

複合焼結整磁合金の研究

Study on the Composite Sintered Magnetic Shunt Alloys

根 本 正* 早 取 初 蔵**
 Tadashi Nemoto Hatsuzô Hayatori

要 旨

整磁合金は電気機器などに使用されている磁石の磁力が温度によって変化することを補償する特殊磁性材料で、これには種々の合金が知られているが、広い温度範囲を1種の合金で完全に補償することは困難である。したがって、広い温度範囲の補償を行なう場合には、磁気特性の異なる2種以上の整磁合金を併用することにより、補償特性を調整することが考えられる。本報は積算電力計用整磁合金として、焼結法により磁気特性の異なるFe-Ni-WおよびFe-Ni-Mo合金の複合材を作り、補償特性の調節を試みた結果、それが可能であることを確かめた。

1. 緒 言

電気機器などに使用されている磁石の磁束は温度の変化により負の可逆変化をするので、機器の精度を保つために磁束の変化を補償することが必要である。そのために普通、磁極間の空げきの一部に磁石よりもはるかに低い透磁率を有し、かつ大きな負の磁気温度係数をもつ磁性合金、すなわち整磁合金を置き磁束の側路を形成し、整磁合金に分流する磁束が温度により鋭敏に変化することを利用し空げきの磁束を温度に関係なく一定に保つ方法がとられている⁽¹⁾⁽²⁾。しかし、補償の温度範囲が広がると1種の整磁合金では補償が困難になる場合がある。

積算電力計の温度補償は駆動部の電圧、電流コイル鉄心の温度変化に伴う磁束の変化および制動磁石の磁束の温度による変化に対し行なわれる⁽³⁾が、広範囲形積算電力計の場合、+40～-10℃の計器の誤差が10℃に対し0.6%以下という規格があるので、かなり広い温度範囲にわたる補償が必要である。図1はFe-Ni-Mn整磁合金による広範囲形積算電力計の温度補償の一例である。Fe-Ni-Mn整磁合金は広い温度範囲で磁気の可逆変化を有し、さらにNi-CuやFe-Niなどの整磁合金に比べて大きな磁気温度係数をもつ合金であるが⁽⁴⁾⁽⁵⁾、これでも低温測の補償がしだいに不足する傾向がある。これを改善するためには図2に点線で示すような20℃以下の透磁率がFe-Ni-Mn整磁合金に比べて増加する整磁合金が必要である。しかし、前述のように既存の整磁合金にはそのようなものが見あらず、また加工や熱処理条件により多少の磁気特性を調節することはできるとしても、Fe-Ni-Mn整磁合金の20℃以下の磁気温度係数のみを自由に変えることは困難である。このような場合、異なる磁気特性をもつ2種以上の整磁合金を併用し、磁気の合成効果により補償特性を調節する考え方が⁽⁶⁾。併用の方法として溶製合金を組み合わせることが最も簡単であるが、できれば一体の材料中に異なる磁気特性の合金が包含されれば取扱上好都合である。したがって筆者らは焼結法により異種合金の複合体を作り、補償特性の改善を試みた。

2. 実 験 方 法

2.1 磁 気 測 定 法

磁気測定は弾動検流計法⁽⁷⁾⁽⁸⁾により磁化力150 Oeにおける磁束密度を測定し、透磁率を求めた。また試料の温度調節は図3の装置によった。すなわち、図中の①は磁化コイル内に無誘導に巻かれた管状電気炉を設置し、その中央にサーチコイルに納めた試料

