

PCパーマロイの初透磁率に及ぼす化学成分の影響

Effect of Chemical Composition on Initial Permeability of PC Permalloy

藤原 義行*
Yoshiyuki Fujihara

横山 紳一郎*
Shin-ichiro Yokoyama

長塩 隆之*
Takayuki Nagashio

工業生産される Ni-Fe-Mo-Cu 系 PC パーマロイの初透磁率 μ_i に及ぼす化学成分の影響を、微量元素を含めて明らかにするため、Fe および微量元素 (Si, Cr, Co, Mn) の含有量を変動させたパーマロイの磁気特性を評価した。 μ_i は、Fe 量と微量元素の変化により顕著に変化した。この変化は、磁氣的に有効な Ni 原子と Fe 原子の比である P 値パラメータを用いて説明することができた。異なる含有量の Si, Cr, Mn を含む数種のパーマロイの μ_i は、いずれもよく似た P 値依存性を示し、P 値 $\cong 3.3$ の時に最大値を示した。一方、Co を微量元素として含む場合にも、 μ_i は P 値 $\cong 3.3$ で最大となったが、その値は、Co を含まない場合と比較して低い値を示した。この μ_i の減少は、強磁性の Co の添加による磁歪の変化に起因していると考えられる。

Soft magnetic properties of Ni-Fe-Mo-Cu permalloys, with varying Fe compositions and some minor elements (Si, Cr, Co and Mn), were investigated in order to clarify the effects of chemical compositions, including minor elements, on initial permeability, " μ_i ", of industrially-produced permalloys. The μ_i values changed dramatically depending on Fe compositions and the amount of minor elements. These changes were explained by using a parameter of P-value, which is the ratio of magnetically effective Ni and Fe atoms. The " μ_i " of the tested alloys with different amounts of Si, Cr and Mn exhibited similar P-value dependences, and the highest value when P is nearly equal to 3.3. The " μ_i " also exhibited the highest value at $P \cong 3.3$ in permalloys with Co, but the μ_i values were smaller than those of permalloys without Co. This reduction in μ_i values is probably due to the change of magnetostriction caused by the addition of the ferromagnetic element of Co.

● Key Word : PC パーマロイ, 初透磁率, 成分バランス

● Production Code : Ni-Fe-Mo-Cu soft magnetic materials

● R&D Stage : Mass-production

1. 緒言

パーマロイは、高透磁率を示す質量比で40~80% (以下、質量比を%として記述) Ni-Fe二元合金およびMo, Cu等を添加した多元系Ni-Fe合金の総称である。特に、PCパーマロイと称される約80%Niを主成分としたNi-Fe-Mo合金やNi-Fe-Mo-Cu合金は、高い透磁率が得られることから、電流センサーや磁気シールド用途に用いられている。

PCパーマロイの透磁率は、成分の影響を受けやすいことで知られ、成分と磁気特性に関する多くの研究成果が報告されている。特に、R.D.Enoch¹⁾らによる報告が代表的であり、実用的な見地から、加藤²⁾らによる報告もある。これらの報告では、多元系PCパーマロイの透磁率は、Moや

Cu等の添加元素の価電子の影響を受けて、磁氣的に有効なNi原子数が希釈されることを考慮し、式(1)²⁾で示される磁気モーメントを有するNi原子数とFe原子数の比(以下、P値と記載)と相関が得られるとしている。

$$P = \text{Magnetic Ni} / \text{Fe} \\ = \left\{ C_{\text{Ni}} - \frac{1}{3} \sum_i (5Z_i - 3) C_i \right\} / C_{\text{Fe}} \quad (1)$$

C_{Ni} : Ni原子数, C_{Fe} : Fe原子数

C_i : 添加元素iの原子数

Z_i : 添加元素iの価電子数

* 日立金属株式会社 特殊鋼カンパニー

* Specialty Steel Company, Hitachi Metals, Ltd.

