

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2024年7月25日(25.07.2024)



(10) 国際公開番号

WO 2024/154774 A1

- (51) 国際特許分類:
C21D 8/12 (2006.01) C22C 38/60 (2006.01)
C22C 38/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2024/001266
- (22) 国際出願日: 2024年1月18日(18.01.2024)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2023-005565 2023年1月18日(18.01.2023) JP
- (71) 出願人: 日本製鉄株式会社 (NIPPON STEEL CORPORATION) [JP/JP]; 〒1008071 東京都千代田区丸の内二丁目6番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 松原 稜 (MATSUBARA Ryo); 〒1008071 東京都千代田区丸の内二丁目6番1号 日本製鉄株式会社内 Tokyo (JP). 牛神 義行 (USHIGAMI Yoshiyuki); 〒1008071 東京都千代田区丸の内二丁目6番1号 日本製鉄株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 松沼 泰史, 外 (MATSUNUMA Yasushi et al.); 〒1006620 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT,

(54) Title: METHOD FOR MANUFACTURING GRAIN-ORIENTED ELECTROMAGNETIC STEEL SHEET

(54) 発明の名称: 方向性電磁鋼板の製造方法

(57) Abstract: This method for manufacturing a grain-oriented electromagnetic steel sheet comprises: a hot rolling step; a hot-rolled sheet annealing step; a cool rolling step; a decarburization annealing step; an annealing separator application step; a nitriding step; and a finishing annealing step. The finishing annealing step includes a heating process and a homogenizing process, and at least in a certain period from the start of secondary recrystallization in the heating process until the completion of the secondary recrystallization, a temperature gradient of 0.5°C/cm or more is generated in a boundary area between a primary recrystallization area and a secondary recrystallization area. The nitriding step is performed through annealing in an atmosphere containing nitriding gas in at least one stage during the decarburization annealing step, between the decarburization annealing step and the finishing annealing step, or until the start of the secondary recrystallization in the heating process of the finishing annealing step. The nitrogen content of the steel sheet after the nitriding step is, on a mass basis, 210 ppm or more.

(57) 要約: この方向性電磁鋼板の製造方法は、熱間圧延工程と、熱延板焼鈍工程と、冷間圧延工程と、脱炭焼鈍工程と、焼鈍分離剤塗布工程と、窒化处理工程と、仕上げ焼鈍工程と、を備え、前記仕上げ焼鈍工程では、昇温過程と均熱過程とを有し、前記昇温過程の二次再結晶の開始から前記二次再結晶の完了までの間の少なくとも一時期において、一次再結晶領域と二次再結晶領域との境界領域に0.5°C/cm以上の温度勾配を生じさせ、前記窒化处理工程は、前記脱炭焼鈍工程中、前記脱炭焼鈍工程と前記仕上げ焼鈍工程との間、または前記仕上げ焼鈍工程の前記昇温過程であって前記二次再結晶の開始までの少なくとも一つの段階で窒化能のあるガスを含有する雰囲気中で焼鈍することにより行われ、前記窒化处理工程後の前記鋼板の窒素量を質量基準で210ppm以上にする。

RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF,
CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE,
SN, TD, TG).

添付公開書類：

- 一 国際調査報告（条約第21条(3)）

明 細 書

発明の名称：方向性電磁鋼板の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は方向性電磁鋼板の製造方法に関する。

本願は、2023年01月18日に、日本に出願された特願2023-005565号に基づき優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] 方向性電磁鋼板（一方向性珪素鋼板とも呼ばれる）は、軟磁性材料であり、主に、変圧器の鉄心材料として用いられる。そのため、方向性電磁鋼板には、エネルギー損失が少ないこと（低鉄損）が要求される。例えば、磁束密度： B_8 （ 800 A/m の磁場における磁束密度）は鉄損特性の最大の支配因子である。磁束密度： B_8 の値が高いほど低鉄損になり、鉄損特性も良好になることが知られている。また、磁束密度： B_8 の値が高いほど、鉄心を小型化できるので、変圧器の装置構成の点で有利であり、かつ変圧器の製造コストの点でも有利である。磁束密度： B_8 の値を高めるためには結晶方位を高度に揃えることが重要である。この結晶方位の制御は二次再結晶とよばれるカタストロフィックな粒成長現象を利用して達成される。

[0003] 従来、高磁束密度方向性電磁鋼板に関する発明は古くより数多く提案されているが、工業的に生産された一方向性珪素鋼板について調査する限り、その磁束密度（ B_8 ）は、珪素鋼における理論的上限值には及ばず、まだ大幅な改善の余地がある。

[0004] 磁束密度の向上に関し、例えば、特許文献1には、 C ：0.015%以下、 Si ：4%以下、 S ：0.012%以下、酸可溶性 Al ：0.020～0.065%、 $T.N$ ：0.0030～0.0095%を含有する珪素鋼スラブを 1270°C 以下で加熱後、熱間加工により熱延板とし、 $700\sim 950^\circ\text{C}$ で巻取った後、65%以上の圧下率で冷間圧延し、この鋼板に短時間一次再結晶焼鈍を行なった後、一次再結晶領域と二次再結晶領域との境界部位の

鋼板に $2^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 以上の温度勾配を与えながら二次再結晶粒を成長させる処理を含む高温仕上げ焼鈍を施すことを特徴とする、磁束密度の高い一方向性電磁鋼板の製造方法が開示されている。

[0005] また、特許文献2には、従来製造することが困難であった、板厚の薄い材料（例えば 0.13mm ）においても、二次再結晶による結晶方位制御と鋼板表面の平滑化を達成することにより、超低鉄損の一方向性電磁鋼板を低コストで製造する、超低鉄損一方向性珪素鋼板の製造方法が開示されている。特許文献2では、少なくとも $2^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ の温度勾配を確保するため、仕上げ焼鈍において昇温速度 $50^{\circ}\text{C}/\text{hr}$ 以上で $1000\sim 1100^{\circ}\text{C}$ の温度まで昇温する必要があると開示されている。

[0006] また、例えば、特許文献3には、一方向性珪素鋼板（帯）の製造工程において、一次再結晶領域と二次再結晶領域の境界領域において鋼板（帯）に温度勾配を与えながら二次再結晶を進行させることを特徴とする、磁束密度の高い一方向性珪素鋼板（帯）の製造法が開示されている。

[0007] また、例えば特許文献4、5には、コイル状の鋼板に温度勾配を付与する設備や方法が開示されている。

先行技術文献

特許文献

- [0008] 特許文献1：日本国特公昭59-41488号公報
特許文献2：日本国特開平5-311238号公報
特許文献3：日本国特公昭58-50295号公報
特許文献4：日本国特開昭57-164935号公報
特許文献5：日本国特開昭58-1019号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] 上述の通り、特許文献1、特許文献2に記載の技術では、仕上げ焼鈍時に $2^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 以上の温度勾配を与える必要があると示されている。温度勾配を

付与する場合、特許文献4、5等に掲載された設備や方法を適用することが考えられるが、これらに掲載されている設備や方法では、工業的な規模のコイルの長手方向及び幅方向の全域で一定の温度勾配となるように制御すること、また、全域で高い温度勾配となるように制御することは困難であり、部分的に $0.5^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 程度の低温度勾配の（温度勾配の小さい）領域が存在してしまう。このような低温度勾配となる領域では、十分な磁束密度の向上効果を得ることは難しい。

