非晶質強磁性合金 ($\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$, $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$) の等温焼鈍による 高周波磁化特性の変化*

宮 崎 照 宣** 宮 原 鉄 洲***
渡 部 明 夫**** 高 橋 実**

J. Japan Inst. Metals, Vol. 45, No. 4 (1981), pp. 395~404

Change in High Frequency Magnetic Properties with Isothermal Annealing in Amorphous Ferromagnetic $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ and $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ Alloys

Terunobu Miyazaki**, Tesshu Miyahara***, Akio Watanabe****
and Minoru Takahashi**

Effects of isothermal annealing (200~470°C, 30~420 min) on permeability and core loss in the frequency range between 0.5 and 200 kHz have been studied for rapidly quenched amorphous $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ and $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ alloys. The results obtained are summarized as follows:

(1) μ' vs H curves measured show two maxima above 0.5 kHz in the as-prepared samples, and above several kHz in the annealed samples.

(2) Permeabilities measured at $H=4$ A/m, $f=1$ kHz in the as-prepared $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ and $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ samples are $(0.4\sim1) \times 4\pi \times 10^{-4}$ H/m and $(0.7\sim1.5) \times 4\pi \times 10^{-4}$ H/m, respectively.

(3) Core losses measured at $B_m=0.1$ T, $f=1$ kHz in the as-prepared $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ and $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ samples are 3~6 J/m³ and 4~6 J/m³, respectively.

(4) The optimum annealing condition to improve initial permeability and to decrease a core loss is annealing at 300~350°C for $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ alloy and at 400~470°C for $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ alloy for several tens of min.

(5) After annealing in the above condition, μ' (4 A/m) increases 3~4 times and the core loss decreases to approximately one-half those of the as-prepared samples for both alloys.

On the assumption that soft and hard magnetic regions exist in the as-prepared amorphous samples, the two maxima in μ' vs H curve and also the anomaly in $\ln W$ vs $\ln B_m$ can be explained.

About 85~90% of the core loss measured is the eddy current loss. If we assume that the number of domain wall increases with increasing the frequency, the frequency dependence of eddy current loss can be explained by the plane wall model proposed by Pry and Bean.

(Received October 3, 1980)

I. 緒 言

液体急冷法により、リボン状の非晶質強磁性合金の作製が容易になり、しかもそれらの合金が軟磁化特性を示すことが分って以来⁽¹⁾、非晶質強磁性合金を軟磁性材料として開発しようとする数多くの研究が行われてきた。なお非晶質強磁性合金の応用開発対象を大別してみると、(i) 磁気ヘッド、スイッチングレギュレータ、磁気増幅器等の電子部品材料^{(2)~(9)}、(ii) 電力変圧器用鉄芯材料^{(10)~(15)}に分類

できる。前者の用途に属する材料に要求される磁化特性は数 kHz~数 10 kHz における初透磁率が $10^3\sim10^4$ と大きく、飽和磁束密度、 B_s が約 0.8~1.5 T でコア損失が小さいことである⁽¹⁶⁾。一方後者の材料に要求される磁化特性は珪素鋼をしのぐために B_s が約 1.6 T 以上で、 $f=50$ Hz における鉄損の値が 1~2 W/kg 以下であることが望まれている⁽¹³⁾。一般に液体急冷法により作製される非晶質合金は約 20 at% の非磁性原子を含んでいるため常温における B_s の値は 1.6 T 以下である。従ってこれまでに (ii) を

** 東北大学工学部応用物理学科 (Department of Applied Physics, Faculty of Engineering, Tohoku University, Sendai)

*** 東北大学工学部、現在：川村理化学研究所 (Faculty of Engineering, Tohoku University, Sendai. Present address: Kawamura Institute of Physical Research, Urawa)

**** 東北大学工学部、現在：東京電気化学工業株式会社千曲川工場 (Faculty of Engineering, Tohoku University, Sendai. Present address: Chikumagawa Plant, TDK Electronics Co., Ltd., Saku)

