V. 総 括

文 献

Ni-Fe-Nb 系 Hardperm の丸棒試料および(100)面単結晶試料について、高純度水素雰囲気中で 1150°C, 3 hr 加熱した後 600°C から種々の速度で冷却して、比電気抵抗、飽和磁化、飽和磁気歪み、結晶磁気異方性ならびにヤング弾性率を測定し、その高い透磁性の原因について検討してつぎの結果を得た。

(1) Ni-Fe-Nb 系合金の比電気抵抗 ρ は冷却速度が小さくなるに伴い増加し、冷間加工率が大きくなるにつれて逆に減少して、 K 状態の生成が確かめられた。

(2) Ni-Fe 系合金の結晶磁気異方性定数 K_1 および飽和磁気歪み定数 λ_s の絶対値ならびに $\Delta E/E_0$ は Nb を添加することにより急速に減少し、初透磁率 μ_0 の最高値を示す組成付近では非常に小さい。また $\Delta E/E_0$ の組成に対する変化は λ_s のそれとよく類似している。

(3) Ni-Fe-Nb 系合金の高い μ_0 は K 状態の生成により K_1 および λ_s の絶対値ならびに $\Delta E/E_0$ が非常に小さくなって磁気弾性的に等方状態が得られ、磁壁移動が容易に行なわれるためにもたらされるものと考えられる。

終りに、本研究遂行にあたり終始御指導、御鞭撻を賜った東北大学名誉教授、当研究所所長増本 量博士、ならびに御支援、御協力を賜った当研究所第 2 研究室長村上雄悦氏および研究員門脇静穂氏に深く感謝する。また結晶磁気異方性測定装置使用の便宜と御助力を賜った東北大学金属材料研究所教授斎藤英夫博士ならびに森田博明博士に深く感謝する。

- (1) A. S. Zaimosky and I. P. Selissky : J. Phys. (USSR), **4** (1941), 563.
- (2) R. M. Bozorth: Ferromagnetism, 1951; Rev. Mod. Phys., **25** (1953), 42.
- (3) R. M. Bozorth and J. G. Walker : Phys. Rev., **89** (1953), 624.
- (4) 増本 量, 村上雄悦, 比内正勝 : 金属学会誌, **35** (1971), 985; Trans. JIM, **13** (1972), 182.
- (5) 増本 量, 村上雄悦, 比内正勝 : 金属学会誌, **38** (1974), 238; Trans. JIM, **15** (1974), 261.
- (6) H. Thomas : Z. Metallk., **41** (1950), 185 ; Z. Phys., **129** (1951), 219.
- (7) A. Taylor and K. Hinton : J. Inst. Met., **81** (1952), 169.
- (8) R. G. Davies : J. Phys. Chem. Solids, **24** (1963), 985.
- (9) B. G. Lyashenko, D. F. Litivin and I. M. Puzey : J. Phys. Soc. Japan, Supp. B-III, **17** (1962), 49.
- (10) R. G. Treuting and B. W. Batterman : J. Appl. Phys., **34** (1963), 2005.
- (11) 長島富雄 : 金属学会会報, **3** (1964), 281.
- (12) V. I. Iveronova, A. A. Katsenelson and V. M. Silonov : Phys. Met. and Metallog., **33** (1972), 77.
- (13) V. I. Goman'kov, I. M. Puzey, Ye. V. Kozis, Ye. I. Mal'tsev and V. N. Sigayev : Phys. Met. and Metallog., **33** (1972), 191.
- (14) R. J. Taunt and B. Ralph : Met. Sci., **9** (1975), 185.
- (15) M. Kersten : Z. angew. Phys., **7** (1955), 397 ; **8** (1956), 382, 496.
- (16) M. Kersten : Z. angew. Phys., **8** (1956), 313.
- (17) W. Köster : Z. Metallk., **35** (1943), 57, 68.
- (18) S. Chikazumi : Phys. Rev., **85** (1952), 918.
- (19) F. Bloch : Z. Phys., **74** (1932), 295.
- (20) M. Kersten : Probleme der Technischen Magnetisierungskurve, (1938), 43.

