高透磁率方向性けい素鋼板の方向性と鉄損

田 口 悟* 黒 木 克 郎*
和 田 敏 哉* 岩 山 健 三*

J. Japan Inst. Metals, Vol. 46, No. 6 (1982), pp. 609-615

Effect of Degree of Grain Orientation Alignment on Core Loss for Grain-Oriented Electrical Steel

Satoru Taguchi*, Katsuro Kuroki*, Toshiya Wada* and Kenzo Iwayama*

Grain orientation is an extremely important variable that affects the permeability. Improved orientation results in the greater permeability which in turn lowers the core loss. Recent developments have made it possible to produce greater permeability material.

In the case of 3% Si-Fe (110) [001] crystal, the core loss depends strongly upon the tilt angle of the [001] direction from the sheet plane. When the tilt angle is about 2° , the core loss becomes minimum, that is, when the tilt angle is less than about 2° , increase in the 180° domain wall spacing gives rise to increase in the core loss.

It is also known that the core loss takes minimum at B_g of about 1.95 T at 800 A/m for the laboratory products. A great part of increment in the loss in the range of B_g higher than 1.95 T is thought to be due to the coarsening of magnetic domains caused by increase in the number of grains having the ideal (110) [001] orientation.

These results were obtained by using the laboratory products, for which the samples were annealed in the form of flat sheet. In the manufacturing process, however secondary recrystallized grains grow during box annealing in coiled strip, and rounded grains are heat flattened by subsequent annealing. Even if (110) plane in the middle part of grain is parallel to the sheet plane, at the grain boundaries the tilt angle of [001] axis from the sheet plane is about 2° for large grains. Therefore, the 180° domains appear at the grain boundaries and the 180° domain wall spacing decreases so as to reduce the magnetostatic energy. The core loss of the products annealed in a coil form decreases as B_g increases higher than 1.95 T.

(Received August 1, 1981)

I. 緒 言

方向性けい素鋼板は (110) [001] 方位の 2 次再結晶粒の集りである。磁気特性の向上のための第 1 の要因は [001] 軸を圧延方向へ揃えること、すなわち方向性の向上で、高透磁率方向性けい素鋼板が開発されて以来、特にこのための努力がはらわれてきた。また、方向性けい素鋼板の鉄損が減少するに従って、鉄損に占める渦電流損の割合が増大し、特に異常渦電流損の増大が重要な問題となってきた。異常渦電流損は磁区の磁壁の移動で発生する電流による熱損失で、磁壁の移動速度の自乗に比例する。一定の商用周波数ではこの速度は磁壁の移動距離に比例するので、磁区の幅が問題となる。しかし磁区の幅が大きくなると磁壁の数は反比例して少なくなるので、異常渦電流損は磁区幅の自乗に比例しなくて、大略磁区幅に比例して増大する。

一般に方向性けい素鋼板は、方向性の向上とともに結晶粒が大きくなる傾向があり、2 段冷延法で処理する、いわゆるゴス法で製造していた従来の製品よりも結晶粒が粗大

化してきた。従来の予想では、結晶粒の粗大化のために磁区幅が広くなり、異常渦電流損が増大し、鉄損の減少は余り期待できないとされていた。しかし高透磁率方向性けい素鋼板では、方向性のよいものほど、圧延方向に張力を加えることによって磁区幅が減少し、鉄損が減少する現象があり、実際の製品では、高温で表面被膜を生成させて鋼板との熱膨張の差によって鋼板に張力を及ぼし、磁区幅を狭くし、鉄損を減少させることができる⁽¹⁾。

この 180° 磁区の幅の減少は、[001] 軸が板面から外れるために生ずる磁極の板面に垂直な成分による静磁エネルギーが大きいの、補助磁区の発生と磁区の細分化によって、静磁エネルギーの低い磁区幅の狭い磁区構造となるためである。張力が加わることによって、磁区の細分化は進む。しかし方向性が向上し、[001] 軸の板面からの傾きが非常に小さくなると、磁極が発生しなくなり、静磁エネルギーが問題にならないので、磁区幅は広いほど、磁壁の面積は小さくて磁壁のエネルギーが低いので、磁区幅は広くな