* 1976 年 10 月日本金属学会仙台大会に発表

対象とした研究は(i)のそれに較べて少ない。一方(i)に属する研究対象の大部分は磁気ヘッドへの適用を考えていたため^{(5)~(7)}、初透磁率に関する研究が多く、コア損失に関する主な報告はO'Handley⁽⁸⁾およびLuborsky⁽⁹⁾らの非晶質 $\text{Fe}_{80}\text{P}_{20}$ および Fe-Ni-P-B 系合金についてであり、ほとんど他に見るべき報告がない。しかもこれらの報告においても損失に関する系統的な実験は行われていないうえにその機構に関しても何らふれていない。

本研究では先に報告した⁽¹⁷⁾ 代表的な非晶質合金 $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ および $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ の熱処理による静的な磁化特性の変化に続いて、熱処理による高周波損失の変化についてしるべ、その機構に関して簡単な検討を加えたので以下に報告する。

II. 試料ならびに実験方法

非晶質合金試料の作製は液体急冷法(片ロール法)により行った。詳細については既に報告⁽¹⁷⁾したのでここではこれを省略する。得られた各試料の形状は $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ および $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ 合金とも幅約 2 mm, 厚さ数 10 μm , 長さ数 m のリボン状であった。

これらのリボンから、長さ 0.5~1 m に切りとったものを内径 8 mm, 外径 12 mm, 幅約 3 mm の石英管に 10~20 層巻き付けた。この場合各層間には Al_2O_3 の粉末をエチルアルコールでといたものを塗付して各層間の絶縁を施した。次にこれに内径 13 mm, 外径 16 mm, 幅約 3 mm の石英管をかぶせ、内枠と外枠の両枠を市販の高温用接着剤、ザワライゼンを用いて固定した。この場合接着剤が試料に付着しないよう注意した。また透磁率の測定と焼鈍をくり返し行ううちに層間の Al_2O_3 粉末がとれないように石英管と石英管の間のすきまにさらに Al_2O_3 粉末をつめた。次に $\phi 0.1$ mm のホルマル被覆銅線を約 220 回単相分布に巻きトロイダル状とした。

高周波透磁率および損失の測定はマックスウェルブリッジ法により行った⁽¹⁸⁾。コイルのインダクタンスを L_X (H) 実効抵抗および直流抵抗をそれぞれ R_X , R_{DC} (Ω) とすると複素透磁率の実数部 μ' (H/m) および虚数部 μ'' (H/m) はそれぞれ

$$\mu' = L_X \pi D / S N^2 \quad (1)$$

$$\mu'' = (R_X - R_{DC}) \mu' / 2 \pi f L_X \quad (2)$$

$$\mu = (\mu'^2 + \mu''^2)^{1/2}$$

と表わすことができ、さらに 1 サイクル当りの単位体積当りの損失 ($\text{W/m}^3\text{Hz} = \text{J/m}^3$) は

$$W = (R_X - R_{DC}) i_m^2 / 2 V f \quad (3)$$

と表わされる。ただし、ここで D , N , S はそれぞれ磁芯の平均直径(m), コイルの巻き数, および磁芯の断面積 (m^2) であり, i_m , V はそれぞれ駆動電流のピーク値(A) および試料の体積 (m^3) である。従って L_X , R_X , R_{DC} を測定することにより式(1)~(3)を用いて透磁率および損失を計算することができる。測定に先だち、厚さ 25 μm の Mo-

パーマロイ試料を用い 1~100 kHz の周波数範囲で μ' を測定し、従来報告されている結果と一致することを確認した。

試料の焼鈍は、ホルマル被覆銅線を一旦とり去った後ニクロム線を無誘導に捲いた電気炉に入れ、真空中で所定の時間行った。試料の加熱および冷却速度は約 100°C/h とした。常温まで冷却後再びホルマル被覆銅線を巻き透磁率の測定をくり返し行った。

