圧粉磁芯の微視組織および磁気特性に及ぼす原料鉄粉粒子形状の影響

高下 拓也 中村 尚道 尾崎由紀子

JFE スチール株式会社スチール研究所

J. Japan Inst. Met. Mater. Vol. 79, No. 6 (2015), pp. 315-323
© 2015 The Japan Institute of Metals and Materials

Influence of the Particle Shape on Microstructure and Magnetic Properties of Iron Powder Cores

Takuya Takashita, Naomichi Nakamura and Yukiko Ozaki

Steel Research Laboratory, JFE Steel Corporation, Chiba 260-0835

The coercive force of an iron powder core decreases with an increase in the circularity of raw iron powder. Microstructural observation reveals that the crystal grain size of the iron powder core is reduced through recrystallization during the stress relief annealing after the powder compaction. An analysis of the work hardening behavior through the compaction process shows that a rounder particle shape leads to a smaller particle deformation, resulting in a reduction of the crystal grain refinement through recrystallization. A grain boundary pinning model well describes the reduction of coercive force with the increase in the eventual grain size. [doi:10.2320/jinstmet.J2015006]

(Received January 21, 2015; Accepted March 27, 2015; Published June 1, 2015)

Keywords: water atomized iron powder, iron powder core, iron loss, particle shape

1. 緒 言

圧粉磁芯とは絶縁被覆を施した軟磁性金属粉末を圧縮成形して製造される磁芯である。圧粉磁芯はフェライトなどの酸化磁性材料に比べると飽和磁束密度が高く、電磁鋼板などの金属磁性材料に比べると渦電流損が低い¹⁾ため、これら従来の磁芯用材料ではカバーできなかった動作磁束密度が高く、かつ動作周波数が高く低渦電流損が要求される用途(高速モーターの磁芯、自動車用リアクトルの磁芯等)への適用が期待されており、一部で実用化されている²⁾。

圧粉磁芯用の軟磁性金属粉末としては純鉄粉³⁾、Fe-Si⁴⁾およびFe-Si-Al⁵⁾等の合金粉末が用いられている。このうち、純鉄粉は合金粉末に比べて低コストである。また、圧縮密度が高いため磁束密度の高い磁芯が得られるという利点がある。一方で合金粉末に比べてヒステリシス損失が高いため、ヒステリシス損失の低減による磁芯の損失低減が要求されている。

ヒステリシス損失は保磁力と相関があり⁶⁾、保磁力を低減することでヒステリシス損失を減少させることができる。また、保磁力は金属組織中に存在する結晶粒界、歪、不純物といった磁壁の移動を妨げる因子を減らすことで低減される⁷⁾。

圧粉磁芯は成形後に歪取熱処理を行い、保磁力を低減して用いるのが一般的である。北条ら⁸⁾は純鉄系圧粉磁芯の歪取熱処理について、熱処理温度の高温化による保磁力の低減が、973 K 以上で増大に転じると報告している。この原因を北条

らは熱処理中の再結晶による結晶粒の微細化と考察している。また、Maeda ら⁹⁾は原料粉末の粒子形状が圧粉磁芯の鉄損に及ぼす影響について検討しており、鉄粉の球状化により渦電流損とヒステリシス損が低減されることを報告している。

圧粉磁芯の原料粉末の粒子形状は圧縮成形時における粉末粒子間の接触点(応力集中点)の数および分布を支配するため、加圧に伴い蓄積される歪量に影響を及ぼすと考えられる。成形時に圧粉磁芯に導入された歪は後続の歪取熱処理中の再結晶挙動に影響を及ぼし、圧粉磁芯の微視組織を変化させる可能性がある。しかしながら、粉末の粒子形状と成形時に導入される歪の関係、さらには歪取熱処理前後で変化する圧粉磁芯中微細組織や、これに関連付けた保磁力への影響について、定量的な議論はこれまで十分になされていない。

そこで、本研究では純鉄系圧粉磁芯について、原料粉末の粒子形状が圧粉磁芯の微視組織および保磁力に及ぼす影響について定量的検討を行った。その結果、鉄粉の粒子球状化により圧粉磁芯の結晶粒径が粗大化し、保磁力が低減することを見出した。本論文ではその詳細と保磁力低減メカニズムについて報告する。

2. 原料鉄粉の作製

2.1 作製方法

原料鉄粉は水アトマイズ法によって作製した。粒子形状は水圧水量等のアトマイズ条件の調整により制御した。異なる3水準の条件でアトマイズされた鉄粉を、いずれも水素中

1223 K で 3.6 ks 間熱処理した後、篩分級で質量平均粒子径 D_{50} が約 80 μm となるように篩を用いて粒度分布を調整し、原料鉄粉を得た。得られた原料鉄粉に対して、JIS Z 2504 に記載のホールフロー法による見掛密度の測定と、JIS Z 2510 に記載の篩分級により粒度分布を測定し、質量平均粒子径 D_{50} の測定を行った。見掛密度の測定は各原料鉄粉で 3 回実施し、その平均値を用いた。質量平均粒子径 D_{50} は各粒度の質量を粒度の小さい順に積算し、その積算質量が総質量の 50% になる粒度とした。