過去の研究ではPCパーマロイの主要成分 (Ni, Fe, Mo, Cu) が変動した場合の透磁率に及ぼすP値の影響について報告されているが、工業規模でPCパーマロイを生産する場合に含まれる可能性のある微量元素の影響については明らかになっていない。また、微量元素が含まれた場合にも式 (1) で示されるP値で透磁率を整理することができるかどうかは、科学的にも興味深い。それ故、本研究の目的は、工業規模で生産されるPCパーマロイに微量元素としてSi, Cr, CoおよびMnが含まれた場合の初透磁率に及ぼすP値の影響を明らかにし、その挙動を検証することである。

2. 実験方法

本実験に供した合金の化学成分を表1に示す。いずれの合金もNi-Fe-Mo-Cuを主成分とするPCパーマロイであり、合金グループNo.1はFe量を12.5~15.1%の範囲で変動させたグループである。また、No.2はMn量を0.29~1.52%の範囲で変動させたグループである。さらに、No.3は微量元素Si, Cr, Coを各々およそ0.2%, 0.2%, 0.5%添加し、Fe量を11.4~13.6%の範囲で変動させたグループである。なお、合金No.4および合金No.5は、Si, Crを各々0.2%とした合金である。

表1に示す成分となるように真空誘導炉で溶解後、10 kgのインゴットを作製した。さらに作製したインゴットの成分の均質化を目的としたソーキング (1,553 K, 28.8 ks) を行った後、鍛造 (1,373 K), 熱間圧延 (1,373 K) を行い、板厚2.5 mmの熱延材とした。その後、酸化スケールを除去し、加工率70~80%の冷間圧延を行って、板厚1 mmの冷延材を得た。

冷延材からプレス加工で外径45 mm, 内径33 mmのリング試験片を採取した後、水素雰囲気下で温度1,373 K, 保持時間10.8 ks, 平均冷却速度0.028 K/s (1,373 K~573 K) の磁性焼鈍を行った。その後、リング試験片をプラスチックケースに収めて、1次50回と2次100回の巻線を施し、直流磁気特性の評価に供した。なお、本報告では、JIS規格 (JIS

C 2531) に基づいた磁場0.4 A/mにおける透磁率を初透磁率として定義し、真空の透磁率 μ_0 ($4\pi \times 10^{-7}$ H/m) で除した比初透磁率 $\mu_{i0.4}$ (無名数) を用いてデータの整理を行った。

3. 実験結果および考察

3.1 比初透磁率に及ぼす微量元素の影響

図1は、主成分Fe, Mo, Cu量がほぼ同じで、微量元素Si, Cr, CoおよびMn量が異なる3つの合金① (Ni-13.0%Fe-3.5%Cu-4.4%Mo-0.7%Mn), ② (Ni-13.0%Fe-3.5%Cu-4.4%Mo-1.5%Mn) および③ (Ni-13.1%Fe-3.5%Cu-4.4%Mo-0.7%Mn-0.2%Si-0.2%Cr-0.5%Co) の初磁化曲線を示す。合金①と比較して、Mn量を増加させた合金②は磁束の立ち上がりが早く、微量元素Si, Cr, Coを添加した合金③は磁束密度の立ち上がりが遅れていることがわかる。上記の結果から、微量元素Si, Cr, CoおよびMnがPCパーマロイの透磁率に影響を及ぼすことが示唆される。

