研 究

Fe-Si系複合磁性合金の交流磁気特性に及ぼすSiおよびB成分の影響

草加 勝司^{☆1}, 倉地 孝成^{☆1}, 近藤 鉄也^{☆2}^{☆1}大同工業大学, 〒457-8531 名古屋市南区大同町 2-21.^{☆2}大同特殊鋼(株), 〒457-0811 名古屋市南区大同町 2-21.

Effect of Si- and B-content on AC Magnetic Properties of Fe-Si type Magnetic Alloys

Katsushi Kusaka^{☆1}, Takanari Kurachi^{☆1} and Tetsuya Kondo^{☆2}^{☆1}Daido Institute of Technology, 2-21 Daido-cho Minami-ku, Nagoya 457-8531.^{☆2}Daido Steel Co., Ltd., 2-30 Daido-cho Minami-ku, Nagoya 457-0811.

Received June 29, 2000

SYNOPSIS

A fundamental study was subsequently made on the AC magnetic properties of Fe-Si type magnetic alloys, prepared by means of diffusion-sintering soft-iron/Fe-21(wt%)Si-B mixed powders. In this case, Fe-21Si (eutectic) mother alloy fines with B content: 0–0.4 wt% was made by high-pressure water atomization and was blended with soft-iron powder to Fe-0~8(wt%)Si compositions.

The results obtained were summarized as follows:

- (1) Maximum flux density (B_m), specific permeability (μ_a) and core loss (P_{cv}) show almost the same dependence upon Si content and sintering temperature in the low frequency region.
- (2) The maximum flux density (B_m), typical of AC magnetic properties, has the maximum value in the Si content: 6~7 wt%, under roughly no influence of sintering temperature (1473–1623 K).
- (3) This AC tendency of B_m -Si relationship, differently from the magnetic induction (B_{10})'s one of DC magnetic properties, is indicative of large dependence upon electrical resistivity (ρ) through the so-called skin effect.
- (4) The maximum flux density (B_m) of Fe-6~7Si-B compacts sintered at 1573 K can be enhanced by ~20% due to the small B ingredient which generally has some deoxidizing effect in liquid phase.
- (5) This small amount of B: 0.05~0.1 wt% tends to remove impurities and hence, to clean the microstructure of sintered specimens but excess B may possibly pin the domain wall in AC magnetic field as inclusions.

KEY WORDS

magnetic properties, mother alloy fines, maximum flux density, electrical resistivity, skin effect

1 緒 言

Siを数%含むけい素鋼板は軟質磁性材料の代表として、磁気特性も良好で、比較的安価なことからモータやトランス類など重電から家電に至る広い産業分野にわたり使用¹⁾されている。さらに近年、電気機器の小型・軽量化の傾向と相俟って、高いけい素化、特にゼロ磁歪合金による高効率・低損失化²⁾が切望されている。しかし、Fe中への固溶Siの濃化は基質を硬く脆化させるため、Si~5wt%が工業的な圧延限界³⁾とされ、最近ではSiの表面処理技術も開発³⁾されている。一方、精密鑄造のほか、粉末冶金(PM, MIM⁴⁾)プロセスにより直接コアパーツ(磁芯)を製造し、高いけい素化かつ小型・軽量化する方法も期待できる。

そこで著者らは粉末冶金の一手段、母合金混合法⁵⁾によりSi~8wt%までの焼結体を試作し、直流磁気特性とSi量や焼結条件との関係について調査・報告⁶⁾した。ここではFe-6.5Si、つまりゼロ磁歪合金²⁾付近の焼結体について交流磁界中での磁気挙動を追究し、併せてSi/B複合添加による特性改善の可能性についても検討することとした。

2 試料および実験方法

前報⁶⁾と同様、高周波誘導炉により溶解し、高圧水噴霧法⁷⁾により製造したFe-21wt%(以後省略)Siのほか、B成分を0.1, 0.2, 0.4 wt%配合したもの、併せて4種類の母合金微粉末(平均粒径: 9.1~10.5 μ m)を使用した。

