

氏 名	いく た のぶ ゆき 生 田 信 之
授 与 学 位	工 学 博 士
学 位 授 与 年 月 日	昭 和 62 年 1 月 14 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 47 年 3 月 室蘭工業大学大学院工学研究科金属工学専攻 修士課程修了
学 位 論 文 題 目	単結晶 Fe-Cr-Co 系磁石合金に関する研究
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 本間 基文 東北大学教授 西澤 泰二 東北大学教授 藤森 啓安

論 文 内 容 要 旨

第 1 章 緒 論

Fe-Cr-Co 系磁石合金は、2 相分離を利用して非磁性のマトリックス中に強磁性の単磁区微粒子を分散し磁氣的に硬化させた永久磁石であり、1970 年に金子らによって開発された。現在、本系合金は展延性を有する永久磁石材料として使用されるにいたっている。

本系合金の磁石特性の改良は、2 相分離によって生ずる Fe-Co に富む強磁性相 α_1 の形状異方性に基づくことを前提に進められてきた。しかし、2 相分離組織に結晶方位による異方性が存在するにも拘らず、研究の多くが多結晶試料を用いて行われている。そのために磁気特性の結晶方位依存性については不明であり、それらを明確にするには単結晶試料を用いた研究が必要である。さらに本系磁石合金の保磁力機構については、単磁区粒子理論や磁壁移動に基づく磁化の反転機構が指摘されているが、これらも多結晶試料を用いているため、保磁力と α_1 相の粒子径、軸比および充填率の関係など十分に検討されていない。

以上のことより、本研究は、単結晶試料を用いて Fe-Cr-Co 系磁石合金の 2 相分離組織と磁気特性の結晶方位依存性および磁化の反転機構を明らかにすることを目的に行った。

第 2 章 Fe-Cr-Co 系合金の単結晶試料の作製

Fe-Cr-Co 系合金の単結晶試料の作製には相変態を利用した再結晶法を用いた。すなわち、本

系磁石合金を $(\alpha + \gamma + \sigma)$ 相領域から α 相領域に昇温すると α 結晶粒の粗大化が著しいことを見出し、この現象を利用して単結晶合金を作製した。また所要方位の単結晶の作製には回転・曲げ法や接木法を試みた。すなわち予備熱処理によって $(\alpha + \gamma + \sigma)$ 組織とした後に、図1にならって、種結晶を数cm作り、次に試料の主要部分が所要の方位に成るように種結晶の後部で曲げを加え、再び種結晶の部分から α 单相域へ移動する方法である。また接木法では所要の方位の種結晶を試料に拡散接合し、同じく図1に示す方法によって再結晶を施す方法である。いずれの方法も容易に所要方位の単結晶を作製することができる。

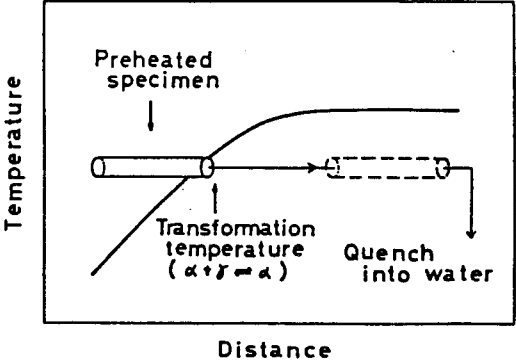


図1 単結晶作製の概略

第3章 Fe-Cr-Co 3元系単結晶合金の2相分離組織と磁気特性

Fe-Cr-Co系合金はFe-30Cr-23Co(mass%)を基本組成として開発され、3元系合金における最高の $(BH)_{max} = 66.4 \text{ kJ/m}^3$ は尾根近傍組成のFe-22Cr-15Co合金で得られている。よって本章においてもFe-30Cr-23Coおよび尾根近傍組成のFe-22Cr-17Co $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ および $\langle 111 \rangle$ 単結晶合金を用いて、2相分離組織と磁気特性の結晶方位依存性について検討した。なお磁気硬質化熱処理は α_1 粒子の成長方向を揃えるための磁場中熱処理と α_1 相と α_2 相間の組成差の拡大を目的とした制御冷却法よりなる。