Ni-Fe-Ta-W 系高透磁率合金 Hardperm について*

増本 量** 比内正勝** 村上雄悦**

Hakaru Masumoto, Masakatsu Hinai and Yūetsu Murakami : High Magnetic Permeability Alloys "Hardperm" in the Ni-Fe-Ta-W System. Ni-Fe-Ta-W alloys were heated in hydrogen atmosphere at 1150°C for 3 hr and then cooled at various rates from a temperature above their order-disorder transformation points. The highest initial permeability of 101000 is obtained with the alloy of 73.40% Ni, 10.96% Fe, 14.11% Ta and 1.53% W cooled at the rate of 200°C/hr, and the highest maximum permeability of 557000 with the alloy of 73.50% Ni, 10.96% Fe, 14.99% Ta and 0.55% W cooled at 300°C/hr. The alloy having the highest initial permeability exhibited the electrical resistivity of $71.4 \mu\Omega\text{-cm}$, with 210 Vickers hardness. The high permeability of the Ni-Fe-Ta-W alloys is largely due to the effective contributions of the high-temperature heat treatment in hydrogen atmosphere to the homogeneity of alloys and removal of impurities, associated with the low values of saturation magnetostriction and crystal magnetic anisotropy in a proper state of ordering.

(Received October 22, 1975)

** 財団法人電気磁気材料研究所 (The Research Institute of Electric and Magnetic Alloys, 2, Yagiyama-Minami, Sendai)

* 1974 年 11 月金属学会東大阪大会に発表; 財団法人電気磁気材料研究所研究報告第 94 号

I. 緒 言

著者らは先に Ni-Fe 系において規則格子 Ni_3Fe が存在する組成範囲の合金に周期表の Va 族に属する Ta を添加する⁽¹⁾と Nb を添加した場合⁽²⁾と同様に磁性が非常に向上し、比電気抵抗および硬度が高くなることを発見した。つづいて Ni-Fe-Ta 系合金に IVa 族に属する Mo および Cr を添加して実験を行い、その特性の変化について報告しておいたが⁽³⁾⁽⁴⁾、本報では引きつづき Ni-Fe-Ta 系に IVa 族の W 添加の影響について研究した結果を述べる。

II. 試料および実験方法

合金の原料としては純度 99.8% Ni, 99.9% Fe, 99.9% Ta および 99.9% W を使用した。試料を造るにはまず全重量 500 g の原料を真空中で高周波誘導電気炉によって溶解した。つぎに、これを直径 20 mm, 長さ 150 mm の孔をもつ鉄型に注入し、得られた鋳塊を鍛造の後その一部を熱間および冷間圧延により厚さ 0.3 mm の薄板とし、他の一部を冷間 swaging および引き抜きによって直径 2 mm の線とした。薄板からは内径 33 mm, 外径 45 mm のリング試料を打ち抜き、線からは長さ 100 mm の棒を切りとった。さらにこれらを Pd 膜を通して純化した露点 -70°C の水素雰囲気中において、 1150°C , 3 hr 加熱した後、規則格子変態点以上の温度から $1400\sim 15^\circ\text{C/hr}$ の速度で常温まで冷却した。試料の数は Ni 72.45~75.61%, Fe 9.92~12.84%, Ta 10.13~15.98% および W 0.32~4.05% からなる合金 41 種である。透磁率、磁気履歴曲線はリング試料について弾動検流計法および自記磁束計により、飽和磁束密度、飽和磁気歪み定数および比電気抵抗は棒試料を用い光学的ローラー法、弾動検流計法および電位差計法により、また硬度は厚さ 0.3 mm の薄板を用いマイクロビッカース硬度計(荷重 500 g)によって測定した。

III. 実験結果および考察

実験結果は Figs. 1~7 および Table 1 にまとめてある。Fig. 1 および Fig. 2 には Ni-Fe-Ta-W 系の合金 No. 4, No. 8, No. 20, No. 28, No. 31 および No. 37 の初透磁率 μ_0 および最大透磁率 μ_m ならびに最大磁束密度 5 kG に対する保磁力 H_c ならびに残留磁束密度 B_r と冷却速度との関係が示してある。 μ_0 および μ_m は冷却速度に強く依存して、それぞれ一つの極大を示し、またその極大にはほぼ対応して B_r および H_c は極小を示している。これらの極大および極小の現われるのは Ni-Fe 系合金⁽⁵⁾の場合と同様に合金が適度の冷却速度によって最も磁化し易い規則状態におかれることによるものと思われる。Fig. 3 には Ni 73.00~74.02% および Ta 14.00~14.11% を含む Ni-Fe-Ta-W 系合金の μ_m の最大値を現わす最適冷却速度と W 量との関係が示してある。W 含有量が多いほど最適冷却速度は小さ

Fig. 1 Variations in initial permeability μ_0 and maximum permeability μ_m with cooling rate for several high permeability Ni-Fe-Ta-W alloys. The alloy compositions were: alloy No. 4 (74.02% Ni, 11.35% Fe, 14.08% Ta, 0.55% W), No. 8 (73.50% Ni, 10.96% Fe, 14.99% Ta, 0.55% W), No. 20 (73.40% Ni, 10.96% Fe, 14.11% Ta, 1.53% W), No. 28 (73.60% Ni, 11.30% Fe, 13.08% Ta, 2.02% W), No. 31 (73.00% Ni, 10.96% Fe, 14.00% Ta, 2.04% W) and No. 37 (73.05% Ni, 10.97% Fe, 12.98% Ta, 3.00% W).

