

氏 名	うつし かわ よし お 移 川 欣 男
授 与 学 位	工 学 博 士
学位授与年月日	昭和 59 年 7 月 11 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 5 条第 2 項
最 終 学 歴	昭和 41 年 3 月 東京理科大学理学部物理学科卒業
学位論文題目	Ni 添加センダスト系高透磁率材料に関する研究
論文審査委員	東北大学教授 高橋 実 東北大学教授 池田 拓郎 東北大学教授 藤森 啓安

## 論 文 内 容 要 旨

### 第 1 章 序 論

1932年、増本、山本によって発見された高透磁率材料「センダスト」は、近年 VTR ならびに音響用磁気ヘッドのコアー材料として注目されるようになった。

しかし、センダスト系合金は硬度が高く、かつ脆弱なため、加工が困難で実用上問題となっている。

本論文では、センダスト系合金のなかで、低 Si, 低 Al 組成で、最大透磁率が第 2 の極大値を示す磁歪正の合金に着目し、負の磁歪を持った Ni を極大値を示す付近の組成の合金に添加し磁歪を小さくし、高透磁率でしかも加工性のあるセンダスト系材料を得ることを目的とした。

### 第 2 章 Fe-Si-Al 系合金の磁化特性および磁歪におよぼす Ni 添加の影響

まず、6.0% Si-4.0% Al-0~7% Ni-bal. Fe 合金のリング状および棒状試料を作製し、1250℃、1時間の均質化処理を施した後、最大透磁率  $\mu_m$ 、初透磁率  $\mu_i$ 、角型比  $B_r/B_i$  および飽和縦磁歪  $\lambda_s$  を測定し、それらの Ni 組成依存性を求めた。結果を図 1, 2 に示す。

図 1 にみるように、3.2% Ni の組成で  $\lambda_s = 0$ 、 $H_c$  は最小、 $\mu_m$  は最大となっている。以後この 6.0% Si-4.0% Al-3.2% Ni-86.8% Fe の組成の合金を「スーパーセンダスト I」と呼ぶことにした。一方  $\mu_i$  は図 2 にみるように、1% Ni の組成で最大となっている。そこで、この特性をさ

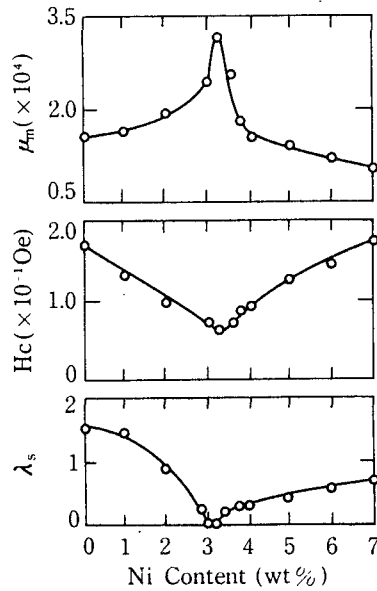


図1 Fe<sub>90-x</sub>Ni<sub>x</sub>Si<sub>6</sub>Al<sub>4</sub>合金の $\mu_m$ ,  $H_c$ および $\lambda_s$ のNi組成依存性(1250°C, 1時間水素雰囲気中処理)

らに改良するため、SiおよびAlの添加量を種々変化させた。その結果、初透磁率の高い組成は6.2%Si-5.4%Al-1.0%Ni-87.4%Feで、 $\mu_i$ の値は3600となった。以後この合金を「スーパーセングストII」と呼ぶことにした。

次にこれら合金の単結晶を作製して、結晶磁気異方性定数 $K_1$ を求めるとともに棒状多結晶試料を用いて縦磁歪 $\lambda$ を測定し、高透磁率の要因を検討した。測定の結果、 $K_1$ の値は $\mu_m$ の高いスーパーセングストIでは $6.0 \times 10^4$  erg/cc、 $\mu_i$ の高いスーパーセングストIIでは $4.7 \times 10^4$  erg/ccで両合金とも比較的大きな値を示すことが判った。

図3には、縦磁歪の磁場依存性を示したが、図からわかるように、 $\lambda$ はスーパーセングストIでは外部磁場が800 Oeまで0であるのに対して、スーパーセングストIIでは外部磁場が75 Oe以下まではほぼ0、以上で $\lambda$ が現われはじめ、 $\lambda_s \approx 2 \times 10^{-6}$ となる。これらの結果からスーパーセングストI、II合金の高透磁率特性は磁歪が零であることに起因していると考えられる。特に弱磁場下における磁歪が初透磁率の大小を決定する重要な因子となっていることがわかった。