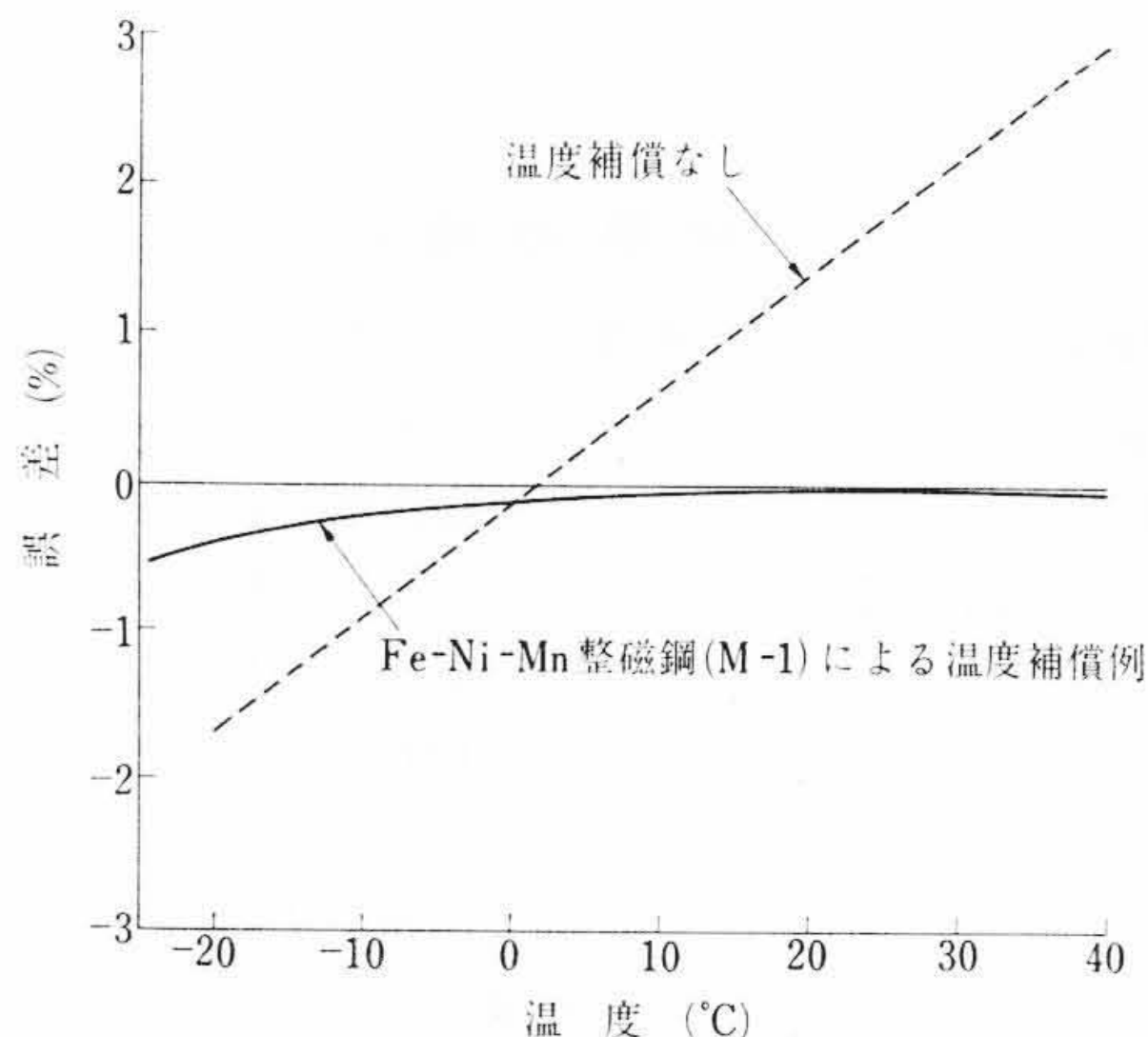


図1 Fe-Ni-Mn 整磁合金による
広範囲積算電力計の温度補償例

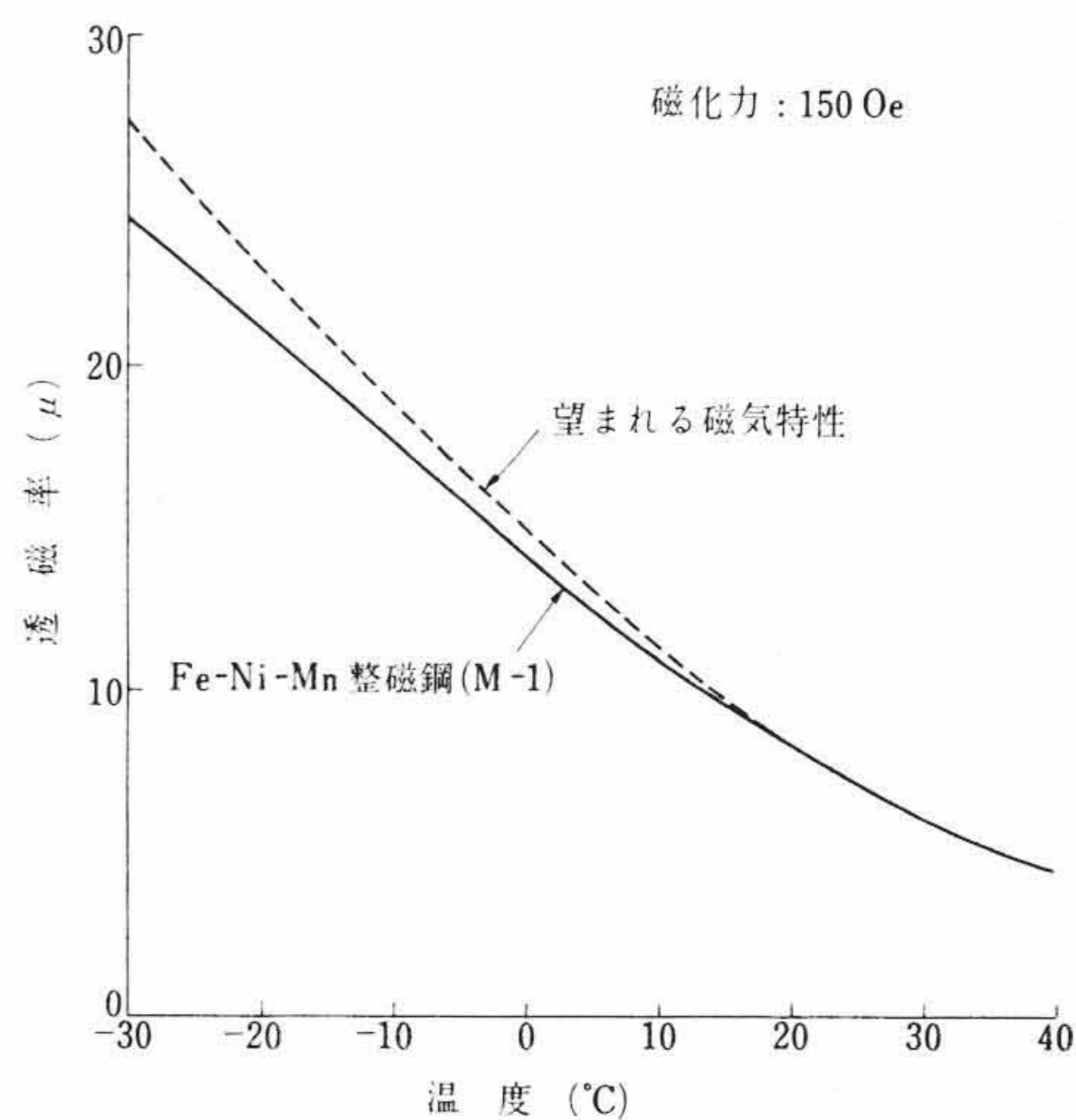


図2 広範囲積算電力計用整磁合金に要求される磁気特性

をそう入し、試料の温度を炉温により調節した。この装置は主としてNi合金のキュリー点(以下A₂点と称す)測定に用いられ、室温⇔400℃の測定を行なった。また図中②は低温測定に用いたもので、磁化コイル内に魔法びんを設置し、その中央に設けられた下端を閉じた石英管に試料を納め、魔法びん内に液体窒素中を通過した空気を徐々に導入しながら試料を冷却した。この方法では室温⇔約-150℃の測定が可能である。さらに図中の③は室温から約80℃の温度調節に用いたもので、磁化コイル内に図示したようなガラス容器を置き、その中央に設けられた下端を閉じた中空ガラス管内に試料を納める。最初このガラス容器に氷水を満たした水槽の