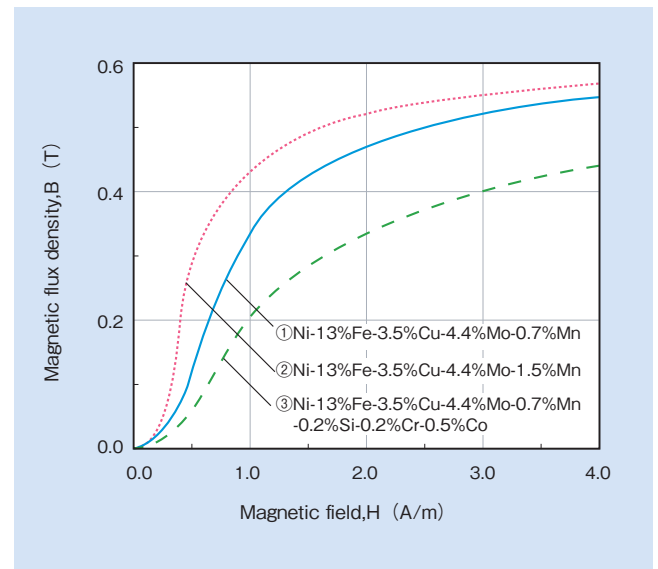


図1 初磁化曲線の例

Fig. 1 Examples of initial magnetization curves

表1 実験合金の化学成分

Table 1 Chemical composition of experimental alloys

Group/Alloy No.	Si	Mn	Cr	Co	Cu	Mo	Ni	Fe	P-value
Group No.1	≤0.01	0.66 0.74	≤0.01	≤0.01	3.40 3.49	4.34 4.41	Bal.	12.5 15.1	3.0 3.9
Group No.2	≤0.01	0.29 1.52	≤0.01	≤0.01	3.43 3.49	4.38 4.44	Bal.	13.0 13.3	3.4 3.7
Group No.3	0.19 0.21	0.68 0.70	0.18 0.19	0.49 0.50	3.40 3.48	4.38 4.46	Bal.	11.4 13.6	2.9 3.6
Alloy No.4	0.20	0.67	<0.01	0.01	3.43	4.40	Bal.	13.2	3.4
Alloy No.5	0.01	0.69	0.18	<0.01	3.42	4.39	Bal.	13.2	3.5

図2は、Mn量を0.29~1.52%まで変動させたグループNo.2の比初透磁率に及ぼすMn量の影響を示す。本実験に供した合金成分の範囲内においては、Mn量の増加に伴い、比初透磁率が約150,000から400,000までの大きな増加傾向を示していることがわかる。上述した結果から、微量元素MnがNi-Fe-Mo-Cuを主成分とするPCパーマロイの比初透磁率に影響を及ぼしていることがわかる。

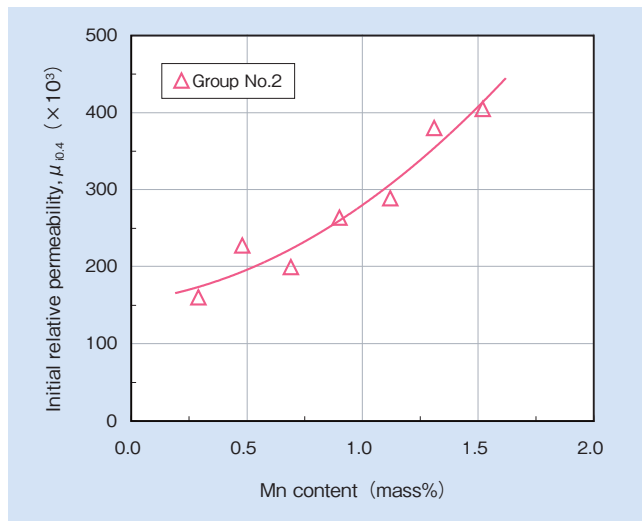


図2 比初透磁率に及ぼす Mn 量の影響
Fig. 2 Effects of Mn content on initial relative permeability

図3は、グループNo.1~3の比初透磁率に及ぼすFe量の影響を示す。微量元素Si, Cr, Coを無添加としたグループNo.1は、Fe量がおおよそ12.5~15.1%の変動範囲において、比初透磁率は逆V字型に大きく変化し、Fe量14.2%で比初透磁率の極大値が約700,000を示すことがわかる。また、Fe量をほぼ13.1%で固定し、微量元素Mnを変動させたグループNo.2は、わずかなFe量の変動で比初透磁率が大きな変化を示している。一方、微量元素Si, Cr, Coを各々およ