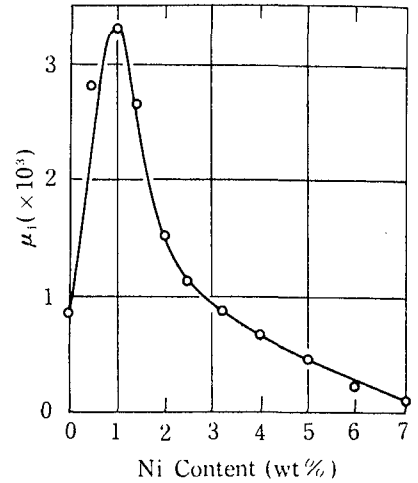


図2 Fe<sub>90-x</sub>Ni<sub>x</sub>Si<sub>6</sub>Al<sub>4</sub>合金の $\mu_i$ のNi組成依存性(1250°C, 1時間水素雰囲気中処理)

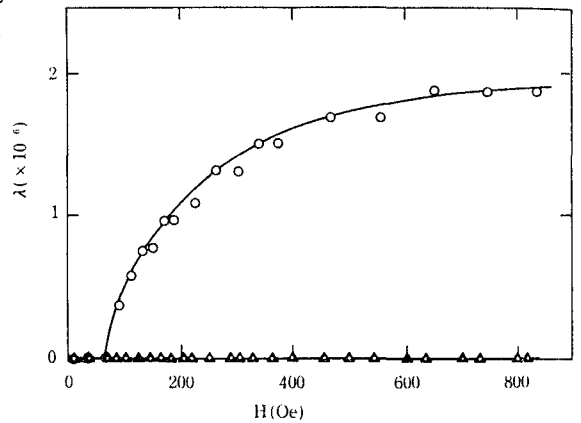


図3 スーパーセングストI, II合金の $\lambda$ の磁場依存性  
(1250°C, 1時間 水素雰囲気中処理)  
—△— Super Sendust I  
—○— Super Sendust II

### 第3章 スーパーセングスト系合金の最大透磁率，初透磁率におよぼす熱処理効果と構造ならびに諸物性

スーパーセングスト I 合金の  $\mu_m$  およびスーパーセングスト II 合金の  $\mu_i$  をさらに向上させるため種々の熱処理効果を検討した。先ず， $\mu_m$  の高いスーパーセングスト I の試料を水素雰囲気中，1250℃で1時間均質化処理した後，室温まで冷却，続いて700℃以下の種々の温度に加熱し，4 Oe の磁場を印加し15分保持した後，1.7℃/sec の速度で冷却した。その結果，325℃から冷却すると， $\mu_m = 274,000$  となり  $H_c = 0.022$  Oe，角型比  $B_r/B_s = 0.99$  という優れた特性が得られた。次に  $\mu_i$  の高いスーパーセングスト II の試料を水素雰囲気中，1250℃で1時間均質化処理した後室温まで冷却，続いて850℃に加熱して1時間保持した後， $8 \times 10^{-2}$ ℃/sec から10℃/sec の間の種々の速度で室温まで冷却した。

図4には， $\mu_i$  と冷却速度との関係を示した。図にみるように，0.83℃/sec で冷却したとき初透磁率は著しく向上し， $\mu_i = 15200$  となった。このような透磁率におよぼす顕著な熱処理効果の物理的要因を調べるため，スーパーセングスト I 合金の電気抵抗率  $\rho$  の温度変化，室温および高温におけるX線による構造解析を行った。

図5には1250℃で1時間，水素雰囲気中で均質化処理した試料の電気抵抗の温度係数  $\alpha_R$  および格子定数  $a_0$  の熱処理温度依存性を示した。図にみるように， $\alpha_R$  は550℃，650℃付近に顕著な異常性を示す。一方， $a_0$  は500℃以上の温度から水中焼き入れをした場合には大きくなるが，炉中冷却をした場合には変化が認められない。また，室温および高温におけるX線による構造解析の結果，550℃付近でDO<sub>3</sub>型の規則相から不規則相へ転移すること，710℃付近で体心立方の格子構造 ( $a_\alpha = 2.875 \text{ \AA}$ ) から面心立方格子構造 ( $a_\gamma = 3.670 \text{ \AA}$ ) へ転移することがわかった。これらのことからスーパーセングスト系合金の高透磁率の熱処理による種々の著しい変化はDO<sub>3</sub>型規則相の生成と密接に関係しているものと考えられた。