上記のようにして得られた原料鉄粉の組織観察を、光学顕微鏡を用いて行った。原料鉄粉のサンプルを熱硬化型の樹脂に埋込み、鉄粉粒子断面を研磨したのち、ナイタールで腐食して観察面とした。結晶粒径は上記組織写真から切断法¹⁰⁾により測定した。視野数は各 4 視野とし、4 視野の測定値の平均値を結晶粒径とした。

また、原料鉄粉断面の円形度を画像解析により計算した。本検討では以下の式のように円形度 C を定義した。

$$C = L_c / L_a \quad (1)$$

ここで L_a は粒子断面の外周、 L_c は粒子断面積と同等の面積を有する真円の外周である。円形度が 1 に近い粒子ほどその断面形状は真円に近いことを示す。なおこの画像解析には Image J (オープンソース、アメリカ国立衛生研究所) を用いた。視野数は 4 視野で、視野中の粒子のうち断面積より求めた円相当径が 10 μm 以上のものの平均値を円形度とした。

さらに、原料鉄粉の粒子硬度をマイクロビッカース法により測定した。測定は上述の組織観察で用いた樹脂埋込サンプ

ルを用い、押込加重 0.245 N、測定点数 5 点とし、最小値と最大値を除いた 3 点の平均値を硬度とした。

2.2 原料鉄粉粉体特性

Table 1 には原料鉄粉 A, B および C の化学成分を示す。主な不純物は O, Si および Mn であり、不純物総量は最も高い原料鉄粉 B と低い原料鉄粉 C の差が 0.017 mass% であった。この差はアトマイズ条件に起因する不純物元素の歩留の変動による。のちに議論するように、この不純物量差の保磁力に対する影響は粒子径状差の影響に比べると十分小さい。

Fig. 1 には腐食を行った原料鉄粉断面の光顕写真を示す。原料鉄粉 B および C の断面は、不定形であるのに対して、鉄粉 A の断面は真円に近い形状であった。

原料鉄粉の粉体特性、結晶粒径、硬度および円形度測定結果を Table 2 にまとめて示す。平均粒子径 D_{50} および結晶粒径については 3 種類の原料鉄粉ではほぼ同一であった。硬度は最も高い鉄粉 A が $Hv = 87$ 、最も低い鉄粉 C が $Hv = 75$ であった。見掛密度は大きく異なっており、最も高い鉄粉 A は 4.07 Mg m^{-3} 、最も低い鉄粉 C は 3.19 Mg m^{-3} であった。見掛密度と光顕写真より解析した円形度の関係を求めた結果を Fig. 2 に示す。粉末の円形度が 1 に近づくとともに見掛密度が増加することを確認した。

一般に、見掛密度は鉄粉の粒度分布、形状等によって変化し、鉄粉が球に近いほど見掛密度は高くなる¹¹⁾。本論文で用いた原料鉄粉 A, B および C は粒度分布が同一であるため、見掛密度は原料鉄粉の形状に対応するものと考えられ

Table 1 Chemical composition.

Based iron powder	(mass%)											
	C	O	N	Si	Mn	P	S	Cr	Ni	Al	Fe	Total impurity
A	0.0020	0.0690	0.0005	0.0200	0.0430	0.0090	0.0004	0.0080	0.0090	0.0030	Bal.	0.164
B	0.0043	0.0673	0.0005	0.0170	0.0400	0.0090	0.0004	0.0080	0.0200	0.0030	Bal.	0.170
C	0.0033	0.0539	0.0010	<0.0080	0.0520	0.0020	0.0002	0.0180	0.0200	0.0030	Bal.	0.153

Fig. 1 Optical micrographs of the cross section of based powders particles.

Table 2 Powder properties.

Based iron powder	Apparent density, $AD/\text{Mg m}^{-3}$	Particle size distribution (mass%)						Mean diameter, $D_{50}/\mu\text{m}$	Crystal grain size, $D/\mu\text{m}$	Hardness, Hv	Circularity, C
		180~150 μm	150~106 μm	106~75 μm	75~63 μm	75~45 μm	45~ μm				
A	4.07	0.6	25.0	31.8	9.8	17.4	15.4	82.2	39.7	87	0.83
B	3.57	0.1	23.5	32.8	8.4	17.2	18.0	81.0	40.5	84	0.77
C	3.19	1.3	23.1	33.6	8.6	16.8	16.6	82.4	40.7	75	0.73

る．そこで，以降の検討では原料鉄粉の形状指標として円形度を用いる．

3. 圧粉磁芯の作製および特性評価方法

3.1 圧粉磁芯作製方法

本研究における圧粉磁心の作製方法を Fig. 3 に示す．まず，2.1 節で作製した原料鉄粉に対して絶縁処理を行った．シリコン樹脂(東レダウコーニング社製，SR2400，密度 1.048 Mg m^{-3})をキシレンで 1 mass% に希釈したシリコン樹脂溶液を，原料鉄粉に対して固形分が 0.25 mass% となるように混合した．これを室温，大気中でキシレンを揮発させる乾燥工程を経て，シリコン樹脂が粒子表面に被覆された絶縁被覆鉄粉を得た．乾燥後に樹脂を硬化させる目的で大気中 473 K で 7.2 ks 間の加熱硬化処理を施した．加熱硬化処理後の絶縁被覆鉄粉を室温，圧力 980 MPa で外径 38 mm，内径 25 mm，高さ 6 mm のリング状に圧縮成形して圧粉磁芯とした(以後，本試料を“成形まま磁芯”と記す)．さらに，圧縮成形時に鉄粉に導入された歪除去のため，大気圧の窒素雰囲気中で，圧粉磁芯の一般的な歪取熱処理温度の範囲内⁸⁾である，823 K で 2.7 ks 間または 973 K で 2.7 ks 間の 2 水準の条件で熱処理を施した圧粉磁芯も作製した(以後，本試料を“熱処理後磁芯”と記す)．作製した圧粉磁芯は各条件で 1 個ずつである．