* 日立製作所日立研究所 工学博士

** 日立製作所日立研究所

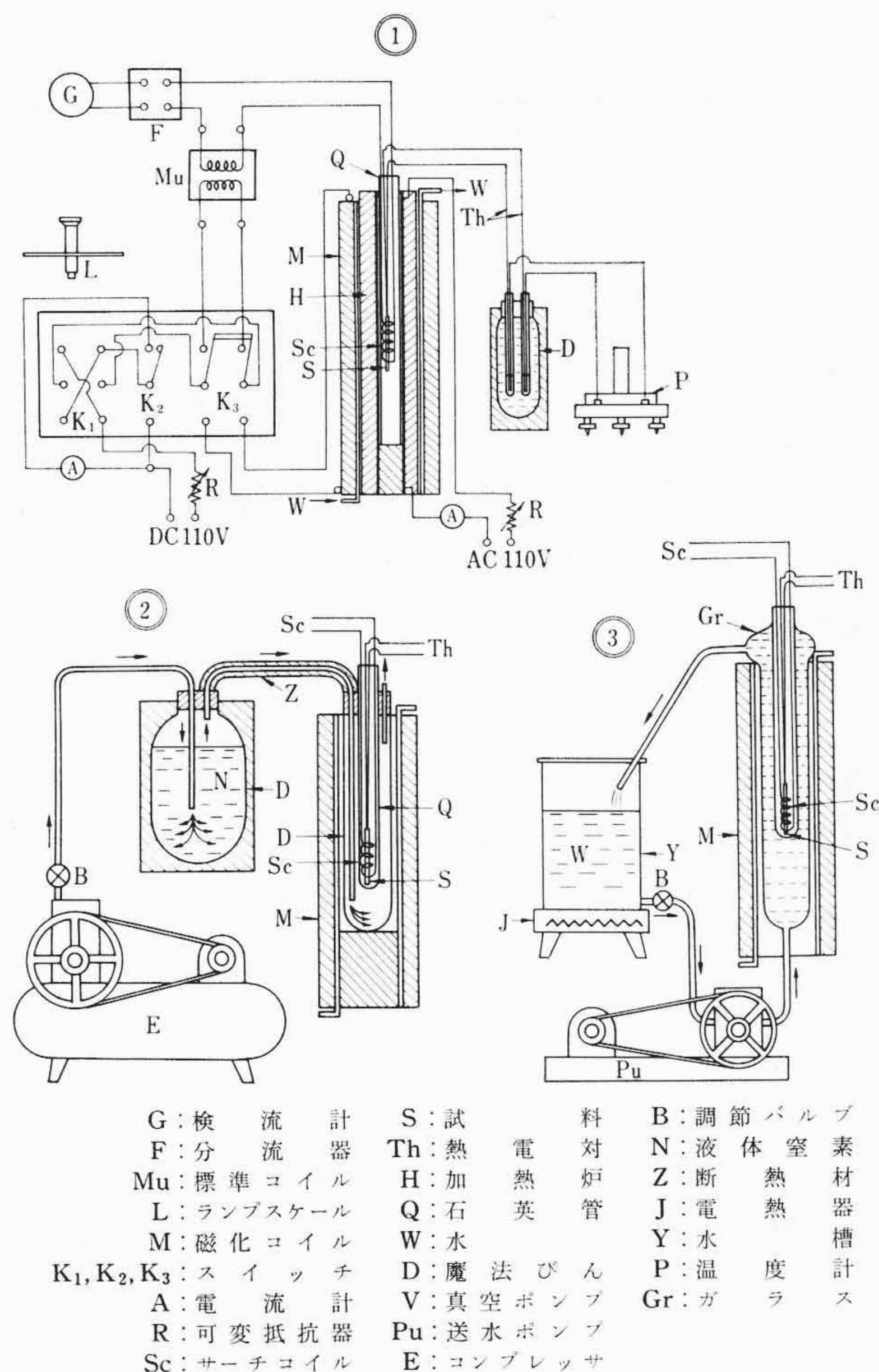


図3 磁気測定用温度調節装置

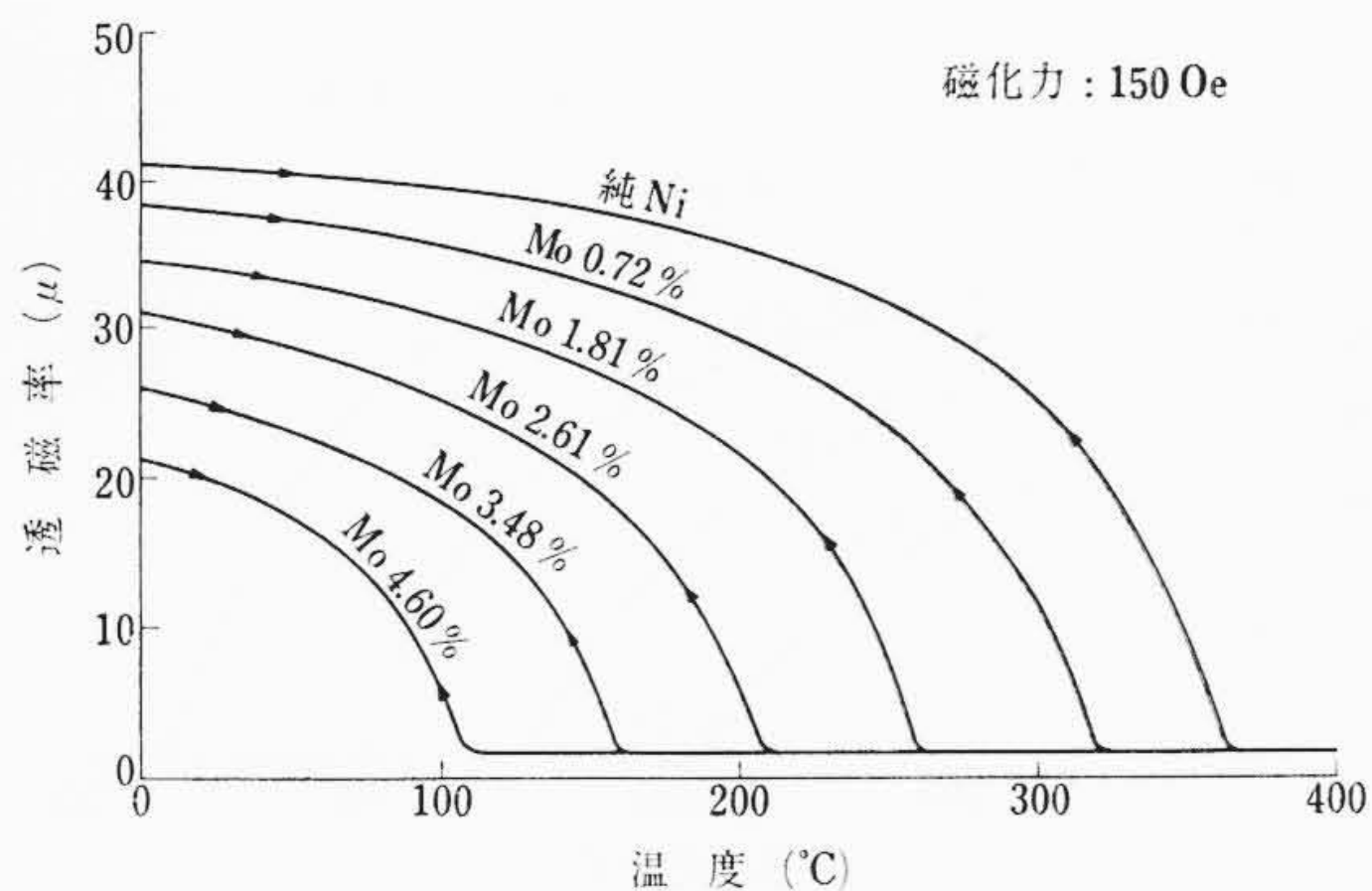
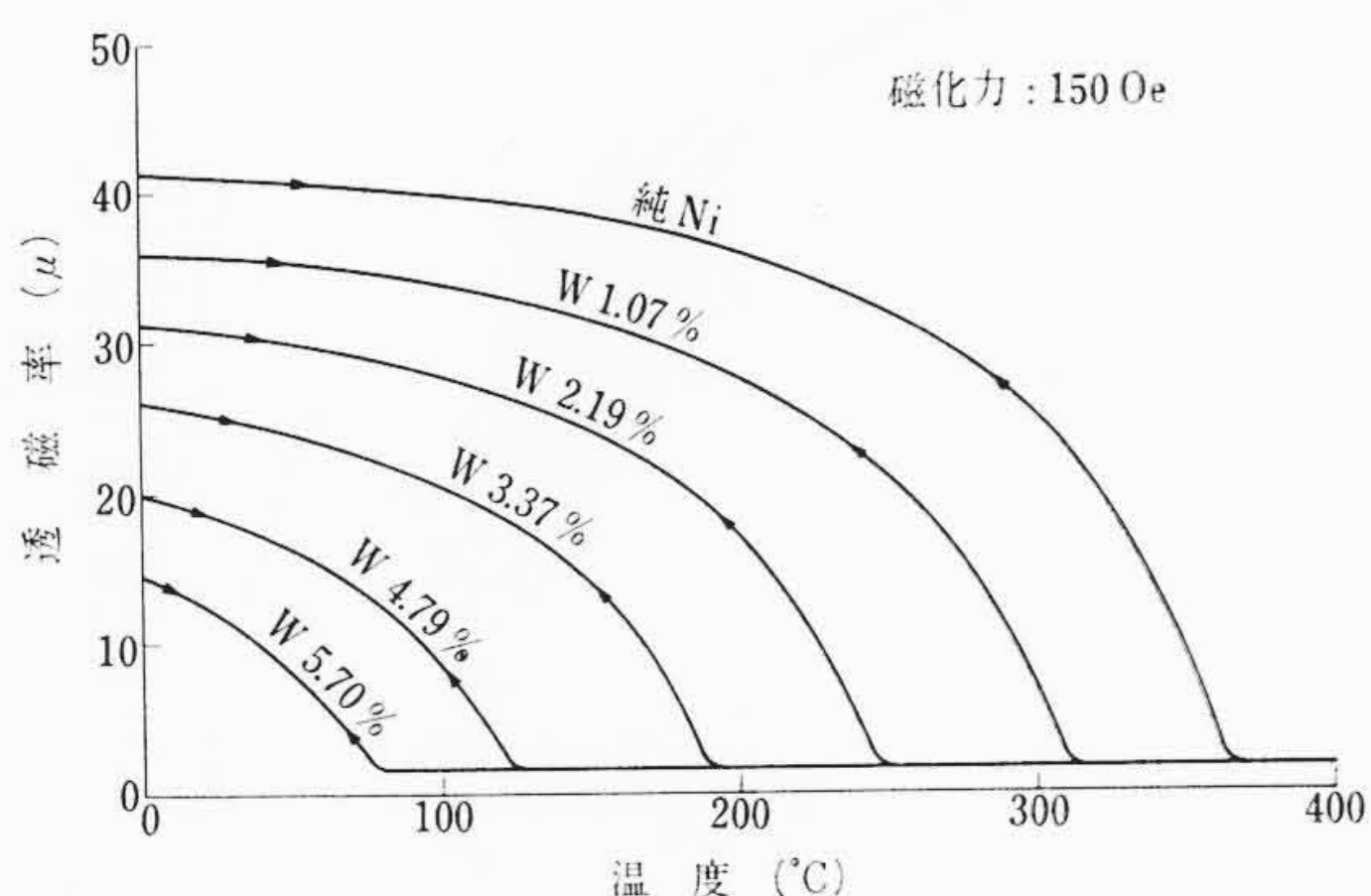
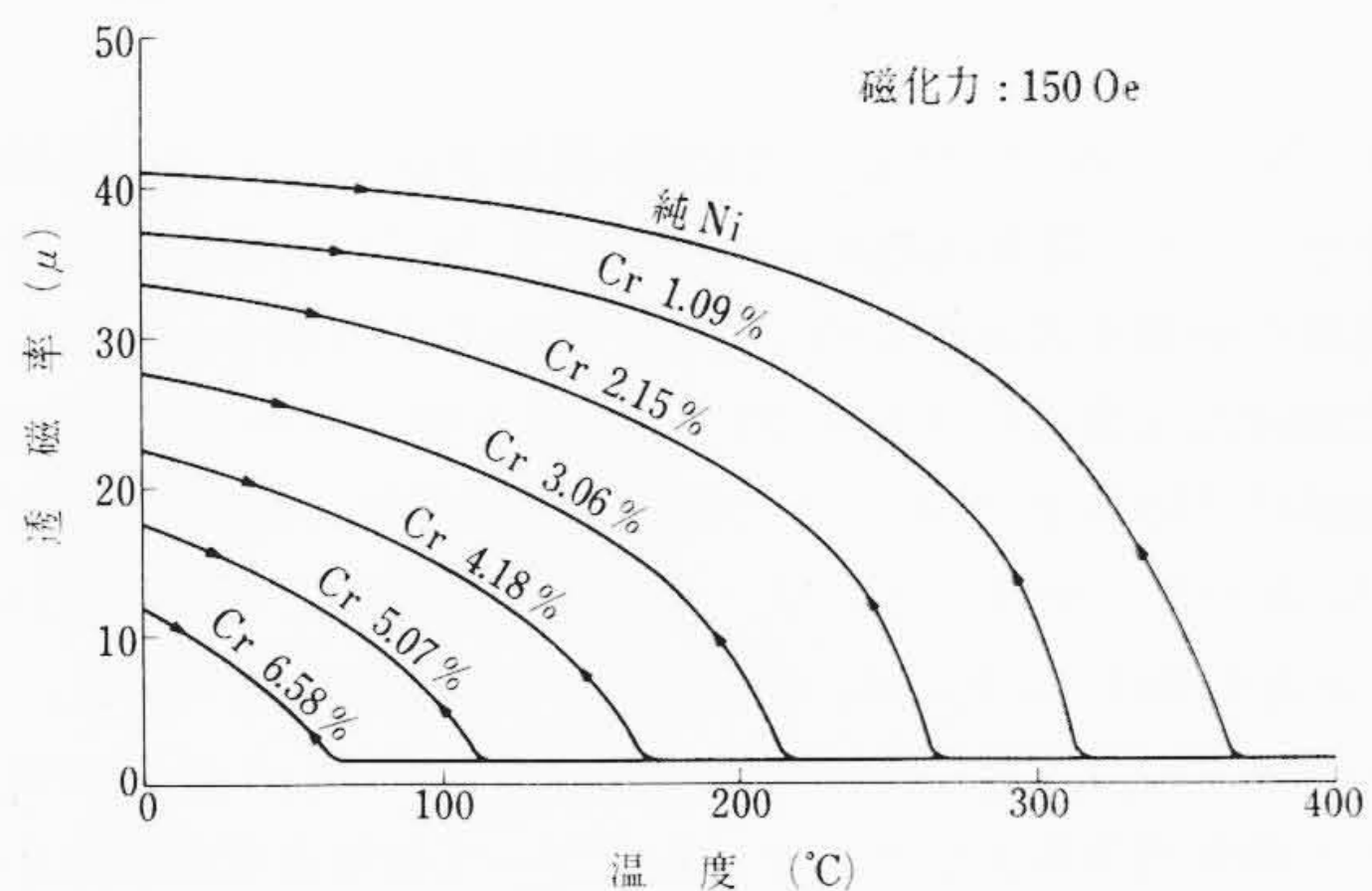
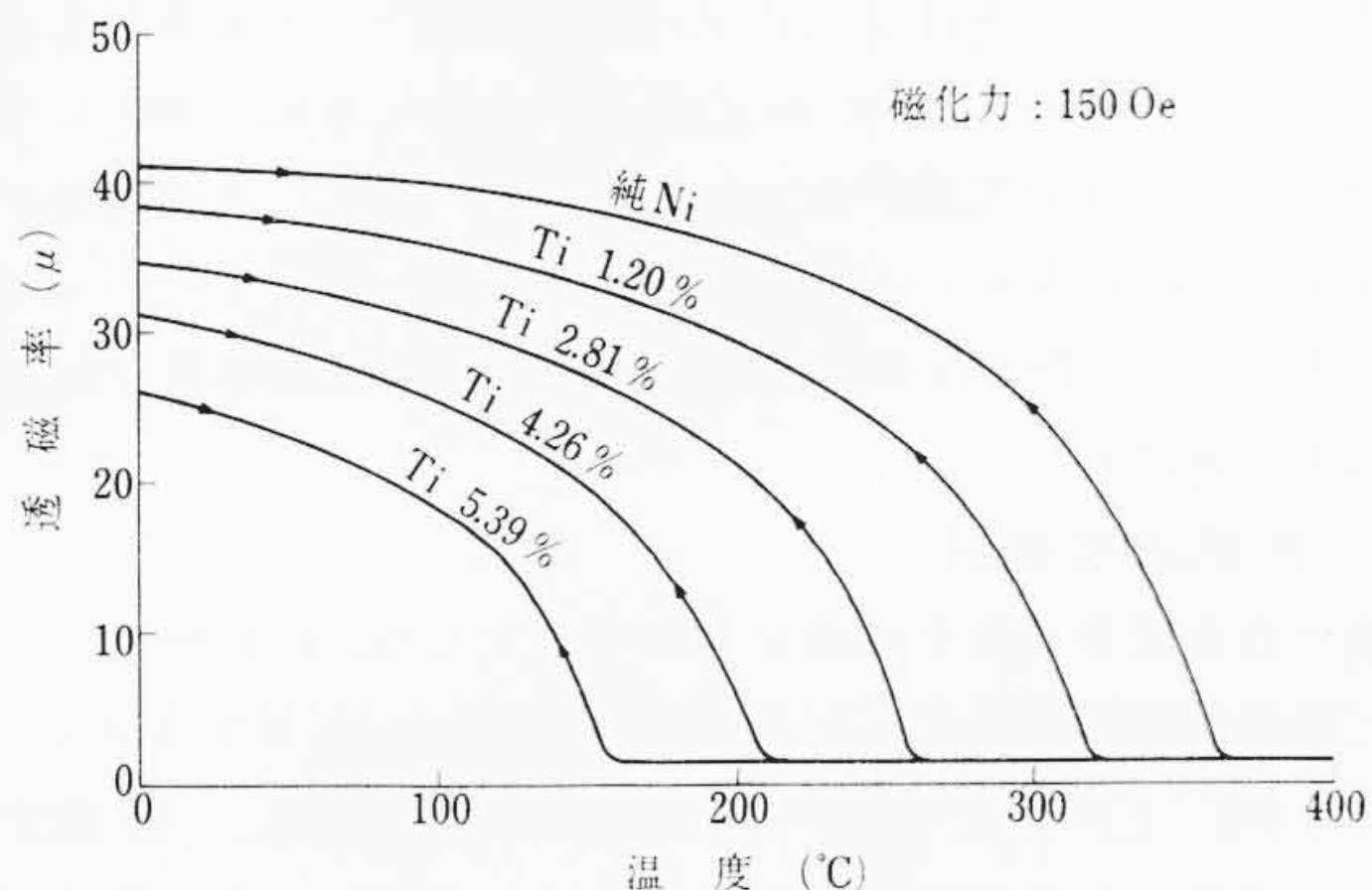
水を導入循環させ、しだいに水温を上昇させながら試料の温度を調節した。