本発明者らが、公知の伝熱計算ソフトANSYS社製Fluent（登録商標）を用いたシミュレーションによりコイルの各部位の温度勾配を算出したところ、 $2^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 以上の温度勾配を与えようとした場合にも、コイルの一部の部位において、 $0.5^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 程度の低温度勾配となる（温度勾配の小さい）領域が存在してしまうことが分かった。特に、コイルに温度勾配を設ける場合、特に大きな温度勾配を設けようとする、コイルの外側に比べ、内部では温度勾配が小さくなりやすいことが分かった。すなわち、例えばコイルの外側では $2^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 以上の温度勾配であっても、コイル内部などの一部領域は $2^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 未満の低温度勾配となる。また、コイルの幅方向に温度勾配を設ける場合など、高温端部側に比べ、低温端部側では温度勾配が小さくなりやすい。例えば、コイルの高温端部側では $2^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 以上の温度勾配であっても、低温端部側などの一部領域は $2^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 未満の低温度勾配となることがある。そのため、 $2^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 以上の温度勾配をコイル全域に設けることは困難である。

このようなことから、コイル全域で十分な磁束密度の向上効果を得るため、より小さな温度勾配であっても、磁束密度向上効果が得られる方法が望まれていた。

[0010] 特許文献3では、 $0.5^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ の温度勾配を付与することによりB8特性の改善効果が認められると開示されている。しかしながら特許文献3において、顕著な効果が得られるのは $2^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 以上であると示されている。実際、温度勾配が $0.5^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ における、Si含有量が2.95%の方向性

電磁鋼板のB₈の値は、概ね1.92T程度であり、一定の磁束密度向上効果が得られているものの、近年の高度化した要求に対しては十分とは言えない。

[0011] 本発明は、上記の課題に鑑みてなされた。本発明は、一次再結晶領域と二次再結晶領域との境界領域に温度勾配を与えながら仕上げ焼鈍を施すことで、磁束密度の高い方向性電磁鋼板を製造する方向性電磁鋼板の製造方法であって、温度勾配が小さくても、十分な磁束密度向上効果が得られることにより、コイルの全域で安定して磁束密度が高い方向性電磁鋼板の製造方法を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

[0012] 本発明者らは、一次再結晶領域と二次再結晶領域との境界領域に温度勾配を与えながら仕上げ焼鈍を施す方法を前提として、温度勾配が比較的小さくても（温度勾配の大きな部位と温度勾配の小さな部位が生じる場合には、温度勾配の下限が小さくても）、十分な磁束密度の向上効果が得られる方法を検討した。

その結果、一次再結晶粒径を15 μ m以下にし、かつ、窒化処理工程により二次再結晶前の鋼板の窒素量を210ppm以上とすることで、温度勾配が比較的小さくても十分な磁束密度の向上効果が得られることを見出した。

[0013] 本発明は上記の知見に鑑みてなされた。本発明の要旨は以下の通りである。

[1] 本発明の一態様に係る方向性電磁鋼板の製造方法は、質量%で、Si:0.80~7.00%を含有する珪素鋼素材を、1300℃超の温度に加熱した後、熱間圧延して熱延板を得る熱間圧延工程と、前記熱延板を焼鈍する熱延板焼鈍工程と、前記熱間圧延工程後または前記熱延板焼鈍工程後の前記熱延板に、冷間圧延を施して最終板厚の鋼板とする冷間圧延工程と、前記冷間圧延工程後の前記鋼板を脱炭焼鈍して、一次再結晶粒径が15 μ m以下の鋼板を得る脱炭焼鈍工程と、前記脱炭焼鈍工程後の前記鋼板に焼鈍分離剤を塗布した後、コイル状に巻き取る焼鈍分離剤塗布工程と、前記鋼板の窒

素量を増加させる窒化処理工程と、コイル状に巻き取られた前記鋼板を仕上げ焼鈍する仕上げ焼鈍工程と、を備え、前記仕上げ焼鈍工程では、昇温過程と均熱過程とを有し、前記昇温過程の二次再結晶の開始から前記二次再結晶の完了までの間の少なくとも一時期において、一次再結晶領域と二次再結晶領域との境界領域に $0.5^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 以上の温度勾配を生じさせ、前記窒化処理工程は、前記脱炭焼鈍工程中、前記脱炭焼鈍工程と前記仕上げ焼鈍工程との間、または前記仕上げ焼鈍工程の前記昇温過程であって前記二次再結晶の開始まで、の少なくとも1つの段階で窒化能のあるガスを含有する雰囲気中で焼鈍することにより行われ、前記窒化処理工程後の前記鋼板の窒素量を質量基準で 210ppm 以上にする。

[2] [1]に記載の方向性電磁鋼板の製造方法は、前記珪素鋼素材の化学組成が、質量%で、Si: $0.80\sim 7.00\%$ 、C: 0.15% 以下、酸可溶性Al: $0.010\sim 0.065\%$ 、N: $0.004\sim 0.012\%$ 、Mn: $0.01\sim 0.50\%$ 、S及びSe: 合計で $0.01\sim 0.05\%$ 、Cr: $0\sim 0.30\%$ 、Cu: $0\sim 0.4\%$ 、P: $0\sim 0.5\%$ 、Ni: $0\sim 1.00\%$ 、を含有し、残部がFe及び不純物からなってもよい。

発明の効果

[0014] 本発明の上記態様によれば、一次再結晶領域と二次再結晶領域との境界領域に温度勾配を与えながら仕上げ焼鈍を施すことで、磁束密度の高い方向性電磁鋼板を製造する方向性電磁鋼板の製造方法であって、温度勾配が小さくても、十分な磁束密度向上効果が得られる方向性電磁鋼板の製造方法を提供することができる。

発明を実施するための形態

[0015] 以下、本発明の一実施形態に係る方向性電磁鋼板の製造方法（本実施形態に係る方向性電磁鋼板の製造方法）について説明する。

本実施形態に係る方向性電磁鋼板の製造方法は、

(i) 所定の化学組成を有する珪素鋼素材を、 1300°C 超の温度に加熱した後、熱間圧延して熱延板を得る熱間圧延工程と、

- (i i) 前記熱延板を焼鈍する熱延板焼鈍工程と、
 - (i i i) 前記熱間圧延工程後または前記熱延板焼鈍工程後の前記熱延板に、冷間圧延を施して最終板厚の鋼板とする冷間圧延工程と、
 - (i v) 前記冷間圧延工程後の前記鋼板を脱炭焼鈍して、一次再結晶粒径が $15\ \mu\text{m}$ 以下の鋼板を得る脱炭焼鈍工程と、
 - (v) 前記脱炭焼鈍工程後の前記鋼板に焼鈍分離剤を塗布した後、コイル状に巻き取る焼鈍分離剤塗布工程と、
 - (v i) 前記鋼板の窒素量を増加させる窒化処理工程と、
 - (v i i) コイル状に巻き取られた前記鋼板を仕上げ焼鈍する仕上げ焼鈍工程と、
- を備える。

以下、各工程の条件について説明する。

[0016] [熱間圧延工程]

熱間圧延工程では、後述する化学組成を有するスラブなどの珪素鋼素材を、 1300°C 超の温度に加熱した後に熱間圧延し、熱延板を得る。

加熱温度を 1300°C 超とすることで、インヒビターとして作用する析出物を完全に容体化させ、熱間圧延およびその後の焼鈍工程において微細析出させることで、脱炭焼鈍工程から仕上げ焼鈍工程までの粒成長を抑制できる。加熱温度は 1310°C 以上としてもよく、 1350°C 以上としてもよい。

加熱温度の上限は限定されないが、加熱温度を過度に高温化すると、二次再結晶不良により良好な磁気特性を得られない場合がある。そのため、加熱温度は 1450°C 以下とすることが好ましい。

加熱温度以外の熱延条件については限定されず、要求される特性等に応じて公知の範囲で決定すればよい。

[0017] また、熱間圧延に供する珪素鋼素材は、転炉または電気炉等により鋼を溶製し、必要に応じて溶鋼を真空脱ガス処理し、ついで連続鋳造もしくは造塊後分塊圧延することによって得られる。

この珪素鋼素材は、質量%で、 $\text{Si} : 0.80 \sim 7.00\%$ を含有する。

好ましくは、化学組成が、質量%で、Si : 0.80~7.00%、C : 0.15%以下、酸可溶性Al : 0.010~0.065%、N : 0.004~0.012%、Mn : 0.01~0.50%、S及びSe : 合計で0.01~0.05%、Cr : 0~0.30%、Cu : 0~0.4%、P : 0~0.5%、Ni : 0~1.00%を含有し、残部がFe及び不純物からなる化学組成を有する。