3.2 特性評価方法

本研究で行った測定項目を，Table 3 に示す．すべての磁芯について，光学顕微鏡による組織観察とマイクロビッカース硬度測定を行った．埋込および腐食は原料鉄粉と同様の方法で行った．硬度測定法も原料鉄粉の場合と同様である．こ

Fig. 2 Relationship between apparent density and circularity of the based iron powder particle.

こで，観察面はリングの直径に沿って分断される軸方向断面に統一した．

それぞれの磁芯について，寸法と質量を測定し，磁路長と密度を算出した．さらに，熱処理後磁芯については直流磁化曲線の測定を行った．巻線は直径 0.6 mm の銅ホルマル線を用い，1 次側 100 ターン，2 次側 40 ターンとした．装置はメトロン技研製 SK-110 型を用い，励磁磁束密度は 1.0 T とした．

磁芯内部の歪分布は，組織観察と同じ観察面で走査型電子顕微鏡(SEM)を用いた電子線後方散乱回折法(EBSD 法)による結晶方位解析(SEM/EBSD 解析)を行い，カーネル平均方位差(KAM)値を測定面にマッピングすることにより評価した¹²⁾．ここで，解析領域は $500 \mu\text{m} \times 500 \mu\text{m}$ ，解析ステップは $1 \mu\text{m}$ で測定した．結晶方位差を表す KAM 値の計算は，正六角形の画素(カーネル)と隣り合う 6 個のカーネルとの結晶方位差平均とし，隣接するカーネル間の方位差が 5° を超える場合は結晶粒界とみなし計算から除外した．したがって，KAM 値が大きい領域ほど歪が大きいとみなすことができる．SEM / EBSD 解析に用いた SEM は JSM-7001FA(日本電子製)，結晶方位解析システムは OIM Data collection(TSL ソリューションズ製)を用いた．

4. 圧粉磁芯の特性評価結果

原料鉄粉の円形度と成形まま磁芯の密度との関係を Fig. 4 に示す．密度は磁芯の寸法と質量より算出した．密度は円形

Fig. 3 Preparation process of the iron powder cores.

Table 3 Evaluated properties.

	DC magnetic properties	Microstructural observation	Measurement of crystal grain size	Micro-Vickers hardness	Crystal orientation
Based iron powders	—	○	○	○	—
Iron powder cores (as compacted)	—	○	—	○	○
Iron powder cores (annealed at 823 K)	○	○	○	○	○
Iron powder cores (annealed at 973 K)	○	○	○	○	○

○: Evaluated —: Un-evaluated

度によらず $7.40 \pm 0.02 \text{ Mg m}^{-3}$ でほぼ同一である。後続の熱処理では 823 K および 973 K いずれの場合も磁芯の膨張、収縮はほとんどなく、これらの密度は熱処理後磁芯の密度とみなすことができる。原料鉄粉の円形度と熱処理後磁芯の保磁力の関係を Fig. 5 に示す。保磁力の測定回数は 1 試料あたり 1 回である。973 K 熱処理後磁芯では原料鉄粉の円形度が高いほど保磁力が低い傾向にあるが、823 K 熱処理後磁芯では鉄粉の円形度 0.77 の原料鉄粉 B によるものが保磁力は最大である。一方、原料鉄粉が同一の比較では、熱処理温度が高いほど保磁力が低くなった。

Fig. 6 には 823 K および 973 K で処理した熱処理後磁芯の光学顕微鏡写真を示す。腐食により鉄粉内部の結晶粒界が

Fig. 4 Relationship between particle circularity and green density of the as compacted iron powder cores.

Fig. 5 Relationship between particle circularity and coercive force of the annealed iron powder cores.

Fig. 6 Optical micrographs of the iron powder cores annealed at 823 K and 973 K.

確認された。Fig. 6 の写真から切断法により結晶粒径を測定した結果を、原料鉄粉の結晶粒径測定結果と併せて Fig. 7 にそれぞれ示す。なお、成形まま磁芯の断面は加工歪の影響で結晶粒界の判別が困難であったため、測定を断念した。いずれの原料鉄粉も結晶粒径は $40 \mu\text{m}$ 程度であるが、熱処理後磁芯の結晶粒径はそれぞれの原料鉄粉より小さい。さらに、いずれの熱処理磁芯も、原料鉄粉の円形度の増加に伴い結晶粒が粗大化する傾向を示した。

Fig. 8 には SEM/EBSD 解析結果から得た成形まま磁芯および熱処理後磁芯の断面の KAM マップを示す。成形まま磁芯は、原料鉄粉が A~C のいずれであっても鉄粉粒子表面ほど KAM 値が高く、これは粒子表面ほど歪が大きいことを示す。熱処理により KAM 値は減少し、973 K 熱処理後磁芯はいずれも KAM 値がほぼ 0 であった。823 K 熱処理後磁芯は粒子中央に KAM 値の高い領域が残留しているが、原料鉄粉 C で作製したものは他の 2 つに比べて KAM 値が 0 に近い値まで減少した。