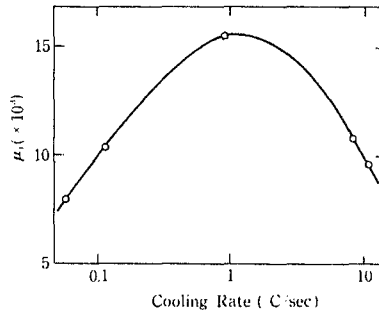


図4 スーパーセングスト II 合金の  $\mu_i$  におよぼす冷却速度の影響(加熱温度850℃)

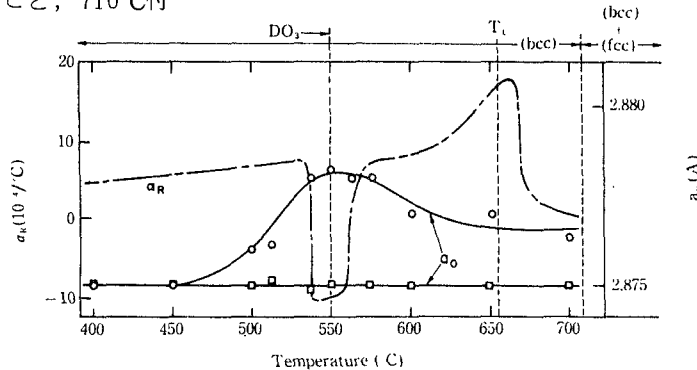


図5 スーパーセングスト I 合金の電気抵抗の温度係数  $\alpha_R$  および格子定数  $a_0$  の温度依存性と各種変態点

- (--- Heating rate: 0.21℃/min)
- (-○- Water quenching)
- (-□- Furnace cooling)

#### 第4章 スーパーセングスト系合金の圧延加工

スーパーセングスト I, II 合金の圧延加工による薄板化を計るため、予備実験として、10mmφ×10mmの円柱状試料を700°~1200°Cの各温度に加熱し、30分保持した後、衝撃圧縮試験を行った。その結果、900°~1100°Cの温度範囲で変形抵抗が減少し、変形量は増大することがわかった。

そこで、先ず13×70×200(mm)のインゴットを900°~1100°Cの温度で1パス当り4~8%の圧延率で85%まで熱間圧延加工を施し、2×50×200(mm)にした後、400°~800°Cの間で圧延率98%の熱間、温間加工、さらに、表面仕上げのための冷間加工(図6参照)を行うことにより、0.3~0.17mm厚の薄板を得ることができた。

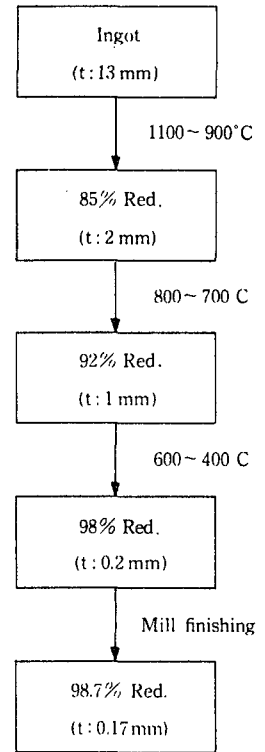


図6 圧延加工工程の模式図

#### 第5章 スーパーセングスト I, II 圧延板の直流ならびに高周波磁化特性

圧延加工によって得られた0.17~0.2mm厚の圧延板スーパーセングスト I, II の熱処理による直流磁化特性を検討した。

図7には圧延板スーパーセングスト I に種々の熱処理を施したときの、B-H曲線の数例を示した。図からわかるように、水素雰囲気中で、1250°Cで1時間焼き鈍し後、室温まで冷却し、続いて750°Cに再加熱して1時間保持後、約40°C/secの速度で冷却することにより、 $\mu_m = 41500$ ,  $\mu_i = 4100$ ,  $H_c = 0.07$  Oe,  $B_i = 8100$  G,  $B_r = 7500$  G,  $B_r/B_i = 0.95$  の最良の直流磁化特性が得られた。