各元素の含有量の理由について説明する。以下、含有量に関する%は質量%である。

[0018] (Si : 0.80~7.00%)

Si含有量が0.80%未満であると、仕上げ焼鈍時に γ 変態が生じ、鋼板の結晶方位が損なわれてしまう。また、Siを含有することで電気抵抗が高くなり、鉄損特性が改善される。そのため、珪素鋼素材におけるSi含有量を0.80%以上とする。Si含有量は、好ましくは1.50%以上、より好ましくは2.00%以上、さらに好ましくは2.50%以上である。

一方、Si含有量が7.00%を超えると、冷間圧延が極めて困難となり、圧延時に割れてしまうおそれがある。そのため、Si含有量を7.00%以下とする。工業生産に適する範囲として、Si含有量を4.80%以下、または4.00%以下としてもよい。

[0019] (C : 0.15%以下)

Cは、一次再結晶組織を制御するうえで有効な元素であるが、磁気特性に悪影響を及ぼすので、仕上げ焼鈍前までに脱炭する必要がある。珪素鋼素材におけるC含有量が0.15%超であると、脱炭焼鈍時間が長くなり、工業生産における生産性が損なわれてしまう。そのため、C含有量を0.15%以下とすることが好ましい。C含有量はより好ましくは0.12%以下である。C含有量の下限値は、特に限定されないが、工業生産における生産性や製品の磁気特性を考慮した場合、C含有量は、0.02%以上であることが好ましく、0.03%以上であることがより好ましくは、0.05%以上であることがさらに好ましい。

[0020] (酸可溶性Al : 0.010~0.065%)

酸可溶性Al (sol. Al) は、Nと結合してAlN、または (Al, Si) Nとして、インヒビターとしての機能を果す元素である。二次再結晶が安定する範囲として、酸可溶性Al含有量を、0.010~0.065%とすることが好ましい。酸可溶性Al含有量は、0.040%以下、さらに、0.030%以下としてもよい。

[0021] (N : 0.004~0.012%)

Nは、Alと結合して、インヒビターとして機能する元素である。N含有量が0.004%未満であると、十分な量のインヒビターを得ることができない。このため、N含有量は0.004%以上とすることが好ましい。N含有量は0.006%以上であることがより好ましく、0.007%以上であることがさらに好ましい。

一方、N含有量が0.012%を超えると、冷間圧延時に鋼板中にブリスターと呼ばれる空孔が生じる場合があるので、N含有量を0.012%以下とすることが好ましい。

[0022] 珪素鋼素材の化学組成において、上記の元素を含み、残部はFe及び不純物であってもよい。一方、各種特性を向上させるため、さらに、以下に示す元素を含有させてもよい。

以下の元素は、後述する範囲であれば、不純物として含有されることも許容される。

[0023] (Mn : 0.01~0.50%)

Mnは、MnS、MnSeとなってインヒビターとして機能する元素である。Mn含有量が0.01%未満であると、十分な量のインヒビターを得ることができない。そのため、Mn含有量は0.01%以上とすることが好ましい。Mn含有量は0.03%以上であることがより好ましく、0.06%以上であることがさらに好ましい。

一方、Mn含有量が0.50%を超えると、珪素鋼素材の加熱時にMnの固溶が困難になるため好ましくない。また、Mn含有量が0.50%を超え

ると、インヒビターであるMnS、MnSeの析出サイズが粗大化し易く、インヒビターとしての最適サイズ分布が損なわれるため好ましくない。そのため、Mn含有量を0.50%以下とすることが好ましい。Mn含有量は、より好ましくは0.30%以下であり、さらに好ましくは0.28%以下である。

また、Mnは比抵抗を高めて鉄損を低減させる効果を有する元素である。また、Mnは、SやSeが原因となる熱間圧延における割れの発生を防止するために有効な元素である。割れ発生の防止のためには、Mn含有量を、S及びSeの総量との関係で $Mn / (S + Se) \geq 4$ を満足する範囲とすることが好ましい。

[0024] (S及びSe：合計で0.01～0.05%)

SおよびSeは上記Mnと共にインヒビターを形成する。SおよびSeの含有量が合計で0.01%未満である場合には、十分な量のインヒビターを得ることができない。そのため、SおよびSeの含有量の合計を0.01%以上とすることが好ましい。SおよびSeの含有量の合計は、0.02%以上であることがより好ましい。

一方、SおよびSeの含有量の合計が0.05%を超える場合には熱間脆性の原因となり圧延が著しく困難となる。そのため、SおよびSeの含有量の合計は0.05%以下とすることが好ましい。SおよびSeの含有量の合計は0.04%以下であることが好ましい。

[0025] (Cr：0～0.30%)

Crは、脱炭焼鈍の酸化層の組成や量を好ましい状態にするとともに、ガラス被膜の形成を促進する元素である。そのため、含有させてもよい。

一方、Cr含有量が0.30%を超えると、脱炭が阻害される。そのため、Cr含有量を0.30%以下とすることが好ましい。

[0026] (Cu：0～0.4%)

Cuは、比抵抗を高めて鉄損を低減させるために有効な元素である。そのため、含有させてもよい。

一方、Cu含有量が0.4%を超えると、鉄損低減効果が飽和するとともに、熱延時に「銅ヘゲ」なる表面疵の原因になる。そのため、Cu含有量を0.4%以下とすることが好ましい。

[0027] (P : 0~0.5%)

Pは、比抵抗を高めて鉄損を低減させるために有効な元素である。そのため、含有させてもよい。

一方、P含有量が0.5%を超えると、圧延性が低下する。そのため、P含有量を0.5%以下とすることが好ましい。

[0028] (Ni : 0~1.00%)

Niは、比抵抗を高めて鉄損を低減させるために有効な元素である。また、熱延板の金属組織を制御して磁気特性を向上させるうえで有効な元素である。そのため、含有させてもよい。

一方、Ni含有量が1.00%を超えると、二次再結晶が不安定になる。そのため、Ni含有量を1.00%以下とすることが好ましい。

[0029] 上述した元素の他に、不純物として、例えば、B、O、Mg、Ca、Ti、Mo、V、Nb、Sn、Sb、Biを、それぞれ0.10%以下含有してもよい。不純物とは、原料から、または製造工程で混入し、本実施形態に係る方向性電磁鋼板の製造方法によって得られる方向性電磁鋼板の特性に明確な影響を与えない元素をいう。

[0030] 珪素鋼素材の化学組成は公知の方法で測定すればよい。

例えば、ICP-AES (Inductively Coupled Plasma-Atomic Emission Spectrometry) を用いて測定すればよい。Alは、酸可溶性Alとして、試料を酸で加熱分解した後の濾液を用いてICP-AESによって測定すればよい。また、Siは二酸化けい素重量法を用い、CおよびSは燃焼-赤外線吸収法を用い、Nは不活性ガス融解-熱伝導度法を用いて測定すればよい。Oは不活性ガス融解-非分散型赤外線吸収法を用いて測定すればよい。

上記の化学組成は、母材としての珪素鋼板の成分である。測定試料となる

方向性電磁鋼板が、表面にガラス被膜や絶縁被膜等を有している場合は、これら被膜を公知の方法で除去してから化学組成を測定する。

[0031] [熱延板焼鈍工程]

熱間圧延工程後、熱間圧延によって得られた熱延板を、磁気特性を高めるために、焼鈍（熱延板焼鈍）する。熱延板焼鈍を行わない場合、十分な磁気特性が得られない。焼鈍条件は、例えば、900～1200℃で30秒～30分保持する条件とすればよい。焼鈍温度は、950～1050℃としてもよい。

[0032] [冷間圧延工程]