Table 1 に粉末の化学成分と酸素量を示す。

まず純鉄粉(A: -100 メッシュ)にFe-21Si 母合金微粉末(B)をFe-0~8Siの平均組成となるように、またFe-21Si-B 母合金微粉末(C~E)をFe-6~7Siの平均組成となるように適量配合し、V型ブレンダーで混合処理後、プレス成形により環状試験片(45φ×33φ×6mm)の形の圧粉体を作製した。この際、成形圧力は490MPaで一定とし、1%ステアリン酸亜鉛による混合潤滑法を採用した。これら圧粉体は脱ろう後、1373~1623 Kで60 min 真空焼結を施し、焼結密度を測定した。

交流磁気測定はB-Hアナライザー(岩崎通信製)を使用し、印加磁界は240 A/m⁸(3 Oe)に設定し、60 Hz~100 kHzの周波数領域における最大磁束密度(B_m)等の特性値を測定した。また対応する焼結試料⁹について、四端子法により電気抵抗率(印加電流: 0.3 A)を測定した。

一方、粉末の外観は走査型電子顕微鏡で観察し、また焼結

体の断面は研磨のままEPMAによる面分析を行いSi, Bの拡散状態を、さらに電解腐食し結晶粒界や化合物の析出状態を調べ、参考資料とした。

3 実験結果および考察

Fig.1~3 はA/B 圧粉体を真空焼結した試料を交流磁界 60 Hz中で測定したときの、磁気特性のSi量と焼結温度による変化を示す。一見して直流磁気特性⁹と異なり、最大磁束密度B_m、振幅比透磁率 μ_a ⁸($=B_m/H_m \cdot \mu_0$)、コア損失P_{cv}とも類似のSi量と焼結温度への依存性を示す。

一般にコア損失は交流磁界(周波数:f)中の磁芯に消費される電力と定義され、粉末焼結体の場合もヒステリシス損失と渦電流損失の和⁹で表される。この内、前者はヒステリシスル

Table 1 Chemical compositions of powders.

Type	C	Si	Mn	P	S	Cr	B	O
A	0.001	0.01	0.05	0.003	0.003	0.01	-	0.06
B	0.003	21.29	0.02	0.003	0.002	0.10	-	0.11
C	0.010	20.72	0.06	0.005	0.003	0.01	0.105	0.11
D	0.007	20.73	0.04	0.006	0.001	0.01	0.229	0.13
E	0.006	20.69	0.05	0.007	0.001	0.01	0.394	0.15

A:HAGANAS ABC100.30

B~E:High-pressure water-atomized

Fig.1 Change of max. flux density (B_m) with Si-content and sintering temperature (60 Hz).

Fig.2 Change of Specific permeability (μ_a) with Si-content and sintering temperature.

Fig.3 Change of core loss (P_{cv}) with Si-content and sintering temperature.

ブの面積に比例し、例えば $B^{1.6} \cdot f$ の形で、後者は $(B_m \cdot f)^{1/2} / \rho$ の形で表¹⁰⁾される。しかるに電気抵抗率 ρ は Si 量に対し比較的単調に変化⁶⁾するため、コア損失 P_{cv} は最大磁束密度 B_m と類似の特性傾向をもつ²⁾と解される。また最大磁束密度 B_m は前記 μ_a と比例関係 ($H_m = \text{一定}$) にあるため、以後は交流磁気特性を B_m で代表し、特性評価することとした。

そこで最大磁束密度 B_m (Fig.1, 60Hz) の Si 量と焼結温度との関係を調べるため、Fig.4(左)に焼結温度をパラメータとした断面図の形で示した。Fig.4で最大磁束密度 B_m は純鉄粉(左端)の 100~200mT を最低として、1473K 以上の焼結では右上がりの特性曲線となる。つまり B_m は Si 量が多いほど増加し、ゼロ磁歪合金²⁾の Si~7wt% 付近にピークをもつが、磁歪 (λ) 以外、異方性定数 (K) の低下も関与⁶⁾しているものと解される。一方、1373K の共晶温度²⁾ 以下では、Si 量が多い領域でも固相焼結が支配的で、Si の拡散・均一化が遅れ¹¹⁾、固化後も Si 偏析の形で残存し、磁束密度低下の原因となることは、EPMA-面分析やX線回折の手段により既に確認⁶⁾済みである。