III. 実験結果

1. $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ 合金

(1) 透磁率の駆動磁界および周波数依存性ならびにそれらの熱処理効果

Fig. 1 (a), (b), (c) にはそれぞれ試料作製後の状態, 300°C で 0.5 h ならびに 7 h 焼鈍後の常温における複素透磁率の実数部分, μ' (図中○印) および虚数部分 μ'' (図中×印) の駆動磁界依存性の一例を示した。図の(a)に見るように試料作製後の状態では 0.1 kHz の場合を除き駆動磁界に対して μ' は磁界 H_1 および H_2 で明瞭な極大値(図中の矢印)をとって変化している。一方 μ'' は μ' の二つの極大を示す磁界の中間の磁界で一つの極大をとって変化している。試料を 300°C で 0.5 h 焼鈍すると(b)図に見るようにこれら2つの極大は 10 kHz 以上で、300°C で 7 h 焼鈍した場合には(図(c)) 約 20 kHz 以上でその傾向が認められる。このような焼鈍による μ' の駆動磁界依存性の変化は 200°C で焼鈍した場合にはほとんど見られなかったが、結晶化温度より数 10 度低い 400°C で焼鈍すると顕著に見られた。なお試料作製後の状態で見られる二つの極大は Fe-Si, Mo-パーマロイ等の結晶質合金では見られない特異な現象であり注目すべきことである。

(a) 異常磁界 H_1 , H_2 ならびに $\mu'_m(H_1)$, $\mu'_m(H_2)$ の周波数依存性

μ' の最初の極大の現われる磁界, H_1 (図中○印) および 2 番目の極大を示す磁界, H_2 (図中△印) ならびにそれぞれの磁界下の透磁率, $\mu'_m(H_1)$, $\mu'_m(H_2)$ の周波数依存性の一例を Fig. 2 (a), (b), (c) に示した。これらの周波数依存性の特徴は(i)周波数に依らず H_1 の値は約 15 A/m と一定であるが, H_2 の値は $\ln f$ に比例して増加する。(ii)試料に焼鈍を施すと第2の極大を示す磁界 H_2 は高周波側にズレ、しかも H_1 の値はほとんど変わらないのに対し H_2 の値が次第に小さくなり, H_1 と H_2 の幅(図中の斜線部分)が次第にせばまる。(iii) μ' が1つの極大を示す周波数範囲では μ'_m は大きな値を示す、等である。なおこれらの特徴は他の 200°C および 400°C で焼鈍した場合もほぼ同様であった。

(b) 透磁率 μ' (4 A/m) の周波数依存性

弱磁界での透磁率の周波数依存性を見るため最小駆動磁界 4 A/m での μ' の値をとりその周波数依存性をまとめて Fig. 3 に示した。図で 300°C 焼鈍後の結果には比較のた

Fig.1 Driving field dependence of permeability of an amorphous $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ alloy; (a) as-prepared, (b) annealed at 300°C for 0.5 h and (c) annealed at 300°C for 7 h.

Fig.2 Frequency dependence of H_1 ($\circ$ - $\circ$)- H_2 (Δ - Δ), $\mu_m(H_1)$ ($\bullet$ - $\bullet$) and $\mu_m(H_2)$ ($\blacktriangle$ - $\blacktriangle$) for an amorphous $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ alloy; (a) as-prepared, (b) after annealing at 300°C for 0.5 h and (c) after annealing at 300°C for 7 h.

Fig.3 Permeability measured at 4 A/m as a function of frequency for amorphous $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ alloys annealed at various temperatures for various hours.

Fig.4 Driving field dependence of loss factor, $\tan \delta$ measured at various frequency for an amorphous $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ alloy.

め Silectron ($25\mu\text{m}$) の μ_i の周波数依存性も併せて示した。図に見るように焼鈍温度が 200°C の場合には、焼鈍することによりまた周波数の増加とともに μ' の値は減少する。しかしながら、焼鈍温度が 300°C の場合には逆に μ' は増加し、Silectron のそれよりも大きくなるが、周波数の増加に対しては $\ln f$ に比例して単調に減少する。焼鈍温度が 400°C の場合には焼鈍時間が 0.5 h と短いと μ' は増加し、駆動周波数に対して緩やかに減少するが、焼鈍時間が 1 h 以上となると逆に μ' は減少するが、周波数に対してはほとんど変化しない。

