この図から理解されるように、真真空度を一定とした場合、熱処理温度が低い領域では、作製されたままの薄帯が有する集合組織とほぼ等しい集合組織

を有する正常粒成長が見られる。この場合、結晶粒は比較的小さく数百 μm 程度である。熱処理温度を上昇させると (100) 面内無方向組織へと変化し、更に (110) 面内無方向組織へと変化する。この正常粒成長組織から (100) 面内無方向組織、(100) 面内無方向組織から (110) 面内無方向組織へと変化する温度は、両者ともに、真真空度を低下させるに従って上昇する傾向を示す。また、熱処理温度を少々変化させただけで、(100) 面内無方向組織から (110) 面内無方向組織へ、および正常粒成長から (110) 面内無方向組織へと変わる真真空度は大幅に変化することが理解される。

4. 討 論

6.6Si-93.4Fe 薄帯を用い、1,453 K で 60 分間真空中熱処理を施した薄帯は、その熱処理中の真真空度により薄帯面の結晶粒集合組織は大幅に変化する。例えば 40 Pa, 2 Pa, 0.2 Pa の真真空度では、それぞれ (100) 面内無方向、(110) 面内無方向と少々の (100), (110) 面内無方向組織となる。これに伴い保磁力は大幅に増加する。一般に 3% ケイ素鋼板において結晶粒が成長する場合、(100) 面または (110) 面のどちらが試料表面に出るかは、その熱処理中のふんい気に依存する⁽¹⁰⁾。すなわち、(100) [0kl] 結晶粒は (100) 面エネルギーが最低となるために、十分な酸素が試料表面に存在する場合に成長し、一方、酸素量の少ない場合には (110) 面エネルギーが最低となり、(110) [hhl] 結晶粒が成長する。

本研究で用いた 6.6Si-93.4Fe 薄帯の場合、40 Pa の真真空度で熱処理を行なうと (100) 面内無方向となり、また酸素量が減少すると (110) 面内無方向となった。従って、熱処理中の酸素量は結晶粒成長に大きな影響を与えることがわかる。一方、6.6Si-93.4Fe 薄帯を用い、薄帯に張力を加え、その保磁力および角形比の張力依存性の測定を行なった結果、(100) 面内無方向組織を有する薄帯では磁気ひずみがほとんど零であり、薄帯中に (110) 面組織が増加するにつれて、磁気ひずみが負の値を示した。一般に磁気ひずみおよび内部ひずみは保磁力に極めて大きな影響を及ぼし、磁気ひずみおよび内部応力が大きいほど保磁力が増大することが知られている。本実験における真真空度上昇に伴う保磁力の増加は、主として薄帯面における (110) 面の発生に伴う面内の磁気ひずみの増大に起因するものであると考えられる。

一方、高ケイ素鉄合金の結晶磁気異方性は [111] 方向が困難磁化方向、[100] 方向が容易磁化方向であり、(110) 面はその面内に困難磁化方向を含むことから、

(110) 面に比べて磁気異方性が大きい。このため図 5 に見られるように、0.2 Pa の真空中で熱処理を施すことにより角形性が増大すると共に、外部印加磁界 160 A/m のもとでの磁束密度も低下するものと考えられる。また、2 Pa の真空中で熱処理を施した薄帯で観測された静的ヒステリシス特性の蛇形性は、(110) 面と (100) 面との共存により生ずるものと思われる。

5. む す び

ロール法による融体超急冷法により得られた 6.6 Si・93.4 Fe なる組成を有する高ケイ素鉄合金薄帯を真空中で焼なましする際の真空度の違いによる結晶粒組織の変化、ならびにそれに伴う磁気特性の変化を測定した結果、以下の結論が得られた。

(1) 40 Pa 付近の低真空中で 1,453 K, 1 時間熱処理すると、表面には Striation が見られ、(100) 面内無方向組織となり、保磁力は 4.4 A/m を示した。

(2) 真空度が高くなるにつれ ($\sim 10^{-1}$ Pa), (110) 面内無方向組織となり、0.2 Pa では保磁力は 8.8 A/m

を示した。

(3) 真空度を一定とし、熱処理温度を変化させると、低い温度では (1,273 K 付近) 正常粒成長となり、温度が上がるにつれて (100) 面内無方向 (1,323 K 付近以上), (110) 面内無方向 (1,473 K 付近以上) となる。

(昭和 56 年 5 月 2 日受付)

文 献

- (1) N.P. Goss: U.S. Patent 1, No. 965, 68 (1934)
- (2) R.C. Hall: *J. Appl. Phys.*, **30**, 816 (1959)
- (3) W.E. Ruder: *Proc. IRE*, **30**, 437 (1942)
- (4) T.D. Yansen: *Trans. Amer. Inst. Elect. Engrs.*, **34**, 2601 (1915)
- (5) 石坂・山部・高橋: 日本金属学会誌, **30**, 552 (昭 41)
- (6) K. Narita & M. Enokizono: *IEEE Trans. Mag.*, **MAG-14**, 258 (1978)
- (7) 津屋・荒井: 固体物理, **13**, 237 (昭 53)
- (8) N. Tsuya, K.I. Arai, H. Shimanaka, K. Ohmori & T. Kan: *IEEE Trans. Mag.*, **MAG-16**, 728, 1980
- (9) N. Tsuya, K.I. Arai & K. Ohmori: *ibid.*, **MAG-15**, 1149 (1979)
- (10) K. Foster, J.J. Kramer & G.W. Wiener: *Trans. Metal Soc. AIME*, **227**, 185 (1963)