冷間圧延工程では、熱間圧延工程後、または熱延板焼鈍工程後の熱延板に、冷間圧延を施して最終板厚（方向性電磁鋼板となったときの板厚（ただし表面にガラス被膜や絶縁被膜が形成されている場合にはこれらを除いた母材鋼板の板厚））と同じ板厚の鋼板（冷延板）とする。冷間圧延は、一回の（間に中間焼鈍を挟まない一連の）冷間圧延または焼鈍（中間焼鈍）を介した複数の冷間圧延とすることができる。

冷間圧延としては、好ましい一次再結晶方位を発達させるため、最終圧下率を80%以上とすることが好ましい。最終圧下率とは、冷間圧延の累積圧下率であり、中間焼鈍を行う場合には、最終の中間焼鈍後の冷間圧延の累積圧下率である。

[0033] [脱炭焼鈍工程]

脱炭焼鈍工程では、冷間圧延工程後の鋼板を脱炭焼鈍する。

脱炭焼鈍では、鋼板を一次再結晶させるとともに、磁気特性に悪影響を及ぼすCを鋼板から除去する。本実施形態に係る方向性電磁鋼板の製造方法では、一次再結晶粒径（一次再結晶粒の粒径）を15μm以下とする。一次再結晶粒径は、13μm以下、さらに、10μm以下としてもよい。

温度勾配を与えることで、高磁束密度の鋼板を製造するためには、温度勾配に沿って、高温側から低温側に向かって磁気特性の良好な{110}<001>方位粒のみを優先成長させる必要があり、そのためには、その粒成長

を一次再結晶粒径、インヒビターにより適切に制御する必要がある。一次再結晶粒径（一次再結晶粒の粒径）を小さくすることにより、二次再結晶時の粒成長の駆動力が高まる。また、後述の窒化処理により、鋼板を窒化することによりインヒビターを熱的に安定にすることができる。一次再結晶粒径を $15\ \mu\text{m}$ 以下として駆動力を高め、かつ、窒化処理により鋼板の窒素量を質量基準で $210\ \text{ppm}$ (0.0210 質量%) 以上としてインヒビターを熱的に安定にすることにより、低温度勾配であっても、磁気特性の良好な $\{110\} \langle 001 \rangle$ 方位粒のみを優先成長させることが可能となる。

一次再結晶粒径を小さくするためには、上述した熱間圧延工程での珪素鋼素材の加熱温度を 1300°C 超とした上で、脱炭焼鈍工程で、焼鈍温度や時間を制御すればよい。脱炭焼鈍工程の焼鈍温度は限定されないが、例えば 700°C 以上 850°C 以下とすればよく、 750°C 以上、または 800°C 以下としてもよい。また、前記焼鈍温度における保持時間も限定されないが、 $10\sim 600$ 秒とすればよい。

[0034] 脱炭焼鈍工程後の一次再結晶粒径は、以下の方法で測定する。

脱炭焼鈍工程後、仕上げ焼鈍工程前の鋼板から試料を採取し、試料の、圧延方向に対して平行かつ板厚方向に平行な断面を、光学顕微鏡により観察し、断面の全厚での一次再結晶粒の平均粒径（円相当直径）を画像解析によって求め、その平均値を一次再結晶粒径とする。この時、1視野または複数視野の観察を行い、ばらつきを抑制するために、500個以上の粒を観察する。複数視野の観察を行う場合、鋼板の位置による一次再結晶粒径のばらつきの影響を抑制するため、直線距離で $50\ \text{mm}$ 以上離れた2か所以上の位置を観察することが望ましい。

[0035] [焼鈍分離剤塗布工程]

焼鈍分離剤塗布工程では、脱炭焼鈍工程後の鋼板に焼鈍分離剤を塗布した後、コイル状に巻き取る。

塗布する焼鈍分離剤は公知のものでよいが、マグネシアを主成分とするものが好ましい。マグネシアを主成分とする焼鈍分離剤を塗布して、続く仕上

げ焼鈍を行うことで、鋼板の表面にガラス被膜（フォルステライト被膜）が形成される。

[0036] [窒化処理工程]

窒化処理工程では、鋼板の窒素量を増加させる。窒化処理工程は、脱炭焼鈍工程中、脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程との間、または仕上げ焼鈍工程の開始から仕上げ焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶開始まで、の少なくとも1つの段階で行う。脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間とは、脱炭焼鈍工程の完了から仕上げ焼鈍工程の開始までの間のことである。窒化処理工程は、脱炭焼鈍工程の完了後で、焼鈍分離剤塗布工程の開始前に実施することが好ましい。

ただし、いずれの段階で行う場合でも、最終の窒化処理工程後の鋼板の窒素量を質量基準で210ppm（0.0210質量%）以上にする必要がある。二次再結晶開始前の鋼板の窒素量を高めることで、インヒビターの量が増え、インヒビターが熱的に安定になる。その結果、比較的小さな温度勾配であっても、十分な磁束密度向上効果が得られる。窒素量は、250ppm以上、さらに、300ppm以上とすることができる。一方、窒素量が350ppmを超えると磁束密度向上効果が飽和する場合があることに加え、二次再結晶後の純化に不利になる可能性も考えられるため窒素量は350ppm以下とすることが好ましい。

従来、温度勾配を与えて仕上げ焼鈍を行う場合、鋼板の窒素量については200ppm以下にすることが通常であった。例えば、特開昭59-215419号公報には、最終焼鈍の一次再結晶領域と二次再結晶域の境界領域に温度勾配を与えながら二次再結晶焼鈍するに際し、二次再結晶開始時に鋼板中の窒素含有量を130~200ppmとすることが開示されている。特開昭59-215419号公報では、窒素含有量180~200ppmで磁束密度向上効果は飽和すると記載されている。

また、従来、珪素鋼素材を高温加熱してMnS、MnSeをインヒビターとして活用する場合、窒化処理工程は通常実施されていなかった。

これに対し、本発明者らは、高温加熱の場合にも、一次再結晶粒径を15 μm 以下にし、かつ、窒素量を210 ppm以上に高めた場合に、高磁束密度（例えばB8が安定して1.940 T以上）を達成できる温度勾配の下限が従来よりも拡大する（温度勾配が0.5 $^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 程度でも高いB8が安定して得られる）ことを見出した。

[0037] 鋼板の窒素量を増加させる方法として、窒化能のあるガスを含有する雰囲気中で焼鈍して、鋼板の窒素量を制御する方法が例示される。

また、上記に加えて、さらに仕上げ焼鈍工程の昇温過程で、MnN等の窒化能のある粉末を焼鈍分離剤中に添加すること等により鋼板の窒素量を高めてもよい。

窒化処理後の鋼板の窒素量は、例えば堀場製作所製の酸素・窒素・水素分析装置（EMGA-930）やこれと同等の装置を用いて、公知の方法で測定できる。公知の方法としては、不活性ガス融解-熱伝導度法などの一般的な分析方法を用いることができる。製造過程で窒化処理工程後の鋼板から任意の大きさのサンプル試料を採取し、これらの装置・方法を用いて測定すればよい。

[0038] [仕上げ焼鈍工程]

仕上げ焼鈍工程では、コイル状に巻き取られた鋼板を仕上げ焼鈍する。

仕上げ焼鈍工程は、仕上げ焼鈍温度まで加熱して二次再結晶させる昇温過程と、前記鋼板を前記仕上げ焼鈍温度で保持する均熱過程とを有する。

[0039] <昇温過程>

この仕上げ焼鈍工程は、上述の窒化処理工程において、鋼板の窒素量が質量基準で210 ppm以上に制御された状態で、昇温過程における二次再結晶の開始から二次再結晶の完了までの間の少なくとも一時期において、一次再結晶領域と二次再結晶領域との境界領域に0.5 $^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 以上の温度勾配を生じさせ、二次再結晶によって{110} <001>方位粒を優先成長させる。上記以外の時期、例えば、仕上げ焼鈍前に温度勾配を付与しても同様の効果は得られない。