3. 予 備 実 験

3.1 複合焼結整磁合金成分の選定

本報における複合焼結整磁合金作製の目的は、前述のように Fe-Ni-Mn 整磁合金(M-1)に比べ 20°C 以下の透磁率がしだいに大となる材料をうることにある。そのためには複合する異種合金のうち、少なくとも一方の材料の 20°C 以下の磁気温度係数が M-1 整磁合金より大であることが必要である。一般に磁性金属の磁気温度係数は A_2 点付近が最大であるから、前述の目的にそうするためには 20°C 以下に A_2 点をもつ材料が選定の目標となる。まず Fe-Ni 合金にそのようなものを求めると室温付近に Ar_3 変態があり、この変態により生成されたマルテンサイト組織は約 600°C 以上に再加熱しないとオーステナイト組織に戻らない⁽⁵⁾⁽¹³⁾。すなわち、この Ar_3 変態は温度に対し不可逆であり、したがって磁気-温度の関係も不可逆となるので整磁合金としては不適当である。さらに適当な Ni 量の Fe-Ni 合金に Mn あるいは Cr を適量添加して A_2 点および Ar_3 変態を低温側に移行させた Fe-Ni-Mn 合金⁽⁵⁾ あるいは Fe-Ni-Cr 合金⁽¹⁾⁽¹⁴⁾ などの整磁合金があり、これらより前述の複合合金に適する磁性の材料を見いだす可能性はあるが、微粉状態で焼結する際 Mn, Cr などが揮発あるいは酸化することがあり、焼結用としては良好な合金とはいえない。

そこで、前述の材料以外に適当な材料をさがす手段として Ni に各種元素を添加した Ni 系二元合金の磁性を究明した。図4~9はその結果を示したものである。図4~8はそれぞれ Ni-Mo, Ni-W,