Fig. 9 には原料鉄粉の円形度と原料鉄粉および各種磁芯のマイクロビッカース硬度の関係を示す。A, B および C のいずれを原料鉄粉としても、成形まま磁芯の硬度は原料鉄粉より高く、熱処理後磁芯の硬度は成形まま磁芯よりも低くなった。また、熱処理温度が高い熱処理後磁芯ほど硬度は低下した。

5. 考 察

5.1 圧粉磁芯の結晶粒径と原料鉄粉粒子円形度の関係

熱処理後磁芯の結晶粒径は、Fig. 7 に示すようにすべて原料鉄粉の結晶粒径より小さくなっていった。また、原料鉄粉 A からなる成形まま磁芯および 823 K 熱処理後磁芯の KAM マップを Fig. 10 に示すが、成形ままでは粒子表面付近の KAM 値が高く、823 K 熱処理後磁芯では粒子表面に KAM 値が小さい粒径約 $5 \sim 20 \mu\text{m}$ 程度の結晶粒が生成している。これは、原料鉄粉の結晶粒径約 $40 \mu\text{m}$ より小さい。上記の 2 点は成形時に大きく歪んだ粒子表面部を起点として、熱処理により再結晶が起こっていること、さらには再結晶により熱処理後の結晶粒径が微細化していることを示唆する。

Fig. 7 Relationship between particle circularity and crystal grain size of the annealed iron powder cores.

Fig. 8 KAM maps of the iron powder cores.

Fig. 9 Particle circularity dependence of the hardness of the based iron powders and iron powder cores.

973 K 熱処理後磁芯に着目すると、原料鉄粉の円形度が大きいほど、結晶粒径は大きくなる傾向にあることが分かり、上記の再結晶が大きく関係していることが示唆される。以下では原料粉末の円形度が熱処理後磁芯中の結晶粒径に及ぼす影響を解明するため、成形時に蓄積される歪と、それに起因する熱処理時の再結晶粒径の関係を定量的に考察する。なお、絶縁被覆のシリコン樹脂は 873 K まで加熱すると構造が変化し、樹脂中の Si および O については、Si-O 系の化合物を生成する²⁾。また、樹脂中の C については、973 K

では浸炭は起こらないとの知見がある^{13~15)}。したがって、これらの元素が鋼中に拡散し再結晶挙動に及ぼす影響は小さいと考えられる。

まず、歪の指標として圧縮成形によって蓄積された転位密度を見積もる。Bailey と Hirsch¹⁶⁾ は転位密度 ρ と転位強化による降伏応力の上昇量 $\Delta\sigma$ との関係を以下のように与えている。

$$\Delta\sigma = \alpha G b \sqrt{\rho} \quad (2)$$

ここで、 G および b は、それぞれ剛性率(純鉄の場合 80 GPa¹⁷⁾)およびバーガースベクトル(純鉄の場合 2.5×10^{-10} m¹⁸⁾)である。 α は転位の線張力係数や転位の分布に依存する定数であり、中島ら¹⁹⁾が純鉄での検討結果として示した 0.6 を用いることとした。

鉄粉粒子の $\Delta\sigma$ を引張試験等により直接的に求めることは困難である。そこで、次式で示されるピッカース硬度と降伏応力の近似関係²⁰⁾を用いることとした。

$$\sigma \approx 3Hv \quad (3)$$

ここで式(3)の全微分を行うことにより $\Delta\sigma$ を次式で定義した。

$$\Delta\sigma \approx 3\Delta Hv \quad (4)$$

さらに、式(2)に式(4)を代入し整理することで ΔHv から転位密度を近似的に見積もる式(5)が得られる。

$$\rho = (3\Delta Hv / \alpha G b)^2 \quad (5)$$

Fig. 10 Magnified KAM maps of iron powder cores with based iron powder A.

本研究において、各原料鉄粉はすべて同一の加工熱処理履歴を経ており、初期歪は同等であると考えられる。したがって、Fig. 9 より、 ΔHv は原料鉄粉の硬度と成形まま磁芯あるいは熱処理後磁芯との硬度差として求められ、それぞれ圧縮成形時に導入される転位密度と熱処理後磁芯と熱処理後に残留している転位密度を求めることができる。

原料粉末の粒子円形度と、Fig. 9 より算出した ΔHv を式 (5) に代入することで求めた近似的転位密度 ρ の関係を Fig. 11 に示す。円形度の低下に伴い転位密度が増加する傾向にあることが分かる。また、熱処理により転位密度は減少しており、同一の原料鉄粉からなる熱処理後磁芯では、熱処理温度が高い磁芯の方が転位密度は小さかった。

次に円形度の低下により圧縮成形時に蓄積される転位密度が増加する理由について、鉄粉充填層の圧密モデルに基づいて、原料鉄粉の円形度と粒子の塑性変形量との関係を考察する。

著者ら²¹⁾によれば、圧縮成形中の鉄粉の充填密度増加機構は成形初期に起こる「粒子の再配列」と成形後期に起こる「粒子の塑性変形」の2つに分けられ、成形中の充填密度増加に及ぼす両者の寄与率は以下のように分離できる。

$$[V(0) - V(p)] / V(0) = a_1 \cdot \exp(-b_1/p) + a_2 \cdot \exp(-b_2/p) \quad (6)$$