昇温速度は、上記の温度勾配を満足する昇温であれば問わないが、 $5\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{h}$ 以下であってもよい。

[0040] 仕上げ焼鈍においては、二次再結晶温度以上に加熱された部分において、二次再結晶粒が生じる。ある方向に温度勾配が存在する状態で鋼板を加熱すると、二次再結晶温度以上となった領域から二次再結晶が進行し、まだ二次再結晶温度に達していない一次再結晶組織のままの領域との間に、板厚方向にみた場合に一次再結晶粒と二次再結晶粒とが混在した領域（境界領域）が、等温線に沿って生じる。鋼板が加熱され、温度が高くなるにつれ、この境界領域が温度勾配に沿って一次再結晶組織のままの領域へ移動することで、二次再結晶組織となった領域が拡大し、最終的に鋼板全面が二次再結晶粒で覆われる。この過程を通じて、境界領域の温度は、比較的一定に保たれる。温度勾配の方向については、仕上げ焼鈍においては、コイル状の方向性電磁鋼板が、通常、円柱状になるように炉内に配置されることから、鋼板の幅方向に温度勾配を設けることが好ましい。幅方向に温度勾配を設ける場合、温度勾配は鋼板の幅方向全体に一方向に形成する（一方の端部が高温側端部となり、他方の端部が低温側端部となるようにする）。

[0041] 上述したように、コイル全域に $2.0\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 以上の温度勾配を与えるのは容易ではなく、生産性、鋼板内の特性のばらつき等が問題となるおそれがあるが、本実施形態に係る方向性電磁鋼板の製造方法では、二次再結晶の開始時点で、鋼板の窒素量が 210 ppm 以上である。そのため、インヒビターの量が増え、インヒビターが熱的に安定になることで、比較的小さな温度勾配であっても、十分な磁束密度向上効果が得られる。温度勾配にばらつきが生じる場合であれば、十分な磁束密度向上効果が得られる温度勾配の下限を小さくすることができる。ただし、温度勾配が $0.5\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 未満では、磁束密度向上効果が十分に得られない。そのため、温度勾配を $0.5\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 以上とする。コイルまたは鋼板の各部位で温度勾配にばらつきがある場合は、コイルまたは鋼板の全域における最小の温度勾配を $0.5\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 以上とする。温度勾配の上限を限定する必要はないが、温度勾配が $10.0\text{ }^{\circ}\text{C}/$

c mを超えても効果が飽和する上、設備負荷が増大するので、コイル全域の温度勾配は10.0℃/c m以下としてもよい。本願では比較的小さな温度勾配であっても十分な磁束密度向上効果が得られるため、コイル全域の温度勾配は5.0℃/c m以下、または、2.0℃/c m以下としてもよく、特に比較的均一に温度勾配を設ける場合などであれば、さらに1.5℃/c m以下、1.0℃/c m以下とすることができる。コイルまたは鋼板の各部位で温度勾配にばらつきがある場合は、コイルまたは鋼板の全域における最小の温度勾配を5.0℃/c m以下、または、2.0℃/c m以下としてもよく、さらに1.5℃/c m以下、1.0℃/c m以下とすることができる。

[0042] 温度勾配の付与に関し、境界領域となる位置の温度は、鋼板の種類や焼鈍条件によって一定ではないが、事前実験等で、想定される鋼板の種類、焼鈍条件で、二次再結晶が生じる温度を確認しておくことで、境界領域の温度を知ることができる。そのため、このようにして調べた境界領域の温度付近の温度となっている位置において、温度勾配を与えることで、一次再結晶領域と二次再結晶領域との境界領域に温度勾配を与えることができる。例えば、MnSとAlNとをインヒビターとするSi含有量が3質量%程度の鋼板の場合、境界領域の温度は900~1100℃程度となる。

境界領域が明確でないときは、それより広い範囲、またはコイル（鋼板）の全体に対して、温度勾配を与えてもよい。

また、二次再結晶粒の生成から成長のうち、少なくとも一時期において境界領域に温度勾配を与えることで、効果は得られるが、十分な効果を得るためには、二次再結晶の開始から鋼板全面が二次再結晶粒で覆われるまで（二次再結晶の完了まで）、境界領域に温度勾配を与えることが好ましい。すなわち、仕上げ焼鈍の昇温過程の最初から最後まで（均熱温度に達するまで）温度勾配が生じるようにしてもよい。

[0043] 温度勾配は、炉内に温度差をつけて昇温する、あるいはコイル端部を加熱及び／または冷却することで仕上げ焼鈍炉内においてコイル内に温度差をつけて昇温することにより付与できる。温度勾配の大きさについては、例えば

コイルの幅方向に温度勾配を与えるのであれば、その幅方向に一定の間隔（温度勾配が測定できる間隔、例えば100mm間隔）で、熱電対などのセンサを配置して温度履歴を測定することにより、鋼板内の各部位の温度勾配を算出することができる。また、各部位の温度勾配を算出することにより、コイル全体（全域）における温度勾配の最小値を得ることができる。

また、温度勾配は、炉の大きさ、炉内の温度差、コイルのサイズや重量、等によって変化する。その場合には、上記に記載したように実際にコイルの複数部位の温度履歴を測定した結果を用いて熱拡散率などの物性値を算出し、例えば、炉壁温度を境界条件として与えて、公知の伝熱計算ソフトANSYS社製Fluent（登録商標）などを用いたシミュレーションによりコイルの各部位の温度勾配を算出してもよい。シミュレーションでは、各種条件を設定することにより、温度勾配のばらつきを加味したコイルの各部位（例えばコイルの幅方向の任意の100mm間隔の範囲）の温度勾配を算出することができる。各部位の温度勾配を算出することにより、コイル全体における温度勾配の最小値を得ることができる。

[0044] また、コイルの半径方向で温度勾配に差異が生じる場合は、コイル半径方向の複数の箇所において、その幅方向に一定の間隔（温度勾配の差異が測定できる間隔、例えば100mm間隔）で熱電対などのセンサを配置して、それぞれの箇所の幅方向の温度履歴を測定することにより半径方向の温度勾配の差異を算出することができる。コイル半径方向の各々の測定箇所において算出した温度勾配より、コイル全体の温度勾配の最小値を得ることができる。コイル半径方向における温度履歴の測定箇所は、例えばコイルの幅方向に温度勾配を与える場合は、コイルの最外側に位置する鋼板、コイルの半径方向中間部に位置する鋼板、最内側に位置する鋼板の各々においてコイル長手方向の1箇所以上を測定箇所とし、合計3箇所以上とすることができる。同様に、シミュレーションによりコイル半径方向の複数の箇所（例えばコイル半径方向に幅100mm間隔の各位置、または、コイル半径方向の最外側、中間部、最内側の各位置）における幅方向の温度勾配を算出することもでき

る。

コイル内で温度勾配のばらつきが生じる場合には、温度勾配は、コイルの低温端部側で比較的小さくなりやすく、さらにコイルの半径方向最内側の位置において比較的小さくなりやすい。そのため、コイルの低温端部側かつ半径方向最内側の位置で測定またはシミュレーションで算出した温度勾配を、コイル全体の最小の温度勾配としてもよい。

[0045] <均熱過程>

均熱過程では、N、S、S_eなどの磁気特性に害を及ぼす不純物を純化する。このため、仕上げ焼鈍温度（均熱温度）は、1150～1250℃であることが好ましい。また、焼鈍時間（均熱時間）は、コイルの温度勾配の低温側が均熱温度に到達してから10～30時間であることが好ましい。

[0046] [絶縁被膜形成工程]

本実施形態に係る方向性電磁鋼板の製造方法では、さらに、上記の鋼板に対し、表面に絶縁被膜を形成する絶縁被膜形成工程を含んでもよい。形成される絶縁被膜については限定されず、公知の被膜でよい。