スーパーセングスト II についても同様の熱処理条件で処理した場合、最良の磁化特性が得られた。

次に交流特性の一つである実効透磁率  $\mu_e$  の熱処理による周波数依存性を調べた。

図8にはスーパーセングスト I について得られた結果を示した。図からわかるように最良の直流磁化特性が得られた上記熱処理を施した場合、 $f = 1$  kHz で  $\mu_e = 2300$  となり、加工したままの状態のその値に比べ、1桁以上も大きくなっている。

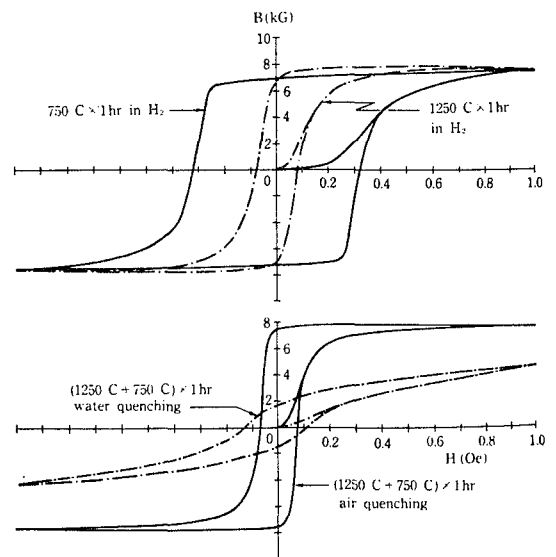


図7 スーパーセングスト I 圧延板の熱処理による B-H 曲線の変化

しかし周波数が高くなると  $\mu_e$  は減少し、 $f=4$  MHz以上の高周波帯域では、逆に加工したままの状態の  $\mu_e$  が高くなり、 $f=6$  MHzでは、熱処理後の  $\mu_e$  は5で、加工後のそれに比べて遥かに小さい。一方、熱処理後の尖鋭度Q値は加工後のそれに比べ、何れの熱処理においても低くなる。

スーパーセンダストIIの圧延加工板についても、ほぼ同様の結果が得られた。

## 第6章 スーパーセンダストI, II合金の磁気ヘッドへの適応性

スーパーセンダストI, II合金を放送用VTRおよび音響用磁気ヘッドに適用し、電磁変特性ならびに摩擦特性を検討した。

結果を図9に示したが、VTR用磁気ヘッドの再生感度  $e_c$  は周波数に対して指数関数的に減少し、スーパーセンダストI合金では  $f=9$  MHzで  $0.49 \text{ mV}_{p-p}$ 、スーパーセンダストII合金では  $0.66 \text{ mV}_{p-p}$  で、従来のセンダスト合金に比べ低い値となっている。一方、耐摩擦性は従来のセンダスト合金と同程度であった。

しかし両合金の透磁率、最大磁束密度、加工性が良好であること等を考慮すると、スーパーセンダストI合金は記録および消去用、スーパーセンダストII合金は初透磁率をさらに改善することによって再生用磁気ヘッド材として有用であると考えられた。

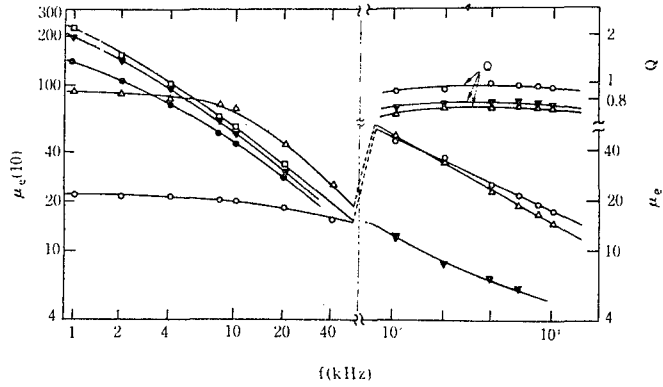


図8 スーパーセンダストI圧延板(20mmφ×13mmφ×0.2mm)の  $\mu_e$ , Qの周波数依存性の熱処理による変化

- (—○— as roll
- (—△— 750°C×1hr in H<sub>2</sub>
- (—▽— 1250°C×1hr in H<sub>2</sub>
- (—□— 1250°C×1hr in H<sub>2</sub>+750°C×1hr in vacuum air quenching
- (—●— 1250°C×1hr in H<sub>2</sub>+750°C×1hr in vacuum water quenching