図4 Ni-Mo 合金の μ -T 曲線図5 Ni-W 合金の μ -T 曲線図6 Ni-Cr 合金の μ -T 曲線図7 Ni-Ti 合金の μ -T 曲線

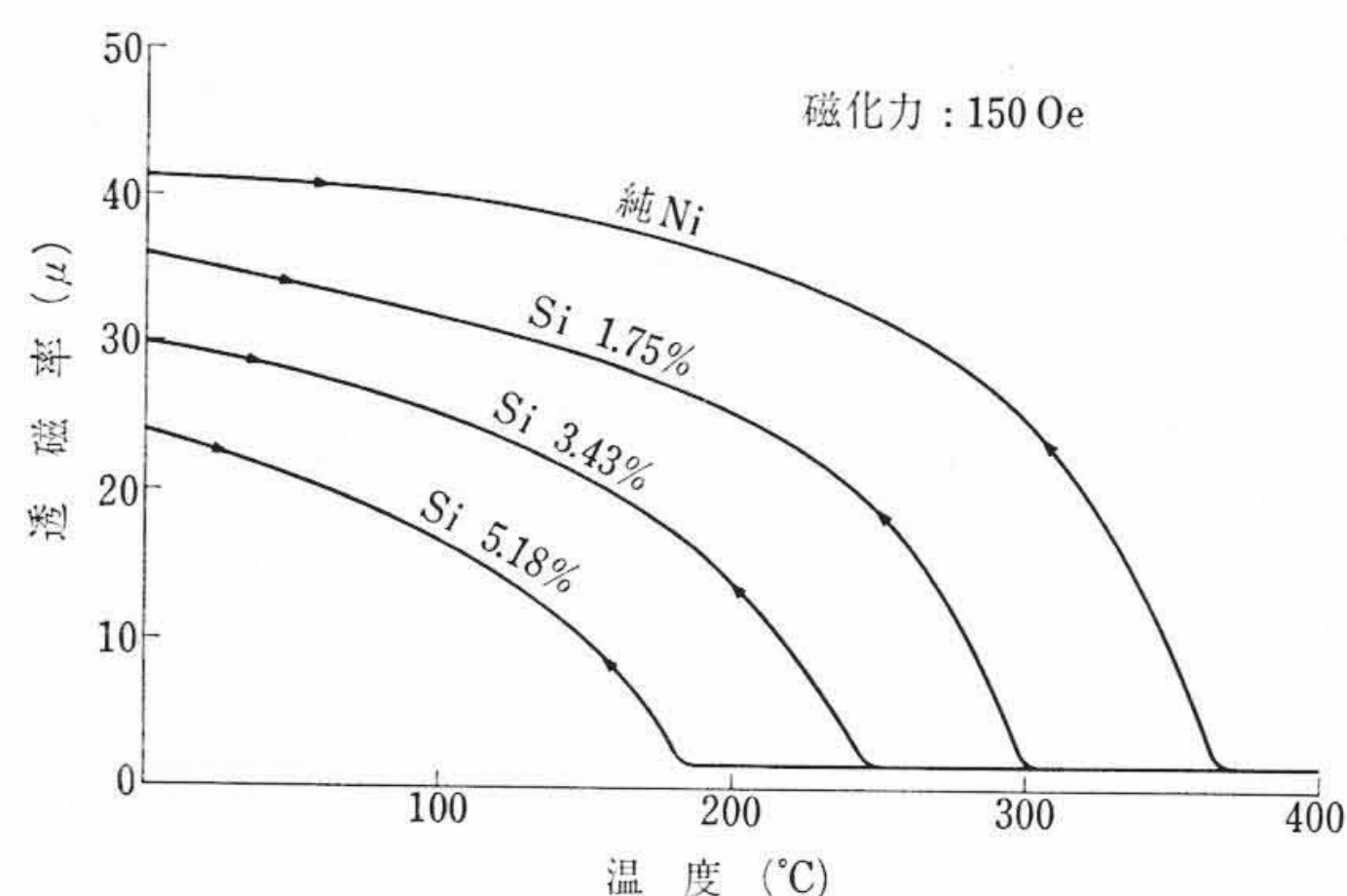


図 8 Ni-Si 合金の μ -T 曲線

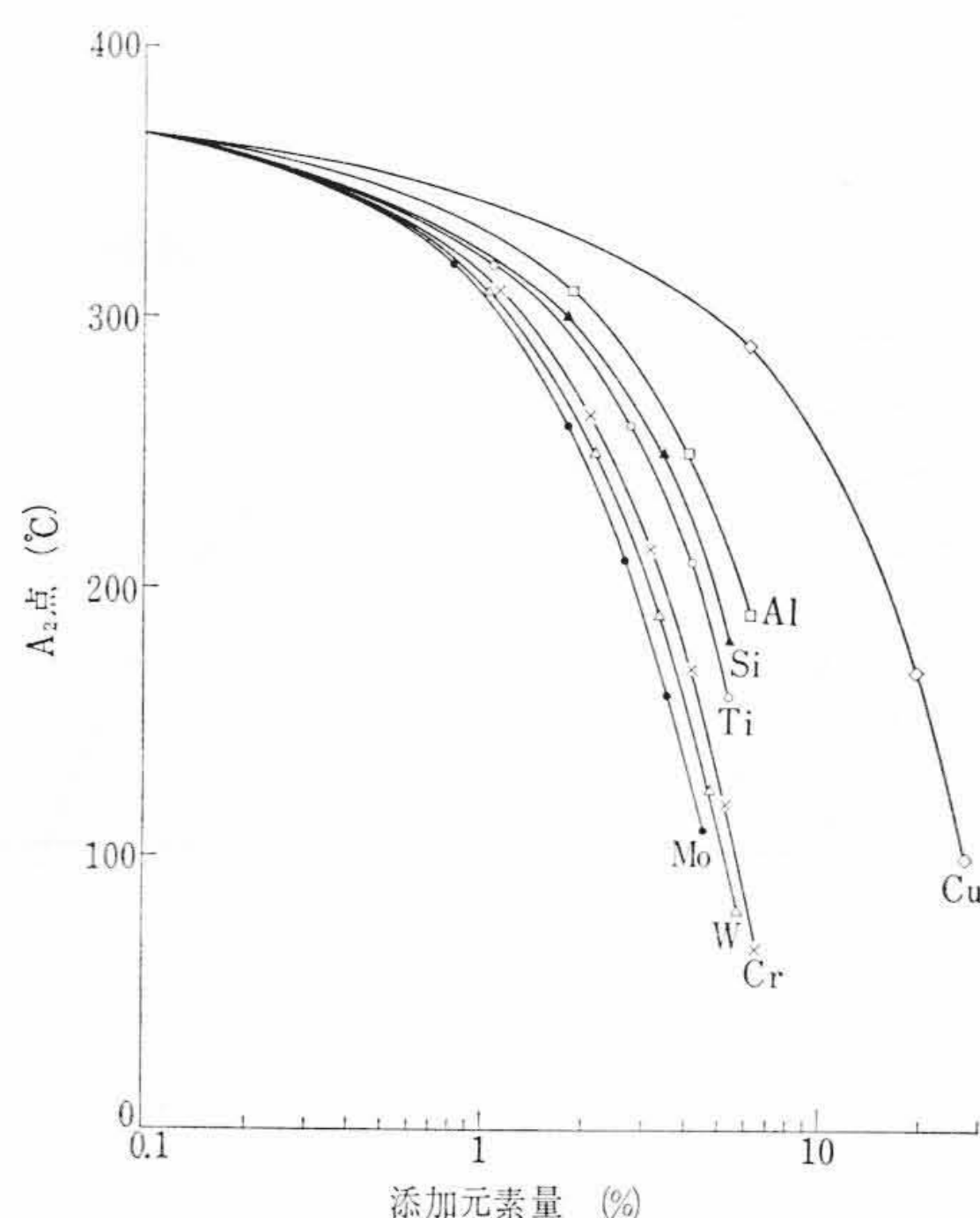


図 9 Ni の A_2 点に及ぼす各種添加元素の影響

Ni-Cr, Ni-Ti, Ni-Si 合金の透磁率-温度曲線（以下 μ -T 曲線と称す）を示し、また図 9 はそれらの結果より Ni の A_2 点に及ぼす各種添加元素の影響を求めたものである。これらより明らかなように、ここに掲げた元素はいずれも Ni の A_2 点を降下させる働きがあり、その効果は Mo および W が大である。この実験の範囲では 20°C 以下に A_2 点をもつ材料はないが、さらに添加元素量を増せばいずれの Ni 合金も 20°C 以下に A_2 点を降下させうる可能性がある。しかし、Ni を基材としたのでいずれの Ni 合金も同 A_2 点の Fe-Ni 系合金に比べ飽和透磁率が小であり、したがって磁気温度係数も小さいので、本報の複合焼結整磁合金用としては適当でないが、この実験結果から Fe-Ni 合金の A_2 点および A_{r3} 変態点の降下に有効な第三添加元素をうる資料がえられた。すなわち、前述の Fe-Ni-Cr 合金と照合し、Ni の A_2 点降下に有効な元素は Fe-Ni 合金の A_2 点降下にも有効で、そのことはさらに A_{r3} 変態点降下にも有効であろうことが暗示されている。Ni の A_2 点降下に有効な添加元素としては、このほかにも若干の元素が知られているが⁽¹⁵⁾⁽¹⁶⁾、その効果が大きく焼結に適するものは W および Mo である。したがって以下 Fe-Ni-W および Fe-Ni-Mo 合金を用いて複合焼結整磁合金の研究を進めることにした。

3.2 焼結法の検討

前述の合金成分で複合焼結を行なうに先だち、まず Fe-Ni 合金について焼結法を検討した。初め市販の Fe 粉と Ni 粉を混合し、焼結を試みたが、この方法では Ni 濃度の不均一を生じ、Ni 濃度の低い部分が室温以上で A_{r3} 変態を起こしてマルテンサイト組織が生成され⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾、そのため正常な磁気特性がえられず、均一 Ni 濃度の

表 1 焼結 Fe-Ni, Fe-Ni-W および Fe-Ni-Mo 合金の化学成分 (%)

試 番	Ni	W	Mo	備 考
No. 1	30.64	—	—	Fe-Ni 合 金
W-2	30.58	2.01	—	Fe-Ni-W 合 金
W-4	30.52	3.98	—	Fe-Ni-W 合 金
W-6	30.46	6.03	—	Fe-Ni-W 合 金
Mo-1	30.61	—	1.03	Fe-Ni-Mo 合 金
Mo-2	30.58	—	2.01	Fe-Ni-Mo 合 金
Mo-3	30.55	—	3.02	Fe-Ni-Mo 合 金
Mo-4	30.53	—	4.06	Fe-Ni-Mo 合 金
Mo-5	30.49	—	5.04	Fe-Ni-Mo 合 金

Fe-Ni 焼結合金をうるためには数ミクロン以下のきわめて微粒の粉末を用い $1,300^\circ\text{C}$ 以上で長時間の焼結を行なうことが必要である。ちなみに Hulthen 氏あるいは Harrison 氏らの類似研究⁽¹¹⁾⁽¹²⁾においても Ni 濃度の不均一が認められているが、これは Ni と Fe の拡散速度がきわめて遅いことに基因する。したがって本報における Fe-Ni 系焼結整磁合金の作製には問題の多い Fe と Ni の粉末を混合する方法をさけ、Fe-Ni 溶製合金を搗碎（とうさい）製粉した粉末を使用することにした。

4. 複合焼結整磁合金の実験結果とその検討

予備実験により複合焼結整磁合金の基材成分および焼結法が求められたので、それにより実験を進めることにし、まず Fe-Ni-W および Fe-Ni-Mo 焼結合金を作製し、その磁性を究明した。使用した粉末は Ni 30.6% で粒度 250 メッシュ以下の Fe-Ni 溶製合金の搗碎粉と市販の W 粉（粒度 325 メッシュ以下）および市販の Mo 粉（粒度 250 メッシュ以下）で、焼結条件は成形圧力 6 t/cm^2 、成形寸法は $150\text{ mm}/\times 5\text{ mmW} \times 3\text{ mm}$ とし、水素ガス中で $1,300^\circ\text{C} \times 2\text{ h}$ 加熱焼結した。さらに焼結合金の密度を溶製合金のそれに近づけるため、焼結後の試料の厚さを 2 mm に削ってそろえ、それから厚さ 0.8 mm まで冷間圧延した。それらの板より $150\text{ mm}/\times 5\text{ mmW}$ の試料を採取し、 $800^\circ\text{C} \times 30\text{ min}$ 水素ガス中で焼鈍後磁気測定を行なった。各試料の化学成分は表 1 に示すとおりである。

磁気測定は $+60 \sim -60^\circ\text{C}$ の温度範囲で行なわれたが、図 10 および図 11 はそれぞれ Fe-Ni-W および Fe-Ni-Mo 焼結合金の μ -T 曲線と透磁率の温度係数（以下 α と称す）である。ここに示した α は、温度 $t^\circ\text{C}$ の場合 $t \pm 5^\circ\text{C}$ の透磁率の差を温度差 10 で除した値である。これらの結果から W および Mo はともに Fe-Ni 合金の A_2 点と A_{r3} 変態点を降下させ、同時に最大 α を示す温度も W あるいは Mo 添加量の増加にしたがい低温側に移行することが知られる。これらの試料中より前述の Fe-Ni-Mn 整磁合金 (M-1) よりも A_2 点の低いものを求めると、Fe-Ni-W 焼結合金においては試料 W-4 および W-6 であり、Fe-Ni-Mo 焼結合金においては試料 Mo-3, Mo-4 および Mo-5 である。また 20°C , 0°C および -20°C における透磁率（それぞれ μ_{20} , μ_0 , μ_{-20} と称す）と W あるいは Mo 添加量との関係を示すと図 12 のようになり、透磁率に及ぼす影響は W よりも Mo が大である。

以上の結果から M-1 整磁合金より低い A_2 点を有し、 A_{r3} 変態点が -60°C 以下の Fe-Ni-W あるいは Fe-Ni-Mo 焼結合金がえられたので、これらを用いて複合焼結合金を作成することにした。複合の形状としては最も簡単な積層法をとった。まず Fe-Ni-W 系合金の複合には、M-1 整磁合金の磁性との関係から試料 W-2 と W-6 との組合せを選び、両成分の複合割合を重量比で表 2 のようにした。複合焼結の方法としては、まず一方の成分の混合粉を金型にそう入し、成形圧力 4 t/cm^2 で成形後雄型をはずし、成形された金型中の初めの混合粉の上にはほかの混合粉を平均に重ね、再び雄型をそう入して