さらに Fig.5~7(左)に同一試料を 1~100kHz の交流磁界中で測定したときの、最大磁束密度 B_m と Si 量、焼結温度との関係を後者をパラメータとして示す。前記 1373K 焼結を除けば、最大磁束密度 B_m は Fig.4~7 の各周波数とも類似の右上がりの曲線群からなる。しかし数値的に見ると、60Hz→100kHz と高周波数領域になるほど B_m の特性レベルは低下し、かつ特性曲線の勾配も増大する傾向がある。

周知のように、交流磁界中の磁性体(透磁率 μ)には渦電流により生じる磁界が作用し、表面から内部に向け(指数関数的に)磁束密度 (B_m) が減少する。この表皮の厚さ $S_{1/e}$ ¹²⁾ は

$$S_{1/e} = \sqrt{\rho / \pi f \mu} \quad (\mu = \mu_a \cdot \mu_0)$$

で与えられる。従って、磁性体としての有効断面積は高周波数領域 ($f \rightarrow \text{大}$) になるほど小さく、 B_m の特性レベルは低下⁸⁾することになる。

これを同一周波数に限ると、固溶 Si 量が多く、電気抵抗率 ρ が高い (Fig.8) ほど B_m は増大し、右上がりの曲線群となる。

Fig.4 Max. flux density (B_m) plotted to Si- and B-content (60Hz).

つまり、直流磁気特性 (B_{10}) に見られ⁶⁾た固溶 Si による強磁性元素の減少分より、電気抵抗の増大による表皮効果からの寄与の方が大きいことが定性的に理解される。さらに高周波数領域ほど B_m の特性曲線の勾配は増大し、Si 量からの寄与が大きくなる。因に Fig.7 の 100kHz 領域では、最大磁束密度 B_m と ρ の関係はかなり直線化されて $\sim 10 \text{ mT}/\mu\Omega\text{m}$ の改善効果が見込まれる。

ところで、ゼロ磁歪合金²⁾(Fe-6.5Si) 付近の最大磁束密度 B_m は、Fig.4~7 と (1373K 焼結を除き) 特性曲線が重なり、前報⁶⁾の磁束密度 B_{10} と同様、高温焼結による B_m の特性向上は

Fig.5 Max. flux density (B_m) plotted to Si- and B-content (1 kHz).

Fig.6 Max. flux density (B_m) plotted to Si- and B-content (10kHz).

Fig.7 Max. flux density (B_m) plotted to Si- and B-content (100 kHz).

あまり期待できない。そこで汎用的¹³⁾な1573K焼結において、遷移金属等で焼結活性化の可能性¹⁴⁾がある侵入型元素Bを母合金微粉末(Fe-21Si-0.4B)の形で微量添加することを試みた。

Fig.4~7(右)にFe-6~7Si-B圧粉体を1573Kで真空焼結した試料を交流磁界中で磁気測定したときの、最大磁束密度 B_m とB量との関係を示す。ただし、鉄粉/母合金微粉末の混合割合がSi量で決まるため、横軸のB量もSi量により若干ずれるが、最大でも~0.03wt%(右端)の範囲に入る。いずれのSi量、周波数領域ともB量が0.05~0.1wt%の範囲で最大磁束密度 B_m はピークをもち、またFe-6.5Siより-7Si(◆)の方が特性レベルがやや高いが、これは母合金微粉末中のSi原子の拡散律⁹⁾(希釈)の影響下にあるためと解される。

このFe-6~7Si-B焼結体に限れば、各周波数とも最大磁束密度 B_m は適量のB添加により~20%特性向上するが、その周波数依存性(例, Fig.9)に特異な変化は認められない。このB添加による B_m の改善因子として、まず粉末の充填構造や焼結促進作用による高密度化が予想される。実際、~10 μ mオーダーの細粒粉末は球状化しやすい¹⁵⁾ものの、B~E母合金粉末のタップ密度(TD)は3.72~3.92Mg/m³でB量との相関はなく、B添加による球状化効果¹⁶⁾は認められない。

Fig.8 Electrical resistivity (ρ) plotted to Si- and B-content.