[0047] [磁区細分化工程]

本実施形態に係る方向性電磁鋼板の製造方法では、さらに、上記鋼板に対し、磁区細分化を行う磁区細分化工程を含んでもよい。

磁区細分化処理を行うことで、方向性電磁鋼板の鉄損をより低減させることができる。

磁区細分化処理の方法は限定されないが、圧延方向に交差する方向に延びる線状、または点状の溝部を、圧延方向に沿って所定間隔で形成することにより、180°磁区の幅を狭くする（180°磁区の細分化を行う）方法や、圧延方向に交差する方向に延びる線状、または点状の応力歪部や溝部を、圧延方向に沿って所定間隔で形成することにより、180°磁区の幅を狭くする（180°磁区の細分化を行う）方法がある。

応力歪部を形成する場合には、レーザービーム照射、電子線照射などが適用できる。また、溝部を形成する場合には、歯車などによる機械的溝形成法、

電解エッチングによる化学的溝形成法、および、レーザ照射による熱的溝形成法などが適用できる。

応力歪部や溝部の形成によって絶縁被膜に損傷が発生して絶縁性等の特性が劣化するような場合には、再度絶縁被膜を形成して損傷を補修してもよい。

実施例

[0048] <実施例 1>

鑄造によって、質量%で、Si : 3.30%、C : 0.08%、酸可溶性 Al : 0.027%、N : 0.008%、Mn : 0.08%、S + Se : 0.02%を含有し、残部がFeおよび不純物元素からなる珪素鋼素材を得る。

この珪素鋼素材を1280~1400℃に加熱して1時間保持した後、熱間圧延を施し、板厚2.3mmの熱延板を作成する。

No. 7を除く、熱延板に対し、1000℃に加熱し、60秒の焼鈍（熱延板焼鈍）を実施する。

この熱延板に、0.22mmの厚さになるまで冷間圧延を施し、鋼板（冷延板）を得る。この鋼板から、圧延方向に200mm、幅方向に600mmの試料鋼板を切り出す。

その後、この試料鋼板に対し750~900℃で100秒の保持を行う脱炭焼鈍を行い、一次再結晶粒径が5~20 μ mとなるように制御する。（一次再結晶粒径は脱炭焼鈍工程後、仕上げ焼鈍前に測定する。）また、この脱炭焼鈍工程の昇温及び均熱過程、あるいは、脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間、あるいは仕上げ焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始までの間、の少なくともいずれか一つのタイミングで窒化処理を施し、最終の窒化処理工程後の窒素量が160~380ppmとなるように制御する。表において、例えば、“脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間”とは、“脱炭焼鈍工程完了~仕上げ焼鈍工程の開始”に窒化処理を1回実施することを示し、“脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と仕上げ焼鈍工程の昇温過程であって二

次再結晶の開始まで“とは窒化処理を“脱炭焼鈍工程完了～仕上げ焼鈍工程の開始”と、“仕上げ焼鈍工程の開始～仕上げ焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで”、の2回実施することを示す。

脱炭焼鈍後の鋼板にMgOを主成分とする焼鈍分離剤を塗布した後、鋼板端部が高温となるようにして、圧延方向と直角方向（幅方向）の全域において0～5.0℃/cmの温度勾配を与えながら仕上げ焼鈍を施し、二次再結晶を生じさせる。境界領域での二次再結晶の開始から二次再結晶の完了までの平均昇温速度は、10℃/hrとし、仕上げ焼鈍温度は、1200℃とし、均熱時間は30時間とする。

温度勾配は、試料鋼板の全域において均一に付与する。温度勾配は、炉内に温度差をつけて昇温することで付与する。温度勾配の大きさについては、鋼板の幅方向に100mm間隔で温度を測定しながら、昇温することで制御する。

[0049] 得られた鋼板から幅方向に60mm、圧延方向に200mmのサンプルを採取し、このサンプルに対し、SST法（JISC2556：2015附属書JAを参照）にて磁気測定を行い、圧延方向の磁束密度B8を測定する。

結果を表1-1～表1-3に示す。

[0050]

[表1-1]

試料 No.	熱間圧延工程		熱延板焼鈍工程		脱炭焼鈍工程			窒化処理工程		仕上げ焼鈍工程		備考
	加熱温度 (°C)	焼鈍温度 (°C)	保持時間 (秒)	焼鈍温度 (°C)	保持時間 (秒)	一次再結晶粒径 (μm)	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	脱炭焼鈍工程	窒化処理後の窒素量 (ppm)	温度勾配 (°C/cm)	磁束密度 B8 (T)	
1	1350	1000	60	750	100	10	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	脱炭焼鈍工程	210	1.5	1.956	発明例
2	1350	1000	60	750	100	10	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と仕上げ焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	脱炭焼鈍工程	210	1.5	1.956	発明例
3	1350	1000	60	750	100	10	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と仕上げ焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と脱炭焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	210	1.5	1.956	発明例
4	1350	1000	60	750	100	10	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と脱炭焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と脱炭焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	210	1.5	1.956	発明例
5	1350	1000	60	750	100	10	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と脱炭焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と脱炭焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	210	1.5	1.956	発明例
6	1350	1000	60	750	100	10	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と脱炭焼鈍工程の間	脱炭焼鈍工程	210	1.5	1.956	発明例
7	1350	-	-	750	100	10	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	1.5	1.600	比較例
8	1280	1000	60	750	100	10	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	1.5	1.800	比較例
9	1310	1000	60	700	100	5	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	0.0	1.920	比較例
10	1310	1000	60	700	100	5	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	0.5	1.947	発明例
11	1310	1000	60	700	100	5	脱炭焼鈍工程	脱炭焼鈍工程	210	0.5	1.947	発明例
12	1310	1000	60	700	100	5	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と仕上げ焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と仕上げ焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	210	0.5	1.947	発明例
13	1310	1000	60	700	100	5	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と脱炭焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と脱炭焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	210	0.5	1.947	発明例
14	1310	1000	60	700	100	5	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と脱炭焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と脱炭焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	210	0.5	1.947	発明例
15	1310	1000	60	700	100	5	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と脱炭焼鈍工程の間	脱炭焼鈍工程	210	0.5	1.947	発明例
16	1310	1000	60	700	100	5	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	1.0	1.954	発明例

[0051]

[表1-2]

試料 No.	熱延工程		熱延板焼鈍工程		脱炭焼鈍工程			窒化処理工程		仕上げ焼鈍工程		備考
	加熱温度 (°C)	保持時間 (秒)	焼鈍温度 (°C)	保持時間 (秒)	焼鈍温度 (°C)	保持時間 (秒)	一次再結晶粒径 (μm)	窒化処理後の窒素量 (ppm)	窒化処理後の窒素量 (ppm)	昇温過程温度勾配 (°C/cm)	磁束密度 B8 (T)	
17	1310	1000	60	700	100	5						脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間
18	1400	1000	60	750	100	10		脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	0.0	1.920	比較例
19	1400	1000	60	750	100	10		脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	0.5	1.945	発明例
20	1400	1000	60	750	100	10		脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	1.0	1.952	発明例
21	1400	1000	60	750	100	10		脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	1.5	1.956	発明例
22	1350	1000	60	800	100	15		脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	0.0	1.920	比較例
23	1350	1000	60	800	100	15		脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	0.5	1.940	発明例
24	1350	1000	60	800	100	15		脱炭焼鈍工程中	210	0.5	1.940	発明例
25	1350	1000	60	800	100	15		脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と仕上げ焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	210	0.5	1.940	発明例
26	1350	1000	60	800	100	15		脱炭焼鈍工程中と仕上げ焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	210	0.5	1.940	発明例
27	1350	1000	60	800	100	15		脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と脱炭焼鈍工程中と仕上げ焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	210	0.5	1.940	発明例
28	1350	1000	60	800	100	15		脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と脱炭焼鈍工程中	210	0.5	1.940	発明例
29	1350	1000	60	800	100	15		脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	1.0	1.948	発明例
30	1350	1000	60	800	100	15		脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	1.5	1.953	発明例
31	1350	1000	60	800	100	15		脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	2.0	1.956	発明例
32	1350	1000	60	800	100	15		脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	5.0	1.959	発明例
33	1350	1000	60	850	100	20		脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	0.0	1.920	比較例
34	1350	1000	60	850	100	20		脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	0.5	1.923	比較例
35	1350	1000	60	850	100	20		脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	1.0	1.930	比較例
36	1350	1000	60	850	100	20		脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	210	1.5	1.937	比較例
37	1350	1000	60	750	100	10		脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	160	0.0	1.920	比較例