ここで、 $V(0)$ は圧縮前の粉末中の空隙率、 $V(p)$ は任意の圧縮圧力 p での圧粉体中の空隙率であり、左辺は圧縮に伴う空隙率の減少率を表し、右辺の第1項および第2項はそれぞれ空隙率の減少に対する「粒子の再配列」および「粒子の塑性変形」の寄与を示す。また、 a_1, b_1, a_2 , および b_2 は粉末の組成、見掛け密度および圧縮成形条件に依存する圧密パラメーターである。

原料鉄粉の見掛け密度 AD 、成形圧力 p における成形体密度 GD および真密度 GD_T を用いると、式 (6) は以下のように書き換えることができる。

$$GD - AD = (GD_T - AD) \cdot [a_1 \cdot \exp(-b_1/p) + a_2 \cdot \exp(-b_2/p)] = \Delta GD_T + \Delta GD_p \quad (7)$$

ここで、式 (7) 左辺は圧縮成形開始から終了に至るまでの密度上昇量を表し、右辺第1項が「粒子の再配列」による密度上昇量 ΔGD_T 、右辺第2項が「粒子の塑性変形」による密度上昇量 ΔGD_p に相当する。

以下の解析では GD_T として純鉄の真密度 7.87 Mg m^{-3} を用いた。圧密パラメーター a_1, b_1, a_2 および b_2 は、本実験と

Fig. 11 Relationship between particle circularity and the dislocation density within the iron powder cores.

Table 4 Parameters for the compaction model.

Based iron powder	Apparent density, $AD/\text{Mg m}^{-3}$	Parameters				Remark
		a_1	b_1	a_2	b_2	
—	3.07	0.333	17.8	0.766	226	Ref. 21)
—	3.95	0.343	19.6	0.794	247	
A	4.07	0.344	19.9	0.798	250	Calculated from regression
B	3.57	0.339	18.8	0.782	238	
C	3.19	0.334	18.0	0.769	228	

同一の組成および同一条件で成形を行った文献²¹⁾に着目して求めた。先に述べたとおりこれらのパラメーターは、粉末の組成、見掛け密度および圧縮成形条件に依存する。本実験ならびに文献²¹⁾では組成および圧縮成形条件が同一であるため、パラメーターは見掛け密度のみに依存する。そこで、各パラメーターを見掛け密度の関数として、直線回帰式を作成し、本実験における原料鉄粉の見掛け密度を代入することにより、各々の原料鉄粉の圧密パラメーターを求めた。Table 4 にこれらの圧密パラメーターを示す。

Table 4 の数値、各原料鉄粉の見掛け密度および成形圧力 980 MPa を用いて式 (7) 第2項より算出した「粒子の塑性変形」による密度上昇量 ΔGD_p を、粒子円形度に対してプロットした結果を Fig. 12 に示す。これより、原料鉄粉の円形度の上昇により ΔGD_p が小さくなることが分かる。この原因は、円形度の上昇が「粒子の再配列」を容易にし、圧縮成形による密度上昇量に占める「粒子の再配列」による密度上昇量 ΔGD_T の割合が増加したためであると考えられる。

Fig. 12 Relationship between particle circularity and calculation from plastic deformation of the iron powder particles to an increase in green density.

ΔGD_p には絶縁被覆の影響も含まれている。原料鉄粉 A～C は粒子球状度が異なるので比表面積も異なる。したがって、等量の絶縁被覆では層厚が異なる。しかしながら、絶縁被覆の密度と粒度分布より、鉄粉を球近似した場合でも絶縁被覆の膜厚は $0.2 \mu\text{m}$ となる。これは、鉄粉の平均粒子径 $80 \mu\text{m}$ に対して 2 桁以上小さい。実際の原料鉄粉 A～C は球近似した場合よりも比表面積が大きくなるため、膜厚はさらに薄くなると考えられる。このことから、膜厚の変化による ΔGD_p への影響は無視できるとして考察を続ける。

本項の終わりに「粒子の塑性変形」によって蓄積された歪エネルギーと熱処理後の結晶粒径の関係について考察する。圧粉磁芯中の歪および歪エネルギーは以下の手順で求めた。

まず、圧縮成形を単軸圧縮とみなすと、「粒子の塑性変形」による歪 ε_p は以下のように与えられる (Appendix 参照)。

$$\varepsilon_p = \Delta GD_p / GD \quad (8)$$

上で求めた ΔGD_p と式 (8) を用いて算出した歪を Table 5 に示す。

次に歪と転位密度の関係を求める。Syarif²²⁾ らは種々の圧下率の純鉄冷延の転位密度を測定している。この報告における冷延圧下率を単軸変形の相当歪に換算する²³⁾ ことで単軸圧縮による歪と転位密度の関係を見積もった。「粒子の塑性変形」による歪から推定した転位密度は最小値が $1.4 \times 10^{14} \text{ m}^{-1}$ であり、最大値が $1.9 \times 10^{14} \text{ m}^{-1}$ であった。硬度差から算出した転位密度は最小値が $9.3 \times 10^{13} \text{ m}^{-1}$ 、最大値が $2.0 \times 10^{14} \text{ m}^{-1}$ であったので、どちらの手法で算出した転位密度も $10^{13} \sim 10^{14} \text{ m}^{-1}$ のオーダーで一致している。これより、円形度の増加による成形まま磁芯中の転位密度の減少は、成形中の鉄粉の塑性変形量の減少によって説明できる。