Fig. 2 Variations in coercive force H_c and residual magnetic induction B_r with cooling rate for alloys shown in Fig. 1.

Fig. 3 Optimum cooling rate for μ_m as a function of W content in Ni-Fe-Ta-W quaternary alloys containing 73.00~74.02% Ni and 14.00~14.11% Ta.

Fig. 4 Effect of W content on highest initial permeability μ_0 and maximum permeability μ_m for each of Ni-Fe-Ta-W alloys containing (a) 73.05~74.51% Ni and 12.98~13.27% Ta and (b) 73.00~74.02% Ni and 14.00~14.11% Ta.

くなっており Cr および Mo 添加の場合についてその効果は大きい。そしてその効果は Ni-Fe 合金に Cr, Mo, Nb および Ta を添加した場合とよく類似している^{(1)(2)(6)~(8)}。

つぎに Fig. 4 には Ni 73.05~74.51% および Ta 12.98~13.27% を含む Ni-Fe-Ta-W 合金 (a) と Ni 73.00~74.02% および Ta 14.00~14.11% を含む Ni-Fe-Ta-W 合金 (b) について得られた μ_0 および μ_m の最大値と W 量との関係曲線が示してある。 μ_0 および μ_m はいずれの場合も W 量に対して一つの極大を示すが、その極大は Ta 量の増加に伴い、W 量の少ない組成に移行し、一般に Ta と W とは μ_0 および μ_m に対して組成的に置換効果を有することがわかる。Fig. 5 には、Fig. 4 と同じ合金について μ_m の最大値を現わす熱処理を施して得られた H_c および B_r におよぼす W 量の効果が示してある。 H_c および B_r は W 量に対して μ_0 および μ_m の極大にほぼ対応した一つの極小を示している。Fig. 6 には同様に Fig. 4 と同じ合金について μ_m の最大値を現わす熱処理を施して得た飽和磁束密度

Fig. 5 Effect of W content on coercive force H_c and residual magnetic induction B_r of alloys (a) and (b) shown in Fig. 4.

Fig. 6 Effect of W content on saturation magnetic induction $4\pi I_s$ and electrical resistivity ρ of alloys (a) and (b) shown in Fig. 4.

$4\pi I_s$ および比電気抵抗 ρ におよぼす W 量の効果が示してあるが、W の増加とともに $4\pi I_s$ は単調に減少し、 ρ は増加している。

測定した合金 41 種のうち特に高い透磁率を示した合金 19 種の冷却速度と高透磁率合金として必要な特性との関係を示すと Table 1 のようになる。ここで μ_1 は磁場 1 mOe における透磁率、 W_h は最大磁束密度 5 kG に対する履歴損失である。また λ_s は飽和磁気歪み定数、また Hv はビッカース硬度である。得られた μ_0 および μ_m の最高値は、それぞれ Ni 73.40%, Fe 10.96%, Ta 14.11%, W 1.53% からなる合金 No. 20 を 1150°C で 3 hr 加熱の後、200°C/hr の速度で冷却した場合の 101000 および Ni 73.50%, Fe 10.96%, Ta 14.99%, W 0.55% からなる合金 No. 8 を 300°C/hr で冷却した場合の 557000 で極めて高く、また合金 No. 20 の ρ は 71.4 $\mu\Omega\text{-cm}$ でかなり大きい。さらに Ni-Fe-Ta-W 系合金の Hv は約 210 で、従来の Permalloy, Mo-Permalloy および Mumetal の約 120 に比してかなり高い。よって著者らはこれらの合金を Hardperm と称した。

Table 1 中の合金 No. 4, No. 5, No. 8, No. 19 および

Table 1 Magnetic properties, electrical resistivity and Vickers hardness of high permeability Ni-Fe-Ta-W alloys heated at 1150°C for 3 hr.