[0052]

[表1-3]

試料 No.	熱間圧延工程		熱延板焼鈍工程		脱炭焼鈍工程			窒化処理工程		仕上げ焼鈍工程		備考
	加熱温度 (°C)	保持時間 (秒)	焼鈍温度 (°C)	保持時間 (秒)	焼鈍温度 (°C)	保持時間 (秒)	一次再結晶粒径 (μm)	窒化処理後の窒素量 (ppm)	窒化処理工程と仕上げ焼鈍工程の間	昇温過程の温度勾配 (°C/cm)	磁束密度 B8 (T)	
38	1350	1000	1000	60	750	100	10					160
39	1350	1000	1000	60	750	100	10	160	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	1.0	1.932	比較例
40	1350	1000	1000	60	750	100	10	160	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	1.5	1.938	比較例
41	1350	1000	1000	60	750	100	10	300	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	0.0	1.920	比較例
42	1350	1000	1000	60	750	100	10	300	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	0.5	1.949	発明例
43	1350	1000	1000	60	750	100	10	300	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	1.0	1.955	発明例
44	1350	1000	1000	60	750	100	10	300	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	1.5	1.957	発明例
45	1350	1000	1000	60	750	100	10	350	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	0.0	1.920	比較例
46	1350	1000	1000	60	750	100	10	350	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	0.5	1.950	発明例
47	1350	1000	1000	60	750	100	10	350	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	1.0	1.956	発明例
48	1350	1000	1000	60	750	100	10	350	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	1.5	1.957	発明例
49	1350	1000	1000	60	750	100	10	380	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	0.0	1.920	比較例
50	1350	1000	1000	60	750	100	10	380	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	0.5	1.950	発明例
51	1350	1000	1000	60	750	100	10	380	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	1.0	1.956	発明例
52	1350	1000	1000	60	750	100	10	380	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	1.5	1.957	発明例
53	1350	1000	1000	60	750	100	10	210	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間	0.4	1.939	比較例
54	1350	1000	1000	60	750	100	10	210	脱炭焼鈍工程 脱炭焼鈍工程中	0.4	1.939	比較例
55	1350	1000	1000	60	750	100	10	210	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と仕上げ焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	0.4	1.939	比較例
56	1350	1000	1000	60	750	100	10	210	脱炭焼鈍工程中と仕上げ焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	0.4	1.939	比較例
57	1350	1000	1000	60	750	100	10	210	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と脱炭焼鈍工程中と仕上げ焼鈍工程の昇温過程であって二次再結晶の開始まで	0.4	1.939	比較例
58	1350	1000	1000	60	750	100	10	210	脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間と脱炭焼鈍工程中	0.4	1.939	比較例

[0053] 表1-1~表1-3から分かるように、仕上げ焼鈍時の温度勾配が0.5 °C/cm以上の範囲において、窒化処理の回数、タイミングによらず、窒化

処理後の窒素量が210ppm以上かつ、一次再結晶粒径が15 μ m以下であれば、高磁束密度（磁束密度B₈が1.940T以上）を達成可能である。

[0054] <実施例2>

鑄造によって、表2に示す化学組成（単位は質量%、残部がFeおよび不純物）からなる珪素鋼素材（スラブ）を得る。

この珪素鋼素材を1350℃に加熱して1時間保持した後、熱間圧延を施し、板厚2.3mmの熱延板を作成する。

この熱延板に対し、焼鈍温度が950～1100℃で30～120秒保持の熱延板焼鈍を実施する。

熱延板焼鈍後の熱延板に、0.22mmの厚さになるまで冷間圧延を施し、鋼板（冷延板）を得る。この鋼板から、圧延方向に200mm、幅方向に600mmの試料鋼板を切り出す。

その後、この試料鋼板に対し脱炭焼鈍を行い、一次再結晶粒径が10 μ mとなるように制御する。脱炭焼鈍条件は、750～800℃の焼鈍温度で保持時間を50～200秒とする。脱炭焼鈍工程と仕上げ焼鈍工程の間で窒化処理を施し、窒素量が210ppmとなるように制御する。窒化処理は、脱炭焼鈍工程完了から仕上げ焼鈍工程の開始までの間に1回実施する。

脱炭焼鈍後の鋼板にMgOを主成分とする焼鈍分離剤を塗布した後、鋼板端部が高温となるようにして、圧延方向と直角方向（幅方向）の全域において0.5℃/cmの温度勾配を与えながら仕上げ焼鈍を施し、二次再結晶を生じさせる。仕上げ焼鈍温度は、1150～1250℃とし、均熱時間は10～30時間とする。温度勾配は、試料鋼板の全域において均一に付与する。温度勾配は、炉内に温度差をつけて昇温することで付与する。温度勾配の大きさについては、鋼板の幅方向に100mm間隔で温度を測定しながら、昇温することで制御する。

[0055] 得られた鋼板から幅方向に60mm、圧延方向に200mmのサンプルを採取し、このサンプルに対し、SST法（JISC2556：2015附属

書 J A を参照) にて磁気測定を行い、圧延方向の磁束密度 B 8 を測定する。
結果を表 2 に示す。

[0056] [表2]

試料 No	化学組成(質量%) 残部:Fe及び不純物											磁束密度B8 (T)	備考
	Si	C	sol.Al	N	Mn	S+Se	Cr	Cu	P	Ni			
59	3.30	0.08	0.027	0.008	0.08	0.02	-	-	-	-	-	1.945	発明例
60	2.70	0.06	0.027	0.008	0.08	0.02	-	-	-	-	-	1.950	発明例
61	4.00	0.12	0.027	0.008	0.08	0.02	-	-	-	-	-	1.940	発明例
62	4.80	0.14	0.027	0.008	0.08	0.02	-	-	-	-	-	1.940	発明例
63	2.70	0.03	0.027	0.008	0.08	0.02	-	-	-	-	-	1.946	発明例
64	3.80	0.15	0.027	0.008	0.08	0.02	-	-	-	-	-	1.942	発明例
65	3.30	0.08	0.015	0.004	0.08	0.02	-	-	-	-	-	1.940	発明例
66	3.30	0.08	0.020	0.006	0.08	0.02	-	-	-	-	-	1.943	発明例
67	3.30	0.08	0.040	0.012	0.08	0.02	-	-	-	-	-	1.941	発明例
68	3.20	0.08	0.027	0.008	0.25	0.05	-	-	-	-	-	1.945	発明例
69	3.00	0.08	0.027	0.008	0.40	0.05	-	-	-	-	-	1.944	発明例
70	3.20	0.08	0.027	0.008	0.04	0.01	-	-	-	-	-	1.944	発明例
71	3.30	0.08	0.027	0.008	0.08	0.02	0.15	-	-	-	-	1.945	発明例
72	3.10	0.05	0.027	0.008	0.08	0.02	0.25	-	-	-	-	1.943	発明例
73	3.30	0.08	0.027	0.008	0.08	0.02	-	0.2	-	-	-	1.944	発明例
74	3.10	0.08	0.027	0.008	0.08	0.02	-	0.4	-	-	-	1.943	発明例
75	3.20	0.08	0.027	0.008	0.08	0.02	-	-	0.2	-	-	1.943	発明例
76	3.20	0.08	0.027	0.008	0.08	0.02	-	-	0.4	-	-	1.941	発明例
77	3.20	0.08	0.027	0.008	0.08	0.02	-	-	-	0.20	-	1.943	発明例
78	3.00	0.08	0.027	0.008	0.08	0.02	-	-	-	0.75	-	1.940	発明例