図2には、Fe-22Cr-22Co単結晶合金に対する695℃、12minの初期時効（磁場中および無磁



図2 Fe-22Cr-17Co $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ 単結晶に対して、695℃、12minの磁場中および無磁場中熱処理を行った最終硬質化後の2相分離組織

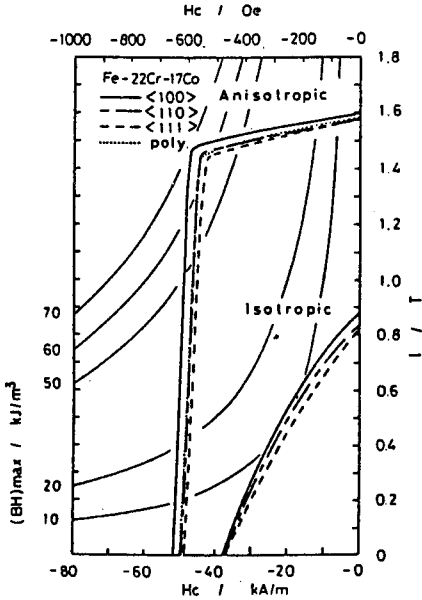


図3 Fe-22Cr-17Co $\langle 100 \rangle$ 単結晶の減磁曲線

場中熱処理)を施した最終硬質化熱処理後の2相分離組織を示す。組織には結晶方位による相違がほとんど認められない。また磁場中熱処理により α_1 相は結晶方位に関係なく印加磁場の方向へ良好な伸長を示しており、Fe-22Cr-17Co $\langle 100 \rangle$ 単結晶合金の磁気特性{Br=1.6T, Hc=51.7kA/m, (BH)_{max}=69.6kJ/m³, Br/Is=97.6%}は $\langle 110 \rangle$ および $\langle 111 \rangle$ 単結晶よりも僅かに良いが、結晶方位の違いに基づく明確な相違は認められない(図3)。この傾向はFe-30Cr-23Co単結晶合金においても同様であり、最終硬質化熱処理後のFe-30Cr-23Co $\langle 100 \rangle$ 単結晶合金の磁気特性はBr=1.24T, Hc=52kA/m, (BH)_{max}=42.4kJ/m³, Br/Is=91.8%であった。

第4章 Fe-Cr-Co-Mo 4元系磁石合金の2相分離組織と磁気特性

Fe-Cr-Co-Mo 4元系単結晶合金の2相分離組織と磁気特性の結晶方位依存性については、Fe-30Cr-23Co-3Mo合金および尾根近傍組成であるFe-22Cr-18.5Co-3Mo, Fe-23Cr-20Co-3Mo合金の $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ および $\langle 111 \rangle$ 単結晶合金を用いて検討した。

図4には、Fe-22Cr-18.5Co-3Mo $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ および $\langle 111 \rangle$ 単結晶合金を例として硬質化後の2相分離組織を示した。4元系合金の $\langle 100 \rangle$ 単結晶合金は磁場中熱処理を施すと強磁性 α_1 粒子が印加磁場と平行な $\langle 100 \rangle$ 方向に伸長するのに対して、 $\langle 110 \rangle$ および $\langle 111 \rangle$ 単結晶合金の強磁性 α_1 粒子は印加磁場の方向に近い $\langle 100 \rangle$ 方向にそって伸長し、結果的に印加磁場の方向へジグザグな配向を示す。これら $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ および $\langle 111 \rangle$ 単結晶合金の磁気特性は、図5に示すように著しく異

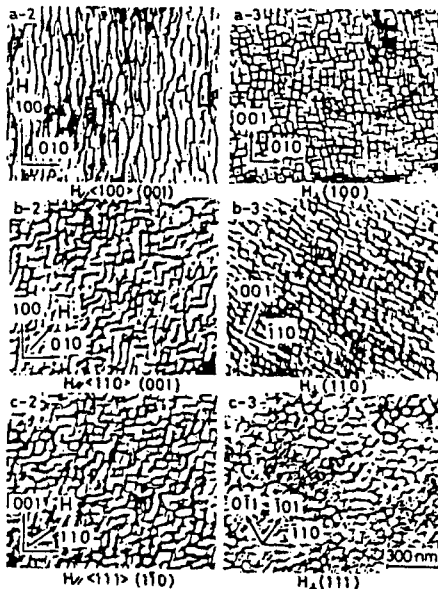


図4 Fe-22Cr-18.5Co-3Mo $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ 単結晶に対して、675℃, 12minの磁場中熱処理を行った最終硬質化後の2相分離組織。