* 新日本製鉄株式会社生産技術研究所 (Process Technology R. & D. Laboratories, Nippon Steel Corporation, Kitakyushu)

り、異常渦電流損の増大のため、鉄損の増大が予想された。

単結晶による実験の結果、[001]軸の板面からの傾きが小さくなるほど鉄損は減少するが、この傾きが約 2° 以内になると磁区幅が急激に増大し、これにともなって鉄損が急激に増加する。鉄損の最小値は傾きが約 2° のものである。また、多結晶では、実験室で試作した結果は、方向性に最もよく対応する 800 A/m (約 10 Oe) における磁束密度 B_8 と 1.7 T, 50 Hz の鉄損 $W_{17/50}$ との関係では、 B_8 の向上とともに鉄損は減少するが、 B_8 が 1.95 T で鉄損値が最も低く、 B_8 が 1.95 T 以上になると鉄損は増大した。この結果、方向性の向上による鉄損の減少には限界があり、[001]軸の板面からの傾きが約 2° 以下、あるいは B_8 が 1.95 T 以上になると、鉄損の減少は期待できなくて、かえって増大するとされ、この考えは世界中の関係者を支配するものとなった。

これらの実験に使用した試料は、実験室で処理され、焼鈍はすべて平坦な板状で行なわれた。しかし、実際の生産では、2次再結晶粒を生成させる高温長時間の焼鈍はコイル状で焼鈍され、粗大な結晶に成長させた後に平坦化する。コイル焼鈍の場合は、粗大な結晶粒の中心部で [001] 軸がたとえ板面にほとんど平行なもので、結晶粒界の近傍では [001] 軸は板面に傾きがあり、これを平坦化しても、[001] 軸は板面に傾きがある。このため、実際の生産の場合のようなコイル焼鈍では B_8 が 1.95 T 以上になっても、鉄損が減少することが可能である。

本研究では、平坦な状態で焼鈍して2次再結晶粒を生成した場合と、コイル状で焼鈍して2次再結晶粒を生成した場合について、方向性と鉄損の関係および磁区の構造を調べ、方向性の向上による鉄損の減少には限界はなく、減少し続けることが可能であることを示した。

II. 実験方法

コイル状の焼鈍は、曲率半径 500 mm に湾曲した状態で焼鈍して、2次再結晶粒を生成させた。磁気測定は 60 mm × 300 mm で厚さ 0.30 mm の試料を単板測定器で測定した。

磁区の観察は、従来からある powder pattern 法と、走査形電子顕微鏡による方法、および簡易磁区観察装置で行なった。簡易磁区観察装置は垂直磁界印加コロイド法⁽²⁾と原理的には全く同一であるが、改良を加えて標準化したものである。垂直磁界印加用電磁石は 180 mm × 80 mm の断面を有する軟鋼にコイルを巻き、試料を乗せ、5~6 mT (50~60 G) の垂直磁界を加える。試料は上片面に白色ラッカーを噴霧して、コロイドの濃淡部が鮮明に判別できるようにした。強磁性コロイド液としては、市販の水溶性磁性流体 FERROFLUID (FERROFLUIDICS 社製、カタログ No.-2 W03, 飽和値 200 G) を 500 倍の水で希釈し、さらに、

ドライウエル等の界面活性剤を数滴混入させたものを使用した。垂直磁界を加えると約 30 s で磁区の濃淡が現われる。

III. 実験結果と考察

方向性けい素鋼板の鉄損に影響するものは、主として方向性、板厚、けい素含有量、結晶粒の大きさ、純度、内部歪であり、また、高透磁率方向性けい素鋼板の場合は、表面被膜の張力効果が大きな効果をおよぼしている^{(3)~(7)}。

これらの因子のうち、鉄損を減少させるための最も重要な因子は方向性の向上である。この方向性の向上と表面被膜の張力の相乗的な効果によって鉄損を大幅に減少させることができた。しかし、磁区の観察などの研究の進展にともなって、方向性の向上による鉄損の減少には限界があることが予想されてきた。

Fig.1 は単結晶による実験結果である⁽⁸⁾。板厚が 0.20 mm で長さが 70 mm、幅 15 mm の (110) [001] 方位に近い単結晶について、[001] 軸の板面からの角度 β と鉄損との関係を示したものである。 β が約 2° で鉄損が最小値を示している。張力を加えた場合は一層顕著である。そのヒステリシス損には角度による大きな変化がないので、鉄損 (total loss) からヒステリシス損を差引いた渦電流損が β が

Fig.1 Relationship between misorientation angle β and total core loss; at 1.7 T and 50 Hz, and dc hysteresis loss. Thicknesses are 0.20 mm.