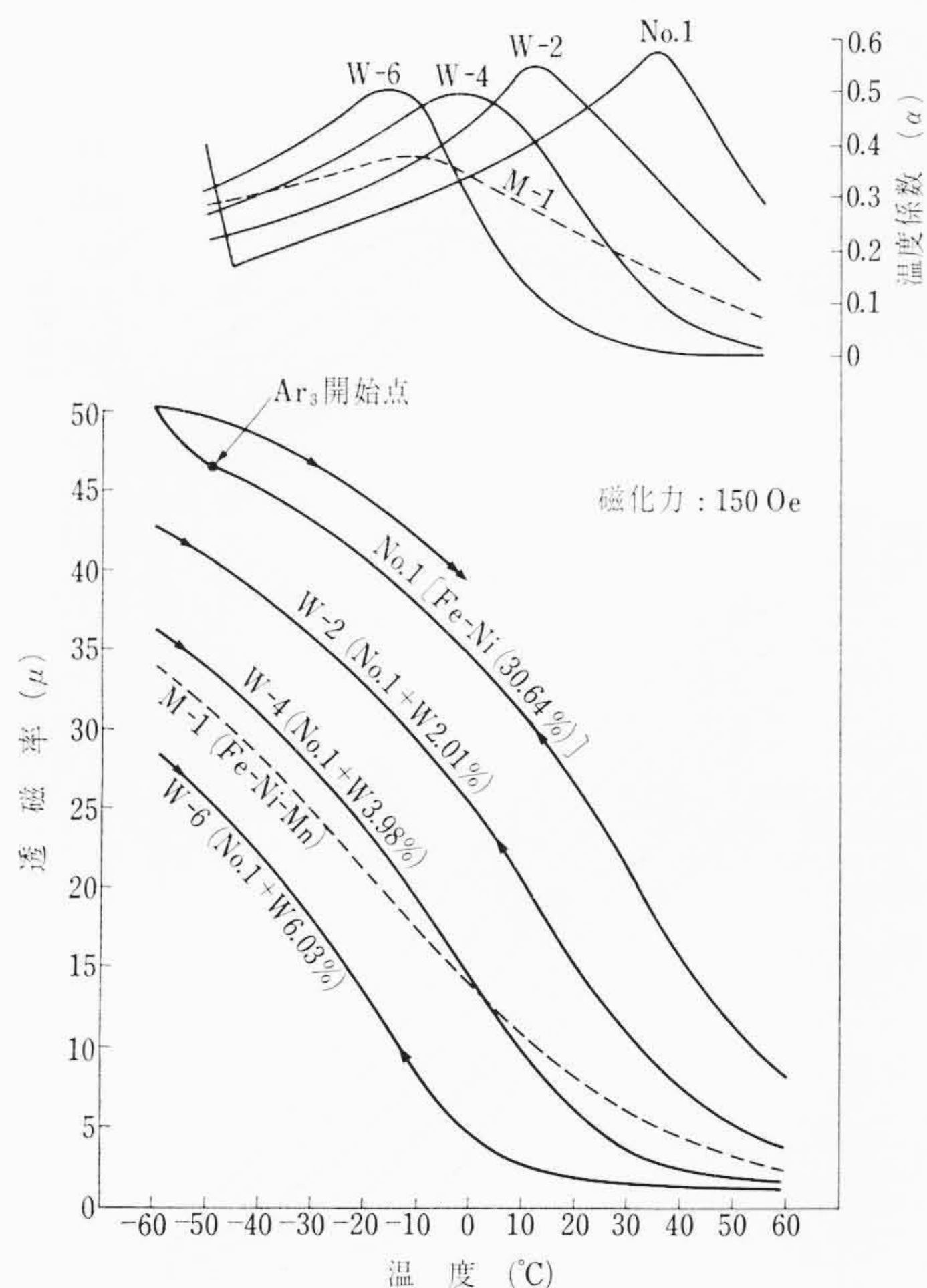


図 10 Fe-Ni-W 焼結合金の磁性

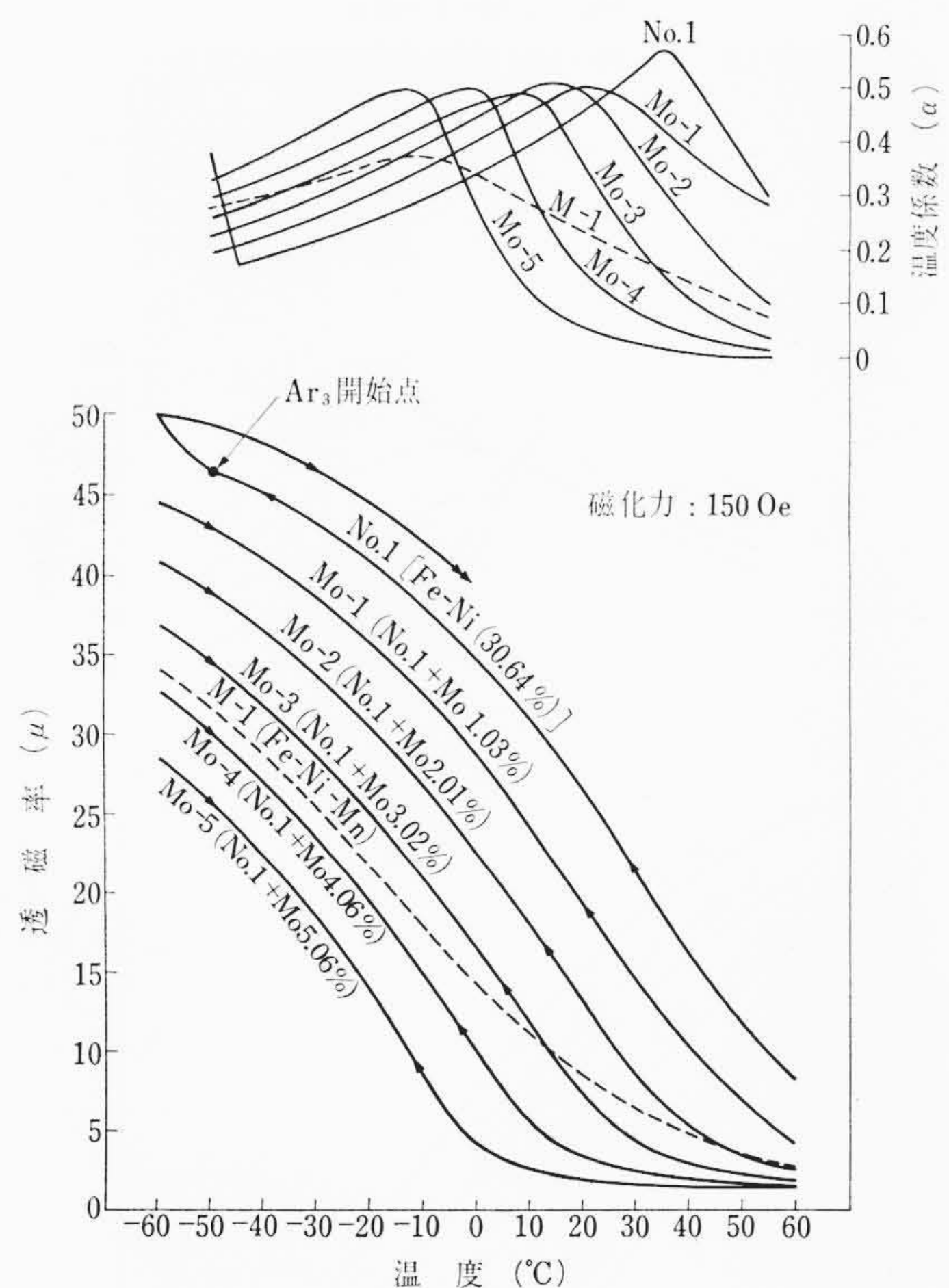


図 11 Fe-Ni-Mo 焼結合金の磁性

あらためて成形圧力 6 t/cm^2 で複合体の成形を行ない、水素ガス中で $1,300^{\circ}\text{C} \times 2 \text{ h}$ の焼結を行なった。成形寸法は $150 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ W で厚さ約 3 mm になるよう粉末の重量を調節した。焼結後の試料は冷間圧延により 0.8 mm t に加工後 $150 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ W の試料を採取し、 $800^{\circ}\text{C} \times 30 \text{ min}$ 水素ガス中で焼鈍後、磁性を測定した。図 13 はその結果えられた μ -T 曲線と温度係数を示したものである。これによれば 3 種の複合焼結合金の中で試料 B が最も目的(図 2 の点線)に近い磁気特性を示していることがわかる。