Alloy No.	Composition (Rest Ni, %)			Cooling rate (°C/hr)	μ_0	μ_1	μ_m	W_h (erg/cm ³ /cycle)	B_r (kG)	H_c (mOe)	$4\pi I_s$ (kG)	λ_s ($\times 10^{-6}$)	ρ_{Ω} (cm, 20°C)	Hv (Vickers hardness)
	Fe	Ta	W		($\times 10^3$)			$B_m=5$ kG			$H=1$ kOe			
—	12.05	14.95	0	800	57	63	428	8.0	3.4	5.2	7.4	0.5	64.3	197
1	11.85	13.10	0.54	400	35	39	385	8.0	3.2	5.5	6.9	0.4	63.5	198
4	11.35	14.08	0.55	800	88	97	353	6.0	2.9	4.5	6.5	0.4	66.9	209
4	11.35	14.08	0.55	400	66	96	555	5.1	3.4	3.6	6.5	0.4	67.1	—
5	11.22	14.04	0.73	600	71	82	514	5.8	3.4	3.5	6.3	0.4	68.3	214
5	11.22	14.04	0.73	400	93	107	434	5.7	2.7	3.3	6.3	0.4	68.7	—
7	11.13	15.35	0.32	800	99	122	443	5.9	2.5	3.9	6.1	0.5	70.2	220
8	10.96	14.99	0.55	400	93	131	499	3.7	2.8	3.0	6.2	0.4	70.5	216
8	10.96	14.99	0.55	300	75	124	557	3.6	3.0	2.4	6.2	0.4	70.8	—
11	10.47	15.98	0.53	300	42	46	137	9.1	2.1	8.9	—	—	—	217
14	11.88	13.27	1.04	400	47	55	395	6.4	3.1	4.7	6.6	0.7	66.6	200
14	11.88	13.27	1.04	300	55	70	348	5.7	2.9	4.2	6.6	0.7	66.6	—
16	11.35	14.10	1.05	300	94	110	487	4.5	2.8	3.7	6.3	0.5	70.6	207
17	10.49	14.90	1.05	150	51	55	244	8.7	2.9	6.2	5.8	0	73.0	219
19	11.44	13.00	1.54	300	73	93	305	7.1	2.9	4.7	6.5	0.5	68.0	196
19	11.44	13.00	1.54	200	61	68	496	6.5	3.4	3.7	6.4	0.5	68.3	—
20	10.96	14.11	1.53	240	66	93	474	6.2	3.3	3.3	6.1	0.4	71.4	210
20	10.96	14.11	1.53	200	101	120	416	4.9	2.9	3.4	6.1	0.4	71.4	—
22	12.84	10.14	2.03	240	20	22	273	12.3	4.3	7.3	7.3	0.9	60.2	180
23	11.87	12.17	2.01	150	40	41	261	10.8	3.1	6.8	6.6	0.7	67.2	202
28	11.30	13.08	2.02	150	85	96	359	6.4	3.1	5.3	6.3	0.5	71.3	198
31	10.96	14.00	2.04	150	35	43	335	9.9	3.9	5.8	6.0	0.5	74.9	207
31	10.96	14.00	2.04	100	44	47	212	11.4	3.2	8.2	6.0	0.5	75.2	—
33	12.32	10.13	2.96	100	47	49	220	12.7	3.7	8.8	6.9	0.7	65.2	191
34	11.44	12.07	3.04	50	48	51	225	9.8	3.0	7.8	6.2	0.5	72.8	199
37	10.97	12.98	3.00	50	45	55	287	9.4	3.1	6.6	5.9	0.4	75.6	199
41	10.95	11.97	4.05	20	46	47	224	11.4	3.3	8.4	5.9	0.5	77.0	189

Fig. 7 Hysteresis curves of alloy No. 8 (73.50% Ni, 10.96% Fe, 14.99% Ta, 0.55% W) cooled at the rate of 300°C/hr and No. 20 (73.40% Ni, 10.96% Fe, 14.11% Ta, 1.53% W) cooled at 200°C/hr.

No. 31 の ρ についてみるに、冷却速度が小さいときの方が大きいときより若干大きくなっている。これはすでに Ni-Fe-Mo 合金⁽⁹⁾ならびに Ni-Fe-Nb 合金⁽¹⁰⁾で考察したように小さい冷却速度の際には短範囲的な規則格子が生成し易いことによるものと思われる。Fig. 7 には 300°C/hr の速度で冷却した合金 No. 8 および 200°C/hr で冷却した合金 No. 20 について磁気履歴曲線が示してあるが、それらの H_c および W_h はいずれも非常に小さく、それらの値