Fig.9 Change of max. flux density (B_m) with frequency in case of A/D powder mixture (sintered at 1573 K).

この観点から、Fig.10にFig.4~7(右)に対応する試料の焼結密度とB量との関係を示した。Fig.10の右端(B無添加)に対し、B増量すると焼結密度は一旦低下するなど、最大磁束密度 B_m とはB-依存性が異なるように見える。本来、母合金微粉末としたFe-21Si(B)はFe-Si系平衡状態図²⁾で共晶組成に相当し、高Si濃度領域では一時的に生成する融液(≥ 1473 K)も多く⁶⁾、焼結反応も良好で、Siの均一・拡散化も助長される。また、Fe-B(Fe₂B)系も4wt%付近に共晶温度¹⁷⁾(~1450 K)をもつが、微量添加のため、前記液相焼結への寄与度は小さいと推定される。

Fig.11にFe-7Si-B焼結体の断面を研磨・腐食し、光学顕微鏡で観察したものを例示した。Fig.11より液相→固相焼結に特有¹⁸⁾な結晶粒界の平坦化のほか、Bを0.03→0.07wt%と増量すると粉粒界は消え、結晶成長が起こりやすくなる傾向が見られる。しかし、0.1wt%以上の過剰Bは結晶成長を阻止¹⁴⁾し、さらに粒界析出物、例えばB-silicateなどの形で残存¹⁹⁾し、構造敏感な磁気特性に悪影響を及ぼすことを示唆する。

一般に溶鉄中の微量B(~0.1wt%)の脱酸反応とそれによる清浄化作用²⁰⁾はよく知られ、水噴霧時に生成した粒表面の酸化物(被膜)と液相焼結中のBが反応して、良好な金属接触とFe原子の拡散経路を生じ¹⁷⁾うる。本複合金粉末の場合は微量Bのため、Si/B液相焼結による(相加的な)緻密化効果^{14,17,19)}より清浄化作用の方が特性改善に寄与したものと看做される。

従って、Fig.4~7(右)における最大磁束密度 B_m のピークは、Fe-Si液相焼結下のB清浄化作用と焼結・固化後の結晶成長がプラスに、過剰Bによる粒界析出物などの残存がマイナス効果として働いた結果と理解される。ただ、この過剰Bによる粒界析出物(Fig.12)は交番磁界中での磁壁移動を妨げる¹²⁾形で磁束密度レベルを低下させるものの、電気抵抗率 ρ はほぼ不変(Fig.8, 右)で、前記表皮効果には繋がっていない。

4 結 言

前報では、鉄粉とFe-21Si合金微粉末を適量混合し、焼結・固化することによりFe-Si系複合磁性合金を作製し、直流磁気特性や電気抵抗、強度とSi量、焼結温度との関係などについて明らかにした。本実験では60 Hz~100 kHz領域に限り、交

Fig.10 Sinterability plotted to Si- and B-content (sintered at 1573 K).

流磁気特性の代表値、最大磁束密度 B_m と Si/B 量、焼結温度との関係について評価・解析した。

1373 K 焼結を除き、最大磁束密度 B_m は Si~7wt% 付近で最大値をとるが、~1623 K までの高温焼結を施しても大幅な特性向上には繋がらない。そこで最大磁束密度 B_m の比較的高いゼロ磁歪合金 (Fe-6.5Si) 付近を対象に、(Fe-B 系で) 焼結活性化に有効とされる B を Fe-21Si-B 合金微粉末の形で添加し、1573 K 焼結材について B 量との関係を調べた。その結果、Fe-6~7Si-B 焼結体に限れば、B: 0.05~0.1 wt% の範囲で最大磁束

密度 B_m がピークをもち、周波数によらず~20% 特性向上することが分った。この高 Si 濃度領域では、1573 K 焼結時に一時的に生成する融液も多く、液相焼結も十分進み、適量の B 添加はむしろ融液中での脱酸反応などにより焼結体の清浄化に寄与し、交流磁気特性を向上させうる。しかし 0.1 wt% 以上の過剰 B は粒界析出物などの形で残存し、最大磁束密度 B_m を低下させるため好ましくない。