再結晶は熱処理による歪エネルギーの解放であるため、熱処理の結晶粒径と関連付けて考えるために、式 (9)²⁴⁾ を用いて転位密度 ρ を歪エネルギー E_D に置き換える。

$$E_D = \rho G b^2 / 2 \quad (9)$$

上式に $\Delta H v$ より求めた ρ を代入して E_D を計算した結果を Fig. 13 に示す。成形まま磁芯の歪エネルギーに着目すると、円形度が 0.73 から 0.83 へ増加するに伴い、蓄積されている歪エネルギーが約 1/2 まで減少していることが分かった。973 K 熱処理後磁芯の歪エネルギーは円形度によらずほぼゼロに近い値となっていた。これは熱処理により歪が十分

Table 5 Strain values estimated from eq. (8).

Based iron powder	Strain induced by plastic deformation of iron powder, ε_p
A	0.31
B	0.35
C	0.38

Fig. 13 Relationship between the particle circularity and the strain energy stored in iron powder cores.

Fig. 14 Relationship between the energy released by annealing and crystal grain size in the iron powder cores. (The dashed line is a guide to eye.)

に開放されたことを示している。一方、823 K 熱処理後磁芯の歪エネルギーは成形まま磁芯と 973 K 熱処理後磁芯の中間の値となっており、歪の残留が確認された。

成形まま磁芯に蓄積された歪エネルギーと、熱処理後磁芯に残留する歪エネルギーの差を熱処理によって開放された歪エネルギー ΔE_D とみなす。これは、再結晶による歪エネルギー解放量と、再結晶の前段階で起こる回復による歪エネルギー解放量の和である。 ΔE_D と熱処理後の結晶粒径との関係を求めたものを Fig. 14 に示す。なお、成形まま磁芯の結晶粒径は、前述のとおり原料鉄粉の結晶粒径と同一とした。結晶粒径は原料鉄粉の種類や熱処理温度によらず、 ΔE_D の増加に伴い減少する傾向を示した。したがって、圧縮成形により蓄積される歪エネルギーが大きいほど、磁芯鉄粉粒子中の転位密度が高く、その結果熱処理中の再結晶核形成サイトが増加し、熱処理後の結晶粒径は小さくなると説明される。また、上述のように ΔE_D は再結晶核生成数によって決まる熱処理後の結晶粒径によって整理できることから、本実験においては回復による歪エネルギーの開放はすべての試料

で同等であるか、極めて小さいと考えられる。

以上の検討から、原料鉄粉の粒子円形度増加は圧縮成形時の「粒子の塑性変形」を減少させ、これにより圧粉磁芯に蓄積される歪エネルギーが減少し、熱処理後の結晶粒径は粗大化すると結論付けられる。

5.2 圧粉磁芯の保磁力に及ぼす原料鉄粉粒子円形度の影響

磁性体が磁壁の移動によって磁化する場合、保磁力 H_c は磁性体の結晶磁気異方性や磁壁のピンニングサイトの量などによって変化する。このうち、磁壁のピンニングサイトとしては、結晶粒界、介在物および歪が考えられる。Pfeifer ら²⁵⁾によれば、これら 3 つのピンニングサイトの寄与は下式のように分離できる。

$$H_c = H_{ck} + H_{c_{ex}} \quad (10)$$

ここで、 H_{ck} は結晶粒界に起因する保磁力、 $H_{c_{ex}}$ は介在物および歪に起因する保磁力である。このうち、 H_{ck} については Mager²⁶⁾らによって結晶粒径との関係が求められており、

$$H_{ck} \approx (3 \cdot \gamma) / (J_s \cdot D) \quad (11)$$

となる。ここで、 γ は磁壁エネルギー、 J_s は飽和磁化、 D は結晶粒径である。Pfeifer ら²⁵⁾の Ni-Fe における検討、Herzer²⁷⁾らの Fe-Si における検討、R. H. Yu ら²⁸⁾の Co-Fe における検討で式(11)が実験結果と良い一致を示したと報告されている。

磁壁エネルギーの理論値は、

$$\gamma = a \sqrt{A \cdot K} \quad (12)$$

で与えられる²⁹⁾。ここで、 A は交換スティフネス係数、 K は磁気異方性定数、 a は磁壁の種類によって決まる定数である。

純鉄の場合、 $A = 1.49 \times 10^{-11} \text{ J m}^{-1}$ ³⁰⁾、 $K = 4.72 \times 10^4 \text{ J m}^{-3}$ ³¹⁾、である。また、純鉄の磁化容易磁区は[100]方向である。[100]方向に磁化した場合の磁壁は 90°磁壁および 180°磁壁の 2 種類であり、その時の a の値は 1 および 2 となる²⁹⁾。これらの値から磁壁エネルギーを計算すると、90°磁壁エネルギー $\gamma_{90} = 8.4 \times 10^{-3} \text{ J m}^{-2}$ で、180°磁壁エネルギー $\gamma_{180} = 1.7 \times 10^{-3} \text{ J m}^{-2}$ となる。実際の鉄の組織中には 90°磁壁と 180°磁壁が混在していると考えられる³²⁾。したがって、これらの磁壁が複合的に移動して磁化が起これると考えると磁壁エネルギーは $\gamma = 8.4 \sim 1.7 \times 10^{-3} \text{ J m}^{-2}$ の範囲内となると考えられる。