ただし、矢印が印加磁場の方向

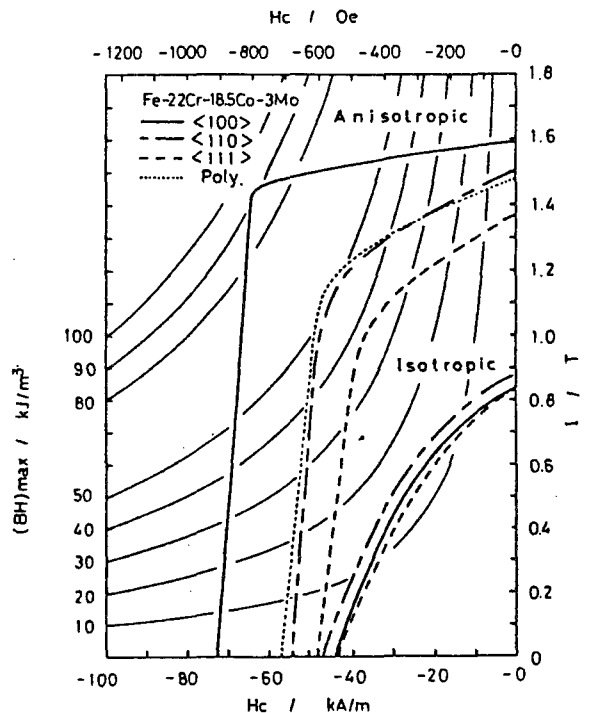


図5 Fe-22Cr-18.5Co-3Mo $\langle 100 \rangle$ 単結晶の減磁曲線

なり、Fe-22Cr-18.5Co-3Mo〈100〉単結晶合金で得られる $(BH)_{\max} = 91.2 \text{ kJ/m}^3$ は多結晶合金の約1.8倍である。またFe-23Cr-20Co-3MoおよびFe-22Cr-18.5Co-3Mo単結晶合金においては、印加磁場の方向が〈100〉方向から約 12° の範囲であれば 80 kJ/m^3 以上の $(BH)_{\max}$ を得ることができる。本研究を通してFe-22Cr-18.5Co-3Mo〈100〉単結晶合金で得られた磁気特性は、 $B_r = 1.58 \text{ T}$, $H_c = 71.2 \sim 72.8 \text{ kA/m}$, $(BH)_{\max} = 91.2 \sim 95.0 \text{ kJ/m}^3$, $B_r/I_s = 98(\%)$ であり、この $(BH)_{\max} = 91.2 \sim 95.0 \text{ kJ/m}^3$ はFe-Cr-Co系合金における最も高い値である。これら4元系単結晶合金に認められる磁気特性の明確な結晶方位依存性は、強磁性 α_1 粒子が〈100〉方向に沿って配向する2相分離組織に基づいている。なおMo添加4元系合金においても両相間の組成差の少ない磁場中熱処理の段階においては、3元系合金と同様に強磁性 α_1 粒子が印加磁場方向へ伸長しているのが認められる。しかし、組成差の拡大とともに〈100〉方向に伸長した組織へと変化する。