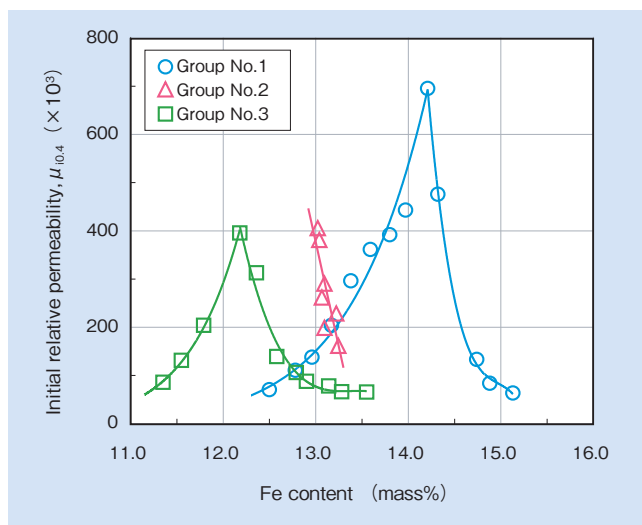


図3 比初透磁率に及ぼす Fe 量の影響
Fig. 3 Effects of Fe content on initial relative permeability

そ0.2%, 0.2%, 0.5%添加したグループNo.3は、Fe量がおおよそ11.4~13.6%の変動範囲において比初透磁率が顕著に変化し、Fe量12.2%で約400,000の極大値が得られている。しかし、Mnを除く微量元素を無添加としたグループNo.1とは最適Fe量および比初透磁率の極大値に大きな差が生じていることがわかる。

上記の結果は、最高の透磁率を示すPCパーマロイの最適成分が、微量元素Si, Cr, CoおよびMnを含めた成分のバランスによって決定されることを示唆している。また、微量元素Si, CrおよびCoのいずれかまたは相互の影響により、透磁率の低下が引き起こされることを示した結果と言える。

3.2 比初透磁率に及ぼす P 値の影響

図4に、比初透磁率をP値で整理した結果を示す。なお、各添加元素の価電子数は、Mo:6, Cu:1, Mn:2, Si:4, Cr:6, Co:5としてP値を算出した。PCパーマロイのFe量を変動させたグループNo.1(図中○)と、微量元素のMn量を変動させたグループNo.2(図中△)は、ほぼ同一の曲線上にプロットされることがわかる。また、微量元素SiおよびCrを約0.2%ずつ添加した合金No.4(図中◆)、No.5(図中+)もグループNo.1, 2とほぼ同じ曲線上に位置することがわかる。上述した結果から、微量元素Si, CrおよびMnがNi-Fe-Mo-Cuを主成分とするPCパーマロイの透磁率に及ぼす影響は、P値の成分指標を用いて表すことができると考える。

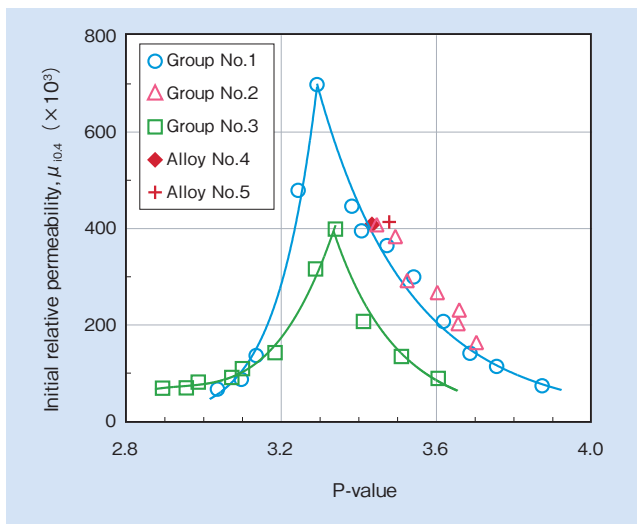


図4 比初透磁率に及ぼす P 値の影響
Fig. 4 Effects of P-value on initial relative permeability

一方、Si, Crに加えてCoを含むグループNo.3(図中□)も、他グループと同様P≒3.3で最高の比初透磁率が得られているが、他グループと比較して比初透磁率の値が低くなっている。合金No.4(0.2%Si)および合金No.5(0.2%Cr)に比初透磁率の低下が認められないことから、グループ