[0057] 表 2 から分かるように、いずれの化学組成を有する場合でも優れた磁束密

度B8が得られる。

産業上の利用可能性

[0058] 本発明によれば一次再結晶領域と二次再結晶領域との境界領域に温度勾配を与えながら仕上げ焼鈍を施すことで、磁束密度の高い方向性電磁鋼板を製造する方向性電磁鋼板の製造方法であって、温度勾配が小さくても、十分な磁束密度向上効果が得られる方向性電磁鋼板の製造方法を提供することができる。そのため、本発明は、産業上の利用可能性が高い。

請求の範囲

- [請求項1] 質量%で、Si : 0.80~7.00%を含有する珪素鋼素材を、1300℃超の温度に加熱した後、熱間圧延して熱延板を得る熱間圧延工程と、
- 前記熱延板を焼鈍する熱延板焼鈍工程と、
- 前記熱間圧延工程後または前記熱延板焼鈍工程後の前記熱延板に、冷間圧延を施して最終板厚の鋼板とする冷間圧延工程と、
- 前記冷間圧延工程後の前記鋼板を脱炭焼鈍して、一次再結晶粒径が15 μm以下の鋼板を得る脱炭焼鈍工程と、
- 前記脱炭焼鈍工程後の前記鋼板に焼鈍分離剤を塗布した後、コイル状に巻き取る焼鈍分離剤塗布工程と、
- 前記鋼板の窒素量を増加させる窒化処理工程と、
- コイル状に巻き取られた前記鋼板を仕上げ焼鈍する仕上げ焼鈍工程と、
- を備え、
- 前記仕上げ焼鈍工程では、昇温過程と均熱過程とを有し、前記昇温過程の二次再結晶の開始から前記二次再結晶の完了までの間の少なくとも一時期において、一次再結晶領域と二次再結晶領域との境界領域に0.5℃/cm以上の温度勾配を生じさせ、
- 前記窒化処理工程は、前記脱炭焼鈍工程中、前記脱炭焼鈍工程と前記仕上げ焼鈍工程との間、または前記仕上げ焼鈍工程の前記昇温過程であって前記二次再結晶の開始まで、の少なくとも1つの段階で窒化能のあるガスを含有する雰囲気中で焼鈍することにより行われ、前記窒化処理工程後の前記鋼板の窒素量を質量基準で210ppm以上に
- する、
- ことを特徴とする方向性電磁鋼板の製造方法。
- [請求項2] 前記珪素鋼素材の化学組成が、質量%で、Si : 0.80~7.00%、C : 0.15%以下、酸可溶性Al : 0.010~0.065

%、N：0.004～0.012%、Mn：0.01～0.50%、
S及びSe：合計で0.01～0.05%、Cr：0～0.30%、
Cu：0～0.4%、P：0～0.5%、Ni：0～1.00%、を
含有し、残部がFe及び不純物からなる、
ことを特徴とする、請求項1に記載の方向性電磁鋼板の製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/001266

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<i>C21D 8/12</i> (2006.01)i; <i>C22C 38/00</i> (2006.01)i; <i>C22C 38/60</i> (2006.01)i FI: C21D8/12 B; C22C38/00 303U; C22C38/60		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C21D8/12; C21D9/46; C22C38/00-C22C38/60		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2024 Registered utility model specifications of Japan 1996-2024 Published registered utility model applications of Japan 1994-2024		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2021-123755 A (NIPPON STEEL CORPORATION) 30 August 2021 (2021-08-30) claims, paragraphs [0201]-[0293], [0305]-[0309], example C	1-2
X	WO 2020/027219 A1 (NIPPON STEEL CORPORATION) 06 February 2020 (2020-02-06) claims, paragraphs [0161]-[0250], [0261]-[0265], example 3	1-2
X	JP 2001-152250 A (NIPPON STEEL CORPORATION) 05 June 2001 (2001-06-05) claims, paragraphs [0038]-[0041], examples 1-3, 5	1-2
Y		1-2
Y	JP 5-311242 A (NIPPON STEEL CORPORATION) 22 November 1993 (1993-11-22) claims, paragraphs [0007]-[0016], [0019], examples	1-2
A	JP 2000-129354 A (KAWASAKI STEEL CORP.) 09 May 2000 (2000-05-09) entire text, all drawings	1-2
A	KR 10-2020-0076515 A (POSCO) 29 June 2020 (2020-06-29) entire text	1-2
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "D" document cited by the applicant in the international application "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 29 March 2024		Date of mailing of the international search report 09 April 2024
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No. PCT/JP2024/001266

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2021-123755 A	30 August 2021	(Family: none)	
WO 2020/027219 A1	06 February 2020	US 2022/0372589 A1 claims, paragraphs [0303]-[0419], [0431]-[0433], example 3 EP 3831977 A1 CN 112513305 A KR 10-2021-0024076 A BR 112021000333 A2 RU 2764622 C1	
JP 2001-152250 A	05 June 2001	US 2002/0007870 A1 claims, paragraphs [0079]-[0085], examples 1-3, 5 EP 1162280 A2 CN 1329176 A KR 10-2001-0110192 A	
JP 5-311242 A	22 November 1993	(Family: none)	
JP 2000-129354 A	09 May 2000	(Family: none)	
KR 10-2020-0076515 A	29 June 2020	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C21D 8/12(2006.01)i; C22C 38/00(2006.01)i; C22C 38/60(2006.01)i FI: C21D8/12 B; C22C38/00 303U; C22C38/60		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） C21D8/12; C21D9/46; C22C38/00-C22C38/60 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2024年 日本国実用新案登録公報 1996-2024年 日本国登録実用新案公報 1994-2024年		
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2021-123755 A (日本製鉄株式会社) 30.08.2021 (2021-08-30) 特許請求の範囲, 0201-0293, 0305-0309, 実施例C	1-2
X	WO 2020/027219 A1 (日本製鉄株式会社) 06.02.2020 (2020-02-06) 請求の範囲, 0161-0250, 0261-0265, 実施例3	1-2
X	JP 2001-152250 A (新日本製鉄株式会社) 05.06.2001 (2001-06-05) 特許請求の範囲, 0038-0041, 実施例1-実施例3, 実施例5	1-2
Y		1-2
Y	JP 5-311242 A (新日本製鉄株式会社) 22.11.1993 (1993-11-22) 特許請求の範囲, 0007-0016, 0019, 実施例	1-2
A	JP 2000-129354 A (川崎製鉄株式会社) 09.05.2000 (2000-05-09) 全文, 全図	1-2
A	KR 10-2020-0076515 A (POSCO) 29.06.2020 (2020-06-29) 全文	1-2
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの “D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献 “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 29.03.2024	国際調査報告の発送日 09.04.2024	
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 鈴木 葉子 4K 3557 電話番号 03-3581-1101 内線 3435	

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2024/001266

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2021-123755 A	30.08.2021	(ファミリーなし)	
WO 2020/027219 A1	06.02.2020	US 2022/0372589 A1 請求の範囲, 0303-0419, 0431-0433, 実施例3 EP 3831977 A1 CN 112513305 A KR 10-2021-0024076 A BR 112021000333 A2 RU 2764622 C1	
JP 2001-152250 A	05.06.2001	US 2002/0007870 A1 請求の範囲, 0079-0085, 実施例1-実施例3, 実施例5 EP 1162280 A2 CN 1329176 A KR 10-2001-0110192 A	
JP 5-311242 A	22.11.1993	(ファミリーなし)	
JP 2000-129354 A	09.05.2000	(ファミリーなし)	
KR 10-2020-0076515 A	29.06.2020	(ファミリーなし)	