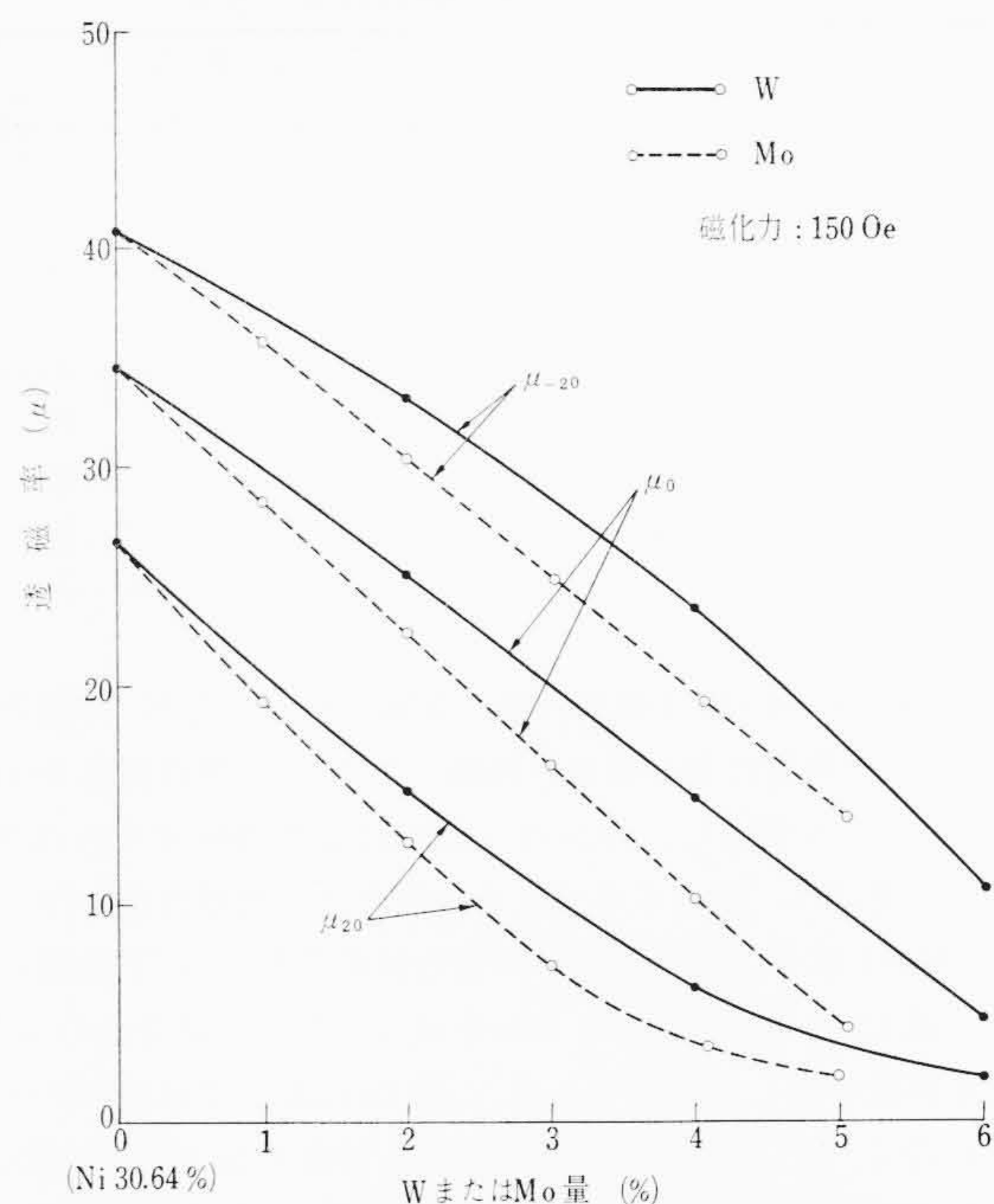


図 12 Fe-Ni 合金の透磁率に及ぼす W および Mo 添加の影響

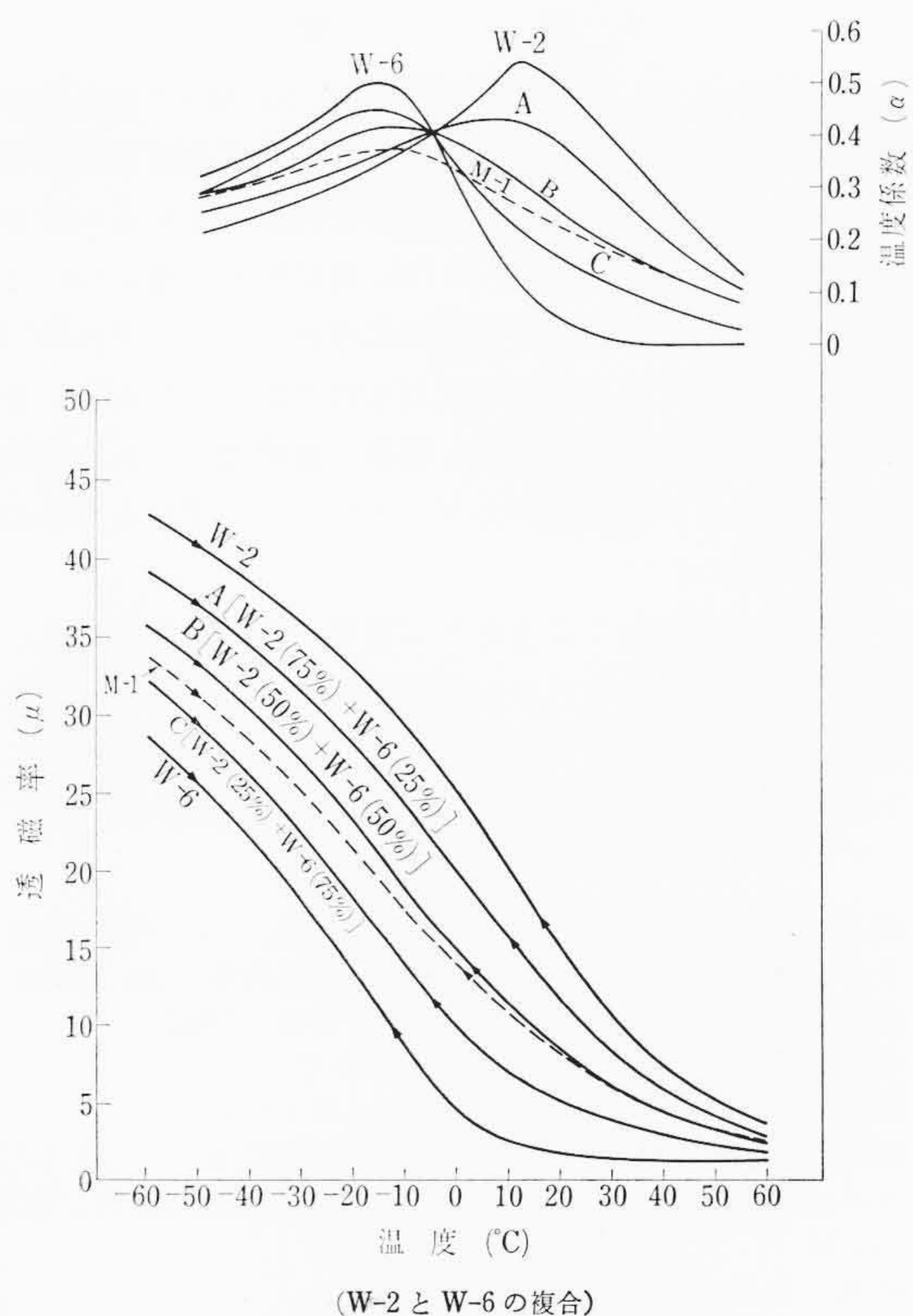


図 13 Fe-Ni-W 複合焼結合金の磁性

表 2 Fe-Ni-W 複合焼結合金の複合比

試番	複 合 比 (重 量 %)	
	W-2 相当成分	W-6 相当成分
A	75	25
B	50	50
C	25	75

表3 Fe-Ni-Mo 複合焼結合金の複合化

試 番	複 合 比 (重 量 %)		
	Mo-1 相当成分	Mo-4 相当成分	Mo-5 相当成分
D	75	25	—
E	50	50	—
F	25	75	—
G	75	—	25
K	50	—	50
L	25	—	70

次いでFe-Ni-Mo複合焼結合金の実験を行なったが、作製方法はFe-Ni-W複合焼結合金の場合と同様である。成分の組合せは試料Mo-1の成分を片側にし、ほかの一方には試料Mo-4またはMo-5の2成分が選ばれ、表3に示すような複合比の焼結合金を作った。図14はMo-1成分とMo-4成分の複合焼結合金の μ -T曲線と温度係数を、図15はMo-1成分とMo-5成分の複合焼結合金の μ -T曲線と温度係数を示したものである。図14においては試料Fが目的の磁性に近く、10℃以上の透磁率はM-1整磁合金よりやや低いが、0℃以下の磁気特性は良好である。また図15においては目的に近い磁気特性の試料は見あたらないが、試料KとLの中間の複合比の合金が目的に近いものと推察される。