No.3の比初透磁率を低下させた主要因はCoの影響と推測され、Coを含む場合にはP値以外の影響についても考慮する必要があると考える。一般に、PCパーマロイを含めたNi-Fe合金は、結晶磁気異方性や磁歪が著しく小さい(≈ 0)成分範囲で高透磁率が得られるとされる³⁾。しかし、CoはSi、Crと異なり強磁性を示す元素の一つであり、磁気的な相互作用により、PCパーマロイの結晶磁気異方性や磁歪に変化を及ぼす可能性がある。その変化が比初透磁率の低下につながったと推察される。

4. 結 言

Ni-Fe-Mo-Cuを主成分とするPCパーマロイにおいて、微量元素Si、Cr、CoおよびMnが初透磁率に及ぼす影響について検討を行った結果、以下の結論を得た。

- (1) 微量元素Si、Cr、CoおよびMnは、PCパーマロイの初透磁率に影響を及ぼすことがわかった。
- (2) PCパーマロイは、 P 値 ≈ 3.3 で初透磁率の極大値が得られ、この値は微量元素Si、Cr、CoおよびMnを添加しても変化しないことがわかった。
- (3) PCパーマロイの結晶磁気異方性や磁歪に変化を及ぼす可能性がある強磁性元素のCoは、 P 値の変動に作用するだけでなく、初透磁率の低下を引き起こすことがわかった。

本研究により、Ni-Fe-Mo-Cuを主成分とするPCパーマロイに微量元素としてSi、Cr、CoおよびMnが含まれた場合の初透磁率に及ぼす影響が明らかとなった。本研究の成果から、微量元素のうちCoを含まずおよそ P 値3.25~3.40の範囲に厳しく成分管理されたPCパーマロイは、400,000以上の非常に高い比初透磁率を得ることが可能であり、地磁気等の微弱な磁気を遮蔽する必要がある磁気シールド用途で飛躍的なシールド性の向上が期待できると考える。また、微量元素Si、Cr、CoおよびMnを含有する場合でも、 P 値3.10~3.55の範囲で100,000以上の高い比初透磁率が得られる結果から、溶解原料の選定を通じて価格と透磁率の両方に優れたPCパーマロイを製造することもできると推察される。今後は、製造プロセスの最適化についても検討を行い、品質・価格の両面で市場の要望に応えることができるPCパーマロイを製造するためのさらなる指針を示せるように努めていく所存である。

引用文献

- 1) R.D. Enoch & A.D. Fudge : High magnetic permeability in Ni-Fe alloys, Brit.J. Appl. Phys., 17 (1966), p623-634.
- 2) 加藤哲夫, 高野正吉, 矢萩慎一郎: PC パーマロイ合金の磁気特性に及ぼす主成分バランスについて, 電気製鋼, 第48巻, 第4号 (1977), p265-270.
- 3) 近角聡信, 太田恵造, 安達健五, 津屋昇, 石川義和: 磁性体ハンドブック, 朝倉書店, (1975), p1085-1090



藤原 義行
Yoshiyuki Fujihara
日立金属株式会社
特殊鋼カンパニー
安来工場



横山 紳一郎
Shin-ichiro Yokoyama
日立金属株式会社
特殊鋼カンパニー
安来工場
博士 (工学)



長塩 隆之
Takayuki Nagashio
日立金属株式会社
特殊鋼カンパニー
安来工場
技術士 (金属)