第5章 Fe-Cr-Co磁石合金の保磁力機構

Fe-Cr-Co系磁石合金の保磁力は強磁性 α_1 粒子の形状異方性による保磁力に基づくと考えられ、1軸形状異方性を示す強磁性 α_1 粒子の磁化の反転としてはバックリング様式、カーリング様式および斉回転様式として提唱されている反転様式が考えられる。これらの各様式は、(1)、 α_1 粒子の充填率、粒径および軸比の保磁力におよぼす影響、(2)、磁化容易軸と測定方向とのなす角度に対する保磁力依存性に特徴があり、(1)と(2)項を検討することは微粒子磁石の磁化の反転機構を考察する上で重要である。よって、各様式から導かれる保磁力に対して、熱磁気緩和による低下、粒子間の磁気双極子相互作用および結晶磁気異方性による増加に対する補正を行って実測値と比較・検討した。その結果、 α_1 粒子の平均短軸直径が約40nm以下における保磁力の実測値は、粒子の磁化が交互に逆方向を向いて反転する様式を考慮して求められる値に近く、平均短軸粒径が40~100nmの範囲においてはカーリングモデルから導かれる保磁力と比較的良好一致を示した。しかし平均粒径が約100nm以上になるとそれらの回転磁化から導かれる保磁力より低くなる。磁化容易軸と印加磁場方向との角度による保磁力の変化を測定した結果、平均粒径が約100nm以上においては磁化容易軸からのずれ角度の増加に伴って磁壁移動が関与していることを示す保磁力の上昇が認められ、磁化の反転が磁壁の発生と移動によって進行し保磁力が低下すると考えられる。いずれの合金においても保磁力は α_1 粒子の粒径の減少によって上昇するが、約40nm以下になると熱磁気緩和の影響を受けるので到達しうる保磁力には限界がある。なお本系合金におけるMoの添加による保磁力の上昇は α_1 粒子の充填率の低下のみならず軸比の増加による形状異方性の増大に起因していると考えられる。

第6章 結 論

第6章は第2章から第5章までに得た結果についてまとめたものである。すなわち第2章においては再結晶法による単結晶の作製法により、本系合金では $(\alpha + \gamma + \sigma)$ 相から α 相への相変態を利用することによって、短時間で単結晶合金を作製することが可能であることを見出している。第

3 および 4 章においては得られた単結晶合金の 2 相分離組織と磁気特性の結晶方位依存性を明らかにし、Mo 添加〈100〉単結晶合金において $(BH)_{\max} = 95 \text{ kJ/m}^3$ 以上の特性が得られることを示した。第 5 章においては Fe-Cr-Co 系磁石合金の保磁力の主因が強磁性 α_1 粒子の形状異方性であり、保磁力の最高値はファンニング形式による一斉回転モデルから算出される値に近いこと、および本系合金の保磁力の上昇には α_1 粒子の軸比を増大することと充填率を減少することが重要であることを指摘した。

審 査 結 果 の 要 旨

Fe-Cr-Co 磁石合金は現用のFe-Co-Ni-Al系磁石合金（アルニコ）と類似した磁気特性を示し、しかも成形工程に塑性加工法も適用できる永久磁石材料である。その磁気特性は α 相の2相分離によってFe-Co相 α_1 がCr相 α_2 の中に析出した組織において得られる。本論文は本系磁石合金の2相分離組織の形成過程とそれに伴う磁気特性における結晶方位の依存性および保磁力の発機構について単結晶 α 相合金を用いて検討したもので、全編6章よりなる。

第1章は緒論である。

第2章は固相変態を利用した単結晶の作製方法を述べたものである。 $\alpha + \gamma + \sigma$ 相組織に調整した多結晶合金は一端から一方加熱によって α 相組織にすると単結晶となる。その際に、端部への種結晶の接合などによって所要の結晶方位をもつ単結晶を作製することに成功している。

第3章および第4章はFe-Cr-Co 3元系および保磁力の増加のためにMoを添加したFe-Cr-Co-Mo 4元系における主要な磁石合金について、2相分離組織および磁気特性におよぼす結晶方位の影響を述べたものである。3元系合金の組織および磁気特性には結晶方位による相違は少ない。これに対して、4元系では α_1 と α_2 との格子間隔の差が増大して α_1 粒子の $\langle 100 \rangle$ への伸長が著しくなる。そのために磁界中熱処理において磁界方向と合金の $\langle 100 \rangle$ 軸が一致する場合に磁気特性は最良となり、最大エネルギー積 95 kJ/m^3 を得ている。これは本系磁石合金で記録されている最高の値である。

第5章では本系磁石合金の保持力の発生機構を述べている。保磁力の主因は α_1 粒子の形状磁気異方性にあって、粒子の短軸直径が40 nm 近傍で保磁力は極大となることを示し、そこでの磁化反転は粒子の磁化が交互に逆方向に回転するファニング形式によることを提唱している。またMoの添加による保磁力の増加が粒子の伸長に起因していることを明らかにしている。

第6章は結論である。

以上要するに本論文は、Fe-Cr-Co系磁石合金について、固相変態による単結晶作製法を開発するとともに、磁気特性に関し有用な知見を与えたもので、金属工学の発展に寄与するところ少なくない。

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。