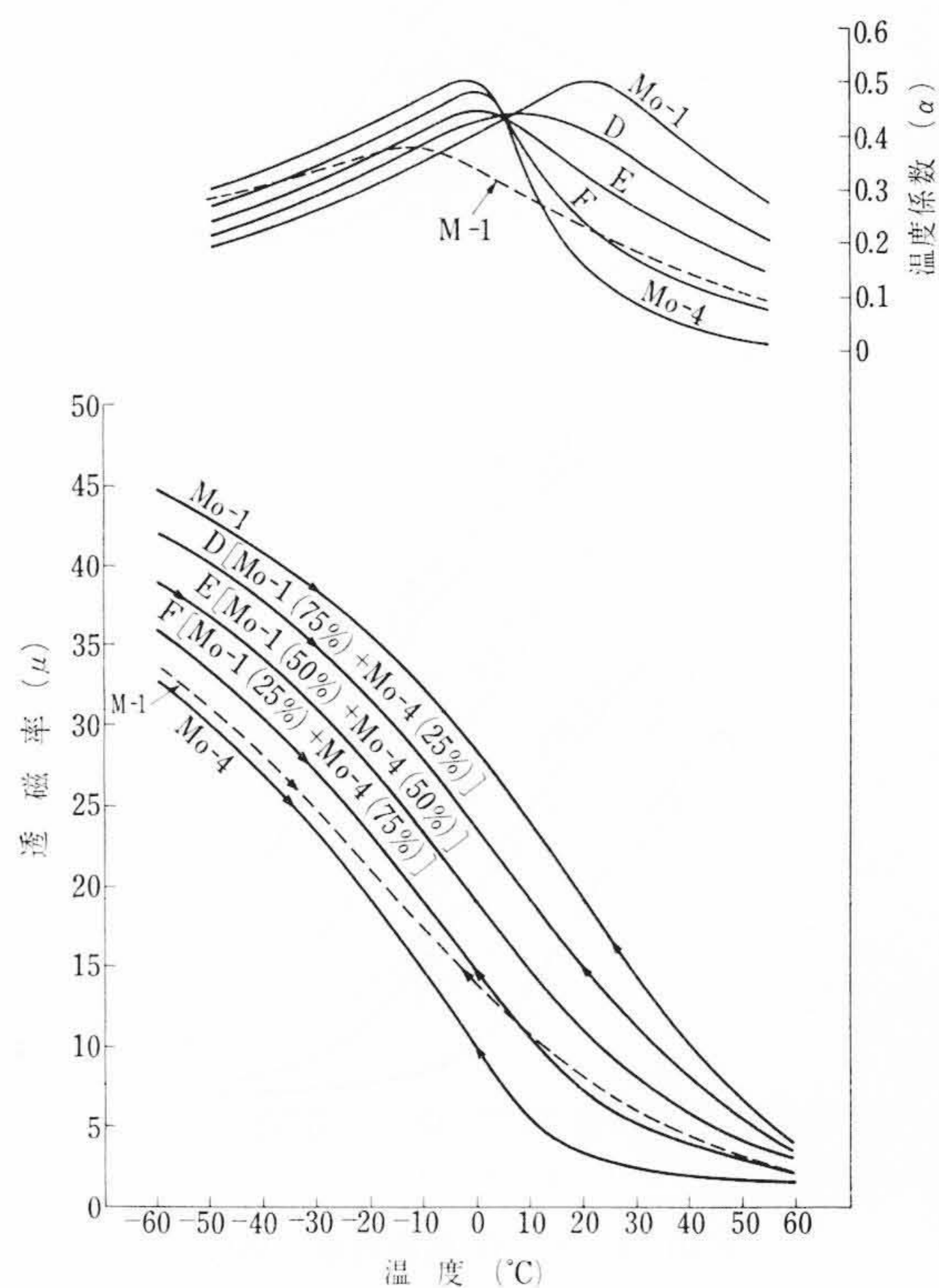
5. 結 言

以上の諸結果からFe-Ni-WあるいはFe-Ni-Moの複合焼結合金の複合成分および複合比を適当に調節すれば、広範囲形積算電力計用整磁合金として既存のものよりも良好な補償特性をもつ合金がえられる可能性を見いだした。Fe-Ni-Mo焼結整磁合金については本報よりわずかに先行した研究で明らかにされたが⁽¹⁷⁾、Fe-Ni-W整磁合金はこの実験により見いだされたものである。しかし、さらに使用粉末の焼結性、複合の多種性と形体、量産化のための経済性あるいは品質管理などの諸問題があり、これらはいずれも今後の研究にまたねばならない。

終わりに本研究を行なうに当たりご指導やご協力をいただいた日立製作所那珂工場の故宗像氏ならびに関係の諸氏、日立金属株式会社の小野博士、日立製作所日立研究所の竹内博士および熱心に実験に当たられた黒沢瑞昭、小野寺久吉の諸氏に厚く感謝の意を表する。

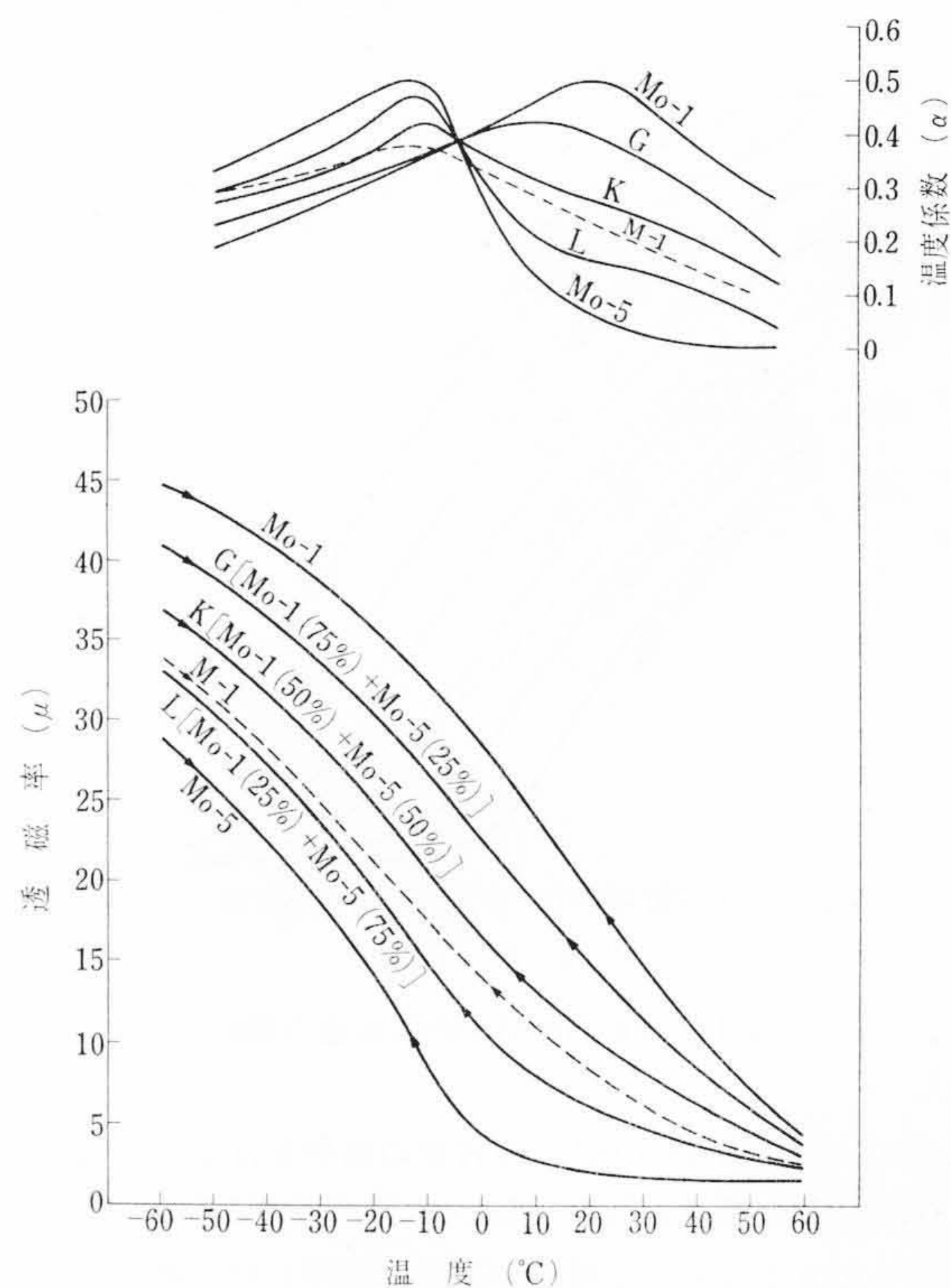
参 考 文 献

- (1) 増本, 白川, 大原: 日本金属学会B誌, 15, 376 (1951)
- (2) 日本金属学会篇: 新制金属講座, 磁性材料, 55 (1954)
- (3) 飯田, 萩原: 積算電力計の理論と取扱 (1962)
- (4) 小野, 根本, 早坂: 特許第244780号
- (5) 根本, 早取: 日立評論 50, 491 (昭43-6)
- (6) 牧野: 磁性材料とその応用, 252 (昭37-9)
- (7) 日本金属学会篇: 新制金属講座, 物理冶金測定法, II, 211 (昭34-7)
- (8) 阿部, 井形: 応用金属物理学実験法
- (9) 竹内, 本間, 鈴木: 日本金属学会誌, 21, 51 (1957)
- (10) F. Förster, E. Scheil: Z. Metallk, 32, 165 (1940)
- (11) S. I. Hulthen, 林悦雄訳: 工業材料, 粉末冶金特別講座, 5, 87 (昭32)
- (12) L. Harrison, S. Marton: Symposium on Powder Metallurgy, 159, 358 (1954)
- (13) 浜住: 新金相学, 180 (昭36-12)
- (14) 白川, 大原: 特許公報 (昭21-6101)
- (15) P. V. Marian: Les Points De Curie Eerromagnetiques Et La Saturation Absolue De Quloues Alliages De Nikel, 506, 508 (1937)
- (16) 日本金属学会篇: 新制金属講座, 磁性材料, 25 (1954)
- (17) チャルス, アルフレッド, クラーク: 特許公報 (昭34-4658)
- (18) 小野, 根本, 竹内, 早取, 黒沢: 特許第282496号



(Mo-1 と Mo-4 の複合)

図14 Fe-Ni-Mo 複合焼結合金の磁性



(Mo-1 と Mo-5 の複合)

図15 Fe-Ni-Mo 複合焼結合金の磁性