一方、式(11)を式(10)に代入すると、

$$H_c = S/D + H_{c_{ex}} \quad (13)$$

となる。ここで、

$$S = (3 \cdot \gamma) / J_s \quad (14)$$

である。したがって、

$$\gamma = (S \cdot J_s) / 3 \quad (15)$$

となる。したがって、結晶粒界以外の要因(介在物、歪)による保磁力 $H_{c_{ex}}$ を定数と仮定すれば、 H_c は $1/D$ に対して直線的に変化し、その傾き S から、磁壁エネルギー γ を計算できる。

Fig. 13 で明らかなように、973 K 熱処理後磁芯は原料鉄粉によらず歪の指標である歪エネルギーの値がほぼ等しい。原料粉の不純物レベルもほぼ同等であるので、結晶粒界以外

Fig. 15 Relationship between inverse of crystal grain size and coercive force.

の要因(介在物、歪)による保磁力 $H_{c_{ex}}$ を定数とみなせる。実際、文献 7) では不純物量と保磁力との関係が議論されているが、文献中の不純物量と保磁力の関係から、原料鉄粉 A~C における不純物量差による保磁力差を見積もったところ、その変動は高々 3% であった。そこで、以下ではこのシリーズについて、上述の仮定の下で考察を進める。

Fig. 15 には熱処理後磁芯の結晶粒径の逆数と保磁力実測値との関係を示す。973 K 熱処理後磁芯の保磁力は結晶粒径の逆数に対して直線的に変化し、回帰式を求めると $H_c = 1.59 \times 10^3 / D + 70.9$ となる。また、直線の傾きと鉄の飽和磁化 $J_s = 2.16 \text{ T}$ ³³⁾ から式(15)の関係により、 $\gamma = 1.2 \times 10^3 \text{ J m}^{-2}$ と算出される。これは前述した γ の理論値の範囲内にあり、90°磁壁と 180°磁壁エネルギーの中間程度の値である。したがって 973 K で熱処理されたシリーズの H_c と $1/D$ の関係は式(13)で $H_{c_{ex}}$ が定数としたモデルで説明でき、90°磁壁と 180°磁壁の移動が同じ程度起こっていると考えられる。

なお、Fig. 15 には 823 K 熱処理後磁芯の H_c も示したが、 $1/D$ に対して直線的に変化していない。このシリーズは Fig. 13 から明らかなように、磁芯中に歪の残留があり、式(13)中の $H_{c_{ex}}$ 一定の仮定が成立していないためと考えられる。

以上のことから、圧粉磁芯中に蓄積された歪が十分開放された条件では、保磁力 H_c の変化は結晶粒径の変化で説明できる。さらに、円形度が増加することにより結晶粒が粗大化していたことから、円形度の増加は結晶粒の粗大化を通して保磁力を低減する効果があると考えられる。

6. 結 言

本研究では圧粉磁芯の保磁力低減の指針を得るため、原料鉄粉の粒子形状が圧粉磁芯の微細組織および磁気特性に及ぼす影響を検討し、以下の知見を得た。

- (1) 原料鉄粉の粒子円形度が高くなるに従って、熱処理後磁芯の結晶粒径が粗大化する。
- (2) 成形中に鉄粉表層が塑性変形し、成形後の熱処理によって塑性変形していた鉄粉表層から再結晶粒が生成する。
- (3) 原料鉄粉の円形度が高くなるにつれて、成形中に鉄粉