はそれぞれ 2.4 および 3.4 mOe ならびに 3.6 および 4.9 erg/cm³/cycle である。

Ni-Fe-Ta-W 系合金の透磁率が極めて高く、優秀な磁性を示す原因としては、第 1 に高純度水素雰囲気中で 1150°C, 3 hr の加熱による組成の均一化、内部歪みの原因となる炭素、窒素および酸素などの不純物の減少および結晶粒の粗大化⁽¹¹⁾⁽¹²⁾、第 2 には最適冷却速度によってもたらされる微小な λ_s (Table 1 参照) ならびに微小な結晶磁気異方性定数などが考えられる⁽¹⁰⁾⁽¹³⁾⁽¹⁴⁾。

IV. 総 括

Ni 72.45~75.61%, Fe 9.92~12.84%, Ta 10.13~15.98% および W 0.32~4.05% からなる Ni-Fe-Ta-W 系合金について真空溶解後、鍛造、圧延あるいは swaging および引き抜きによってリング試料ならびに棒試料を造り、露点 -70°C の水素雰囲気中で 1150°C, 3 hr 加熱した後規則格子変態点以上の温度から 1400~15°C/hr の速度で常温まで冷却し、その磁性、比電気抵抗および硬度を測定してつぎの結果を得た。

(1) Ni-Fe-Ta-W 系合金の初透磁率 μ_0 および最大透磁率 μ_m は一般に冷却速度に依存し、ある冷却速度においてそれぞれ一つの極大を示す。極大値を現わす最適冷却速度は W 量の増加とともに小さくなる。そして得られた μ_0 および μ_m の最高値はそれぞれ Ni 73.40%, Fe 10.96%, Ta 14.11%, W 1.53% からなる合金 No. 20 を 200°C/hr

の速度で冷却したときの 101000 および Ni 73.50%, Fe 10.96%, Ta 14.99%, W 0.55% からなる合金 No.8 を 300°C/hr で冷却したときの 557000 である。

(2) 最大磁束密度 5 kG に対する保磁力および履歴損失は冷却速度に依存し、ある冷却速度において一つの極小を示すが、一般に非常に小さい。300°C/hr で冷却した合金 No.8 および 200°C/hr で冷却した合金 No.20 の値はそれぞれ 2.4 および 3.4 mOe ならびに 3.6 および 4.9 erg/cm³/cycle である。

(3) 飽和磁束密度は Cr 量の増加とともに単調に減少し、比電気抵抗は増大する。合金 No.8 および No.20 の飽和磁束密度および比電気抵抗はそれぞれ 6.2 および 6.1 kG ならびに 70.8 および 71.4 $\mu\Omega$ -cm である。

(4) Ni-Fe-Ta-W 系の高い透磁率を示す合金は非常に小さな飽和磁気歪み定数 λ_s を有し、また従来の Permalloy, Mo-Permalloy および Mumetal に比してかなり高い硬度 Hv を示す。たとえば合金 No.8 の λ_s および Hv はそれぞれ 0.4×10^{-6} および 216 である。

文 献

- (1) 増本 量, 村上雄悦, 比内正勝: 金属学会誌, **36** (1972), 63; Trans.JIM, **14** (1973), 242.
- (2) 増本 量, 村上雄悦, 比内正勝: 金属学会誌, **35** (1971), 985; Trans.JIM, **13** (1972), 182.
- (3) 増本 量, 比内正勝, 村上雄悦: 金属学会誌, **39** (1975), 281; Trans.JIM, **16** (1975), 657.
- (4) 増本 量, 比内正勝, 村上雄悦: 金属学会誌, **39** (1975), 1127; Trans.JIM, **17** (1976), 308.
- (5) H.D.Arnold and G.W.Elmen: J.Frank. Inst., **195** (1923), 621.
- (6) G.W.Elmen: Elec.Eng., **54** (1935), 1292.
- (7) D.J.Snee: J.Appl.Phys., **38** (1967), 1172.
- (8) R.D.Enoch and D.L.Murrell: IEEE Trans. Magnet., **Mag-5** (1969), 370.
- (9) 中村 豊, 片山利一, 中川愛彦, 長島富雄: 電試彙報, **27** (1963), 935.
- (10) 比内正勝: 金属学会誌, **40** (1976), 682.
- (11) P.P.Cioffi: Phys. Rev., **39** (1932), 363.
- (12) R.E.S.Walters: Acta Met., **3** (1955), 293.
- (13) I.M.Puzei: Izv.Akad. Nauk SSSR, Ser. Fis., **16** (1952), 549.
- (14) R.M.Bozorth: Rev.Mod.Phys., **25** (1953), 42.