結局、Fe-Si-B 系に母合金混合法を適用すれば、Si~7wt% で最大磁束密度 B_m がピークをもち、さらに適量の B を添加したものは、汎用的な 1573 K 焼結で~20% 特性向上させうることが分った。

謝 辞

最後に本研究を進めるにあたり、ご協力頂いた大同工業大学橋立光男氏、大同特殊鋼㈱技術開発研究所および粉末事業部の方々に深く謝意を表する。

文 献

- 1) 荒井賢一, 石田和志: "電磁材料の最近の進歩", 西山記念技術講座, 日本鉄鋼協会, 155/156(1995)1-21.
- 2) R.M.Bozorth: Ferromagnetism, IEEE Press, (1951)30, 67, 71, 76, 572, 678.
- 3) 岡見雄二: "高 Si 電磁鋼板の磁気特性とその応用", 西山記念技術講座, 日本鉄鋼協会, 155/156(1955)197-219.
- 4) C.Lall and L.W.Baum: "High Performance Soft Magnetic Components by Powder Metallurgy and Metal Injection Molding", Mod. Develop. Powder Met., 18(1988)363-389.
- 5) G.Jangg et al: "Sintering Behavior, Mechanical and Magnetic Properties of Sintered Fe-Si Materials", Int. J. Powder Met., 20 (1984)287-300.
- 6) 草加勝司, 今岡建, 近藤鉄也: "Fe-Si 系複合磁性合金の磁気特性と Si 量および焼結条件の関係", 粉体および粉末冶金, 47(2000)195-202.
- 7) 林清英, 鈴木喜代志, 久田建男: "高圧水噴霧法によるステンレス鋼微粉末の製造と焼結体への応用", 電気製鋼, 58 (1987)243-250.
- 8) 草加勝司, 鈴木智也, 近藤鉄也: "フェライト系 PM ステンレス鋼の交流磁気特性に及ぼす残留気孔の影響", 粉体および粉末冶金, 45(1998)937-943.
- 9) C.G.Oliver and H.G.Ritz: "Powder Metallurgy in Electromagnetic Applications", Adv. P/M Parti. Mater., 3(1995)11, 87-11, 102.
- 10) 日野太郎, 森川鋭一, 串田正人: 電気材料, 森川出版, (1991)216.
- 11) 酒井武明, 佐藤武彦, 辺見善三: "Fe-3mass%Si 焼結合金の磁気的性質と組織", 日本金属学会誌, 52(1988)434-439.
- 12) 近角総信ほか: 磁性体ハンドブック, 朝倉書店, (1975)924.
- 13) 日本機械工業連合会/日本粉末冶金工業会編: 鉄系焼結材料の磁気特性に関する調査研究報告書, (1986)98.
- 14) R.M.German: "An Overview of Enhanced Sintering Treatments

Fig.11 Microstructures of specimen (Fe-7Si-B, sintered at 1573 K).

Fig.12 EPMA-analysis of specimen (Fe-7Si-B).

- for Iron", Mater. Sci. Res., 16(1984)103-114.
- 15) 草加勝司: "高合金粉末の製造技術とその応用", 粉体および粉末冶金, 33(1986)387-397.
  - 16) 杉浦三郎, 草加勝司, 出向井登, 能藤彰: "溶湯噴霧法による球状粉の試作研究", 電気製鋼, 51(1980)242-251.
  - 17) D.S.Madan and R.M.German: "Structure-property Relationship in Iron Powder Compacts Alloyed with Boron", Adv. Powder Met., 1(1989)147-161.
  - 18) F.Thummler and W.Thomma: "The Sintering Process", Met. Rev., 12(1967)69-108.
  - 19) K-S.Hwang and R.M.German: "High Density Ferrous Components by Activated Sintering", Process Met. Ceram. Powders, 1(1982)295-310.
  - 20) 今井勇之進: 鉄鋼と合金元素(上), 誠文堂新光社, (1971)114.