に蓄積される歪エネルギーが減少する。

(4) これは、鉄粉の円形度が高くなることで、同じ密度に成形しても『粒子の塑性変形』による密度上昇の寄与が減少するためである。

(5) 歪エネルギー低減の作用により、再結晶核の生成が抑制されることが(1)の結果につながる。

(6) 熱処理温度が 973 K の場合、原料鉄粉の円形度が高くなるにつれて熱処理後磁芯の保磁力が減少する。

(7) 蓄積された歪エネルギーが同等の圧粉磁芯 (973 K 熱処理後磁芯) の保磁力は結晶粒径の逆数に比例するモデルと挙動が一致する。

(8) 原料鉄粉の円形度が高くなるにつれて、熱処理後磁芯の結晶粒径が粗大化するため保磁力は低減する。

文 献

- 1) K. Sadahiro, S. Gotoh and S. Uenosono: JFE Tech. Rep. **8** (2005) 1-6.
- 2) M. Sugiyama, T. Yamaguchi, T. Ohkouchi, H. Kishimoto, T. Hattori and T. Saito: Sokeizai **51** (2010) 24-29.
- 3) H. Mitani, A. Hanaki, H. Yaguchi and Y. Seki: Kobe Steel Eng. Rep. **48** (1998) 25-28.
- 4) S. Takemoto: Denki Seiko **82** (2011) 57-65.
- 5) T. Ishimine, A. Watanabe, T. Ueno, T. Maeda and T. Tokuoka: SEI Tech. Rev. **72** (2011) 117-123.
- 6) S. Takajo: Doctorial Theses (Tohoku University, 1986).
- 7) T. Tokuoka, T. Maeda and T. Ishimine: Sokeizai **52** (2011) 11-18.
- 8) H. Hojo, N. Akagi, T. Sawayama and H. Mitani: Kobe Steel Eng. Rep. **60** (2010) 79-83.
- 9) T. Maeda, A. Sato, Y. Mochida, H. Toyoda, K. Mimura and T. Nishioka: Proc. Powder Metallurgy World Congress, (Korean Powder Metallurgy Inst., 2006) pp. 1284-1285.
- 10) R. L. Fullman: Trans. AIME (1953) 197-447.
- 11) The Japan society of Powder and Powder Metallurgy: *FuntaiFunmatsuyakinyougijiten*, (Nikkan Kogyo Shinbun, 2001) p. 541.
- 12) K. Sasaki, M. Kamaya, T. Miura and K. Fukuya: J. Japan Inst. Metals **74** (2010) 467-474.
- 13) X. Zhang, R. Takahashi, T. Akiyama and J. Yagi: Tetsu-to-Hagane **83** (1997) 299-304.
- 14) T. Kameoka and T. Kimura: J. Jpn. Soc. Powder Powder Metal. **19** (1973) 281-285.
- 15) H. Mitani, K. Majima and Y. Hanatate: J. Japan Inst. Metals **39** (1975) 168-174.
- 16) J. E. Bailey and P. B. Hirsch: Philos. Mag. **5** (1960) 485-497.
- 17) W. C. Leslie: *The Physical Metallurgy of Steel*, (McGraw-Hill Kogakusha, 1982) p. 113.
- 18) W. C. Leslie: *The Physical Metallurgy of Steel*, (McGraw-Hill Kogakusha, 1982) p. 3.
- 19) K. Nakashima, Y. Fujimura, H. Matsubayashi, T. Tsuchiyama and S. Takaki: Tetsu-to-Hagane **93** (2007) 459-465.
- 20) T. Yoshizawa and G. Kuroki: Jour. Jpn. Soc. Mech. Eng. **64** (1961) 1453-1460.
- 21) Y. Ozaki, T. Ono, T. Takamiya and S. Uenosono: J. Jpn. Soc. Powder Powder Metal. **58** (2011) 83-90.
- 22) J. Syarif, K. Nakashima, T. Tsuchiyama and S. Takaki: Tetsu-to-Hagane **91** (2005) 790-795.
- 23) The Iron and Steel Institute of Japan: *Theory and Practice of Flat Rolling* (Reverse edition), (The Iron and Steel Institute of Japan, 2010) p. 10.

- 24) F. J. Humphrey and M. Hatherly: *Recrystallization and related phenomena*, (Elsevier, 2004) p. 18.
- 25) F. Pfeifer and C. Radeloff: J. Magn. Magn. Mater. **19** (1980) 190-207.
- 26) A. Mager: Annalen der Physik. **6** (1952) 15-16.
- 27) G. Herzer: IEEE Trans. Magn. **26** (1990) 1397-1402.
- 28) R. H. Yu, S. Basu, Y. Zhang, A. Parvizi-Majidi and John Q. Xiao: J. Appl. Phys. **85** (1999) 6655-6659.
- 29) K. Ohta: *Jikikougakunokiso II*, (Kyoritsu Shuppan, 1973) pp. 272-273.
- 30) S. chikazumi: *Kyojiseitainobutsuri* (last volume), (Shokabo, 1984) p. 175.
- 31) S. chikazumi: *Kyojiseitainobutsuri* (last volume), (Shokabo, 1984) p. 4.
- 32) K. Ohta: *Jikikougakunokiso II*, (Kyoritsu Shuppan, 1973) p. 268.
- 33) K. Ohta: *Jikikougakunokiso II*, (Kyoritsu Shuppan, 1973) p. 275.

Appendix

粉末圧縮成形の模式図を Fig. A1 に示す。粉末圧縮成形を単軸圧縮とみなすと、その歪 ε_p は以下のように表すことができる。

$$\varepsilon_p = (l - l_p) / l \quad (A1)$$

ここで l は圧縮成形前の粉末充填層厚、 l_p は任意の成形圧力での成形体厚さである。「粒子の塑性変形」による密度上昇は「粒子の再配列」の後に起こる。そのため、「粒子の塑性変形」のみによる歪は以下のように表すことができる。

$$\varepsilon_p = (l_{ip} - l_p) / l_{ip} \quad (A2)$$

ここで、 l_{ip} は塑性変形開始時の成形体厚さである。ここで、成形体の圧縮方向に垂直な断面積を A' 、成形体の質量を w とすると、式 (A2) は以下のように書き換えることができる。

$$\begin{aligned} \varepsilon_p &= (l_{ip} \cdot A' - l_p \cdot A') / (l_{ip} \cdot A') = (V_{ip} - V_p) / V_{ip} \\ \varepsilon_p &= (V_{ip} / w - V_p / w) / (V_{ip} / w) = (1 / GD_{ip} - 1 / GD) / (1 / GD_{ip}) \end{aligned} \quad (A3)$$

ここで、 GD_{ip} は「粒子の塑性変形」開始時の成形体密度である。式 (A3) はさらに以下のように変形することができ、本文中の式 (8) が得られる。

$$\begin{aligned} \varepsilon_p &= (1 / GD_{ip} - 1 / GD) / (1 / GD_{ip}) = (GD - GD_{ip}) / GD \\ &= \Delta GD_p / GD \end{aligned} \quad (A4)$$

Fig. A1 Schema of compacting of iron powder.