2° で最低となっていることを意味する。傾き角が 2° より小さい範囲では、傾き角の減少と共に鉄損は増加し、完全な (110) [001] 方位のところまで鉄損は増大し続ける。 β が 2° より小さくなると、磁区幅が急激に増大して、異常渦電流損が激増するためである。

この現象は多結晶についても認められた⁽⁹⁾。Fig. 2 はコイル状でなく平板状で焼鈍して、結晶粒の大きさが 5~10 mm 位のものである。鉄損は B_g が約 1.95 T 以上になると、単結晶の場合程著しくはないが、鉄損は増大している。

実際の製造では、2 次再結晶粒は 1473 K (1200°C), 72 ks (20 h) といった高温長時間の焼鈍で成長させるので、必ずコイル状で焼鈍される。Fig. 3 (a) に示すように平板状で成長した粗大な結晶粒は [001] 軸が板面にほとんど平行な場合は、磁区は結晶粒界を通して連続となり磁極を生じないため、静磁エネルギーの発生がないので、磁区の細分化の必

要がない。このため、方向性の向上と共に磁区幅が広くなり、鉄損が増大する。コイル状の場合は、Fig. 3 (b) に示すように結晶粒の中心部で [001] 軸が板面に平行な場合でも、必ず結晶粒界の近傍では隣接する結晶粒と [001] 軸はくいちがいができる。例えば、直径 1000 mm のコイルで、長さ 20 mm の結晶粒では約 2° のくいちがいが生ずる。焼鈍をして平坦にすると、(c) の状態となり、この試料を酸洗すると、片面は凸状に、反対の面は凹状に湾曲して見える。

多結晶の場合は、結晶粒界でのくいちがいは様々な状態が考えられる。くいちがいの非常に小さい場合の例を Photo. 1 に示す。この磁区の powder pattern では、磁壁は結晶粒界を貫いて補助磁区は発生していない。これに張力を加えても、磁区は全く変化しない。隣接の結晶粒とわずかくくいちがいのある場合は、Photo. 2 に示すように、磁壁は粒界を貫いているが、粒界近傍に補助磁区が発生して、磁極の発生を防ぎ、静磁エネルギーを低くしている。

Fig. 2 Relationship between core loss and flux density at 800 A/m for laboratory products annealed in a flat form.

Fig. 3 (110) [001] secondary recrystallized grains.

Photo. 1 An example of no nucleation of spike domains by tension.
(a) No tension
(b) Applied tension

Photo.2 An example of the nucleation of spike domains by tension. (a) No tension. In (b) to (c) the applied tension has been successively increased.

Photo.3 Typical domain patterns in a large grain for 3% silicon iron strip final-annealed in a coil form.

これに張力を加えると補助磁区が伸びた状態となる。方向性のよいものでは、平板状で焼鈍した場合は、Photo.1 のような場合が多くなると考えられる。これに反して、コイル状で焼鈍した場合は Photo.1 のような状態はほとんど生じないで、Photo.2 に示すように、粒界近傍に補助磁区が発生する。

Photo.3 は走査形電子顕微鏡による磁区構造を示す。これはコイル状で焼鈍したものを平坦化し、酸洗して、表面被膜を除いたものである。結晶粒の中心部と粒界部の磁区構造を示す。この結晶粒は中心部ではほとんど $(110) [001]$ に近い方位のよいもので、中心部には補助磁区は見られないが、粒界に近づくほど補助磁区が増加して、粒界近傍での方位のくいちがいのために生ずる磁極の発生による静磁エネルギーの増大を補助磁区によって低下させていること