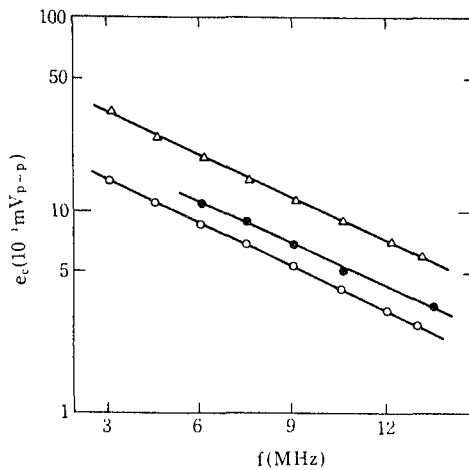


図9 スーパーセンダストI, II合金によって作られたVTR用磁気ヘッドの再生感度の周波数依存性

- (—△— Sendust, d = 26 μm
- (—●— Super Sendust (II), d = 26 μm
- (—○— Super Sendust (I), d = 20 μm

## 第7章 総 括

センダスト系合金に Ni を添加して、加工性に富む高透磁率材料を得ることを目的として研究を行い、最大透磁率の高い 6.0% Si-4.0% Al-3.2% Ni-86.8% Fe (スーパーセンダスト I 合金) および初透磁率の高い 6.2% Si-5.4% Al-1.0% Ni-87.4% Fe (スーパーセンダスト II 合金) を見出した。次いでそれらの合金の圧延加工法を種々検討し、熱間、温間、冷間の圧延によって 0.17~0.2mm 厚の薄板化に成功した。

## 審 査 結 果 の 要 旨

1932年、増本、山本によって発見された高透磁率磁性材料センダストは、近年VTRおよび音響用磁気ヘッドとして注目されるようになった。しかし、センダスト合金は脆弱なため、加工が困難で実用上問題となっている。本論文は、センダスト系合金のなかで、低Si、低Al組成で、最大透磁率が第2の極大を示す合金に着目して、加工性高透磁率センダスト合金を開発するに至った研究の成果をまとめたもので、全編7章よりなる。

第1章は序論であり、本研究の歴史的背景と目的について述べている。

第2章では、センダスト系合金のなかで最大透磁率が第2の極大を示す、磁歪正の6.0% Si-4.0% Al-bal Fe合金の磁化特性におよぼす磁歪負のNi添加の影響を系統的にしらべ、最大透磁率 $\mu_m=56800$ の5.3% Si-4.2% Al-3.2% Ni-bal Fe合金（スーパーセンダストI）、初透磁率 $\mu_i=1800$ の6.2% Si-5.4% Al-1.0% Ni-bal Fe合金（スーパーセンダストII）を見出している。なお、ここで $\mu_i$ は、特に縦磁歪の立ち上りの大きさに依存することを新たに指摘している。これは、軟磁気材料開発上興味ある知見である。

第3章では、スーパーセンダストI、IIの合金について、熱処理の効果を検討している。ここで、 $\mu_m$ の高いスーパーセンダスト合金Iには磁界中処理が、 $\mu_i$ の高いスーパーセンダスト合金IIには無磁界中の制御冷却が有効であること、これらセンダスト系合金の磁化特性は、550℃付近に転移点をもつDO<sub>3</sub>型規則格子の生成と密接に関係していること等を明らかにしている。

第4章では、スーパーセンダストI、II合金の薄板化をはかるため、まず、高温で衝撃試験によって加工性に関する基礎的検討を行い、次いで、その結果を基に、1100℃~400℃の温度範囲において熱間、温間圧延を行い、続いて表面仕上げの冷間圧延によって0.3~0.17mm厚の薄板を作製した方法を詳述し、第5章では、これら薄板に第2章で述べた最適熱処理を施し、直流および高周波磁化特性をしらべた結果について述べている。

第6章では、スーパーセンダストI、II合金を放送用VTRおよび音響用磁気ヘッドに適用し、電磁変換特性、耐摩耗特性等をしらべた結果を述べ、薄板センダストがヘッド材としてすぐれていることを確かめている。

第7章は総括である。

以上要するに本論文は、センダスト系合金にNiを添加し、最大透磁率、初透磁率の高いスーパーセンダスト合金I、IIを見出すとともに、圧延加工法によってそれらの合金の薄板化を可能にし、磁性材料工学に有用な知見を加えた。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。