がわかる。この表面に表面被膜がある場合は、さらに磁区は細分化される。

方向性が向上し、 $[001]$ 軸の板面からの傾き角 β が結晶粒の中心部で 2° 以下になっても、コイル状焼鈍の場合は、結晶粒界近傍での方位のくいちがいのために、磁区が細分化され、鉄損が減少し続けることが可能であると考えられる。

Photo.4 および **Photo.5** はそれぞれ平板状とコイル状で焼鈍したものの典型的な磁区構造の例で、垂直磁界印加コロイド法によるものである。上段は表面被膜のある場合の磁区模様を示し、中段はその酸洗後のマクロ組織、下段は酸洗後の磁区模様を示す。コイル状で焼鈍したものは平板状で焼鈍したものより磁区幅が狭く、また、酸洗して表面被膜を除き張力効果のなくなったものでも、結晶粒界近

Photo.4 Domain patterns for sheet box-annealed in a flat form.

傍の方位のくいちがいのために、磁区がかなり細分化していることがわかる。平板状で焼鈍したものには、非常に大きな結晶粒があるが、このように粗大な結晶はコイル状に湾曲した板では成長することは困難である。平板状のものが、より大きな結晶粒に成長する傾向があることも、コイル状焼鈍のものより磁区幅が広くなり、鉄損が悪くなる一因となっている。磁区幅が大きくなっているのは、方位のよい結晶粒である。

曲率半径約 500 mm で湾曲した状態で焼鈍した場合の方向性と鉄損の関係の代表的な例を Fig.4 に示す。結晶粒の大きさによって鉄損は左右されるので、平均粒径が 10~20 mm 程度の大きな結晶粒のものについて、方向性に極めてよく対応する B_8 と鉄損の関係を示した。Fig.2 と異なり、方向性の向上とともに鉄損が減少している。

IV. 結 言

方向性けい素鋼板の鉄損は (110) [001] 方位の集積度を

高めることによって改善されてきたが、集積度がある程度以上よくなると、結晶粒が大きくなる場合が多く、このため渦電流損が増大して、鉄損の減少が困難になる傾向があった。単結晶の実験によって、鉄損の減少のためには、方向性の向上にも限界があることが証明され、多結晶についても、 B_8 が 1.95 T で鉄損が最低となり、それ以上に方向性がよくなると鉄損はかえって増大することが実証された。鉄損の減少のために、方向性の向上には限界があるとされた。

しかし、何れも平板状での 2 次再結晶粒の成長であり、実際の生産の場合のコイル焼鈍での 2 次再結晶粒の成長とは異っている。コイル状で焼鈍する場合は、如何に集積度のよい結晶粒でも、隣接結晶粒との間に [001] 方位の方位差があり、また、結晶粒は湾曲している。このために、方向性がよくなっても、板面に磁極が発生する。この静磁エネルギーを減じるために磁区幅が細分されて、静磁エネルギー

Photo.5 Domain patterns for strip box-annealed in a coil form and heat flattened.

Fig.4 Effect of flux density at 800 A/m on typical total loss in the grain-oriented electrical steel strips annealed in a coil form.

一の低い状態となり、異常渦電流損の増大を抑えることが可能となる。このような磁区構造となるために、方向性が向上して B_8 が 1.95 T 以上になっても鉄損が減少し続けることが可能となる。また、コイル状の焼鈍では、平板状の焼鈍の場合のように、非常に大きな結晶粒の成長は不可能である。このことは鉄損の減少のために有利であるが、一般的な傾向として、方向性が向上すると結晶粒が粗大化する傾向があるので、結晶粒の粗大化を抑制する努力が必要である。

高透磁率方向性けい素鋼板の鉄損は、板厚を薄くすること、けい素含有量を増すこと、結晶粒を小さくすることなどによって減少が可能であるが、方向性の向上が最も本質的な因子であり、鉄損の減少のための限界はなく、方向性の向上によって鉄損は減少し続けることが可能である。

文 献

- (1) 田口 悟：日本金属学会会報，13(1974)，49。

- (2) K.Mohri, S.Takeuchi and T.Fujimoto: IEEE Trans.on Mag., **15**(1979), 1598.
- (3) S.Taguchi and A.Sakakura: J.Appl. Phys., **40**(1969), 1539.
- (4) A.Sakakura, T.Wada, F.Matsumoto, K.Ueno, K.Takashima and M.Kawashima: Amer.Inst. Phys. Conference Proc. Magnetism and Magnetic Materials, **24**(1974), 714.
- (5) T.Yamamoto and T.Nozaawa: J.Appl. Phys., **41**(1970), 2981.
- (6) T.Yamamoto, S.Taguchi, A.Sakakura and T.Nozaawa: IEEE Trans.on Mag., **8**(1972), 677.
- (7) S.Taguchi, T.Yamamoto and A.Sakakura: IEEE Trans. on Mag., **10**(1974), 123.
- (8) T.Nozaawa, T.Yamamoto, Y.Matsuo and Y.Ohya: IEEE Trans. on Mag., **14**(1978), 252.
- (9) T.Sato, K.Kuroki and O.Tanaka: IEEE Trans. on Mag., **14**(1978), 350.

日本金属学会誌 第 46 巻 第 6 号 (1982) 615-619

液体急冷 Ni-10 at%Ti 変調構造合金の時効

宮川 幸夫* 青柳 光* 鈴木 恒則**
西 義武*** 矢島悦次郎***

J. Japan Inst. Metals, Vol. 46, No. 6 (1982), pp. 615-619

Aging of Liquid-quenched Ni-10 at%Ti Modulated Structure Alloy

Yukio Miyagawa*, Hikaru Aoyagi*, Tsunenori Suzuki**,
Yoshitake Nishi*** and Etsujiro Yajima***

The aging behavior of supersaturated Ni-10 at%Ti crystals, quenched rapidly from liquid state and solid state, has been studied. The phase transformation is investigated by means of micro-Vicker's, magnetic balance and field ion microscopy (F.I.M.). The rate of age-hardening for the liquid-quenched (L.Q.) specimen is larger than that for the solid-quenched (S.Q.) specimen. For both the L.Q. and the S.Q. specimen the hardness decreases at about 7 ks, and then increases. The transformation kinetics is discussed by means of generalized Johnson-Mehl equation, where the ratio of transformation is estimated from the hardness and the Curie temperature. The values of time exponential n are approximately equal for the L.Q. and the S.Q. specimen, and are 0.279 (about 1/3) and 0.284, respectively. These results show that the mechanism of transformation on aging for the L.Q. specimen is as the same as that for the S.Q. specimen. Furthermore, the field ion micrographs for both the transformed L.Q. and the transformed S.Q. specimens show a modulated structure. However, the kinetic constant (k) of transformation for the L.Q. specimen is about four times larger than that for the S.Q. specimen on 873 K aging.

(Received October 23, 1981)

I. 緒 言

Ni-Ti 合金は時効にともない変調構造が出現することが知られており^{(1)~(3)}, これに関連する研究は種々の解析手段により数多く報告されている^{(4)~(10)}. しかし液体急冷凝固による過飽和固溶体の, 時効による相分解に関する速度論的検討は以前に我々が Cu-Ti 合金について報告⁽¹¹⁾したもの以外は 1, 2 あるのみで, いうまでもなく Ni 合金については皆無である.

先の研究⁽¹¹⁾により液体急冷合金と固体急冷合金の時効

における変態の機構は同じであるが, 液体急冷合金の変態速度は固体急冷合金の変態速度より速いことを報告した.

そこで本報告においては変調構造を呈することが知られている Ni-10 at%Ti 合金について, 液体急冷凝固することにより得られる過飽和結晶固溶体の時効挙動を調べ, 変態機構について考察した.

II. 試料および実験方法

実験に供した試料は電解 Ni (99.99 mass%) とスポンジ

* 東海大学大学院 (Graduate School, Tokai University, Hiratsuka)

** 東海大学理学部 (Department of Physics, Faculty of Science, Tokai University, Hiratsuka)

*** 東海大学工学部 (Department of Materials Science, Faculty of Engineering, Tokai University, Hiratsuka)