(2) 損失係数 $\tan \delta$ の駆動磁界依存性およびコア損失の磁束密度依存性

(a) $\tan \delta$ の駆動磁界依存性

$\tan \delta$ の駆動磁界依存性の測定例として Fig.4 (a), (b), (c) にはそれぞれ試料作製後の状態、 300°C で 0.5 h ならびに 7 h 焼鈍後の常温における $\tan \delta$ の駆動磁界依存性を示した。図に見るように試料作製後の状態では $\tan \delta$ は低周波で鋭い極大を示し、周波数の増加とともにこの極大は次第にブロードとなり、しかも極大を示す磁界は次第に大きくなる。この図と Fig.1 に示した μ' の駆動磁界依存性を比較してみると μ' が極小を示す磁界で $\tan \delta$ が極大を示していることが判る。試料を焼鈍すると図(b), (c) に見るように $\tan \delta$ の極大値は $1/3 \sim 1/5$ に減少し、しかも極大を示す磁界もまた減少する。

(b) コア損失の磁束密度依存性

実用にあたっては一定の磁束密度 B_m での損失が重要である。そこで Fig.1 に示した μ' および μ'' を用い $B_m = (\mu'^2 + \mu''^2)^{1/2} H$ の関係より B_m を計算し、 B_m 対 1 サイクル当りの損失を試料作製後および 300°C で 1 h 焼鈍後の

Fig.5 Core loss vs magnetic flux density B_m of an amorphous $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ alloy.

それぞれの状態について Fig.5 に示した。同図には比較のため Deltamax および Silectron のそれらも併せて示しておいた。図に見るように試料作製後の状態の損失の特徴は (i) 周波数が 2 kHz 以下の場合 W は B_m の $1.4 \sim 1.5$ 乗に比例して増加し、 B_m が約 $0.4 \sim 0.5\text{ T}$ で折れを示し、

さらに B_m が大きくなると B_m の約 4.5 乗に比例して急峻に増加する. (ii) 周波数が 5, 10 kHz の場合には W は B_m の約 1.6 乗に比例して増加し, B_m が約 0.3~0.5 T 以

Fig.6 $\mu'_m(H)$ (a), $\mu'(4 \text{ A/m})$ (b) and $W(B_m=0.1 \text{ T})$ (c) measured at 1 kHz as functions of annealing temperature and annealing time for the $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ alloy. These values are normalized by those of as-prepared samples.

上ではそれ以下に較べやや急に増加する. (iii) 周波数が更に高くなり, 20 kHz 以上となると W は B_m の 1.8~2 乗に比例して増加するが B_m が 0.1~0.3 T で折れを示す. しかしながら (i) の場合とは逆にそれ以上での B_m では W の B_m 依存性は約 1.4 乗とゆるやかになる. 一方 300°C で 7 h 焼鈍するとこれらの W の B_m 依存性の特徴は消え, 全磁束密度においていずれの周波数の場合も W は B_m の 1.8~2 乗に比例して増加する.

次に焼鈍温度ならびに焼鈍時間に対する高周波磁化特性の変化の様子を判りやすく見るため Fig.2, 3, 5 の結果をもとに $\mu'_m(H_1)$ と $\mu'_m(H_2)$ の平均値, $\mu'_m(H)$, 透磁率 $\mu'(4 \text{ A/m})$ および損失 $W(B_m=0.1 \text{ T})$ の値を処理時間と処理温度に対し等高線でそれぞれ Fig.6(a)~(c) に示した. ただしこの場合試料ごとに高周波磁化特性の値がバラついていたので試料作製後の状態のそれぞれの値で規格化した値を示した. 図で○印はその焼鈍温度および時間で測定したことを示し, これらの測定結果をもとに等高線を引いた. 等高線に記してある数値は $\mu'_m(H)$, $\mu'(4 \text{ A/m})$ および W の値が作製したままの試料のそれらに較べ何倍となったかを示す. なお図には 1 kHz での磁化特性を示したが 10 kHz においてもほぼこれらの結果と同様であった. 図に見るように μ'_m , $\mu'(4 \text{ A/m})$ が最も大きくなり, $W(B_m=0.1 \text{ T})$ が最も減少するためにはこの合金の T_c 付近の温度 300~350°C で数 10 分焼鈍することが望ましい.

2. $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ 合金

(1) 透磁率の駆動磁界および周波数依存性ならびにそれらの熱処理効果

Fig.7(a)~(c) にはそれぞれ試料作製後および 300°C で

Fig.7 Driving field dependence of permeability for an amorphous $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ alloy; (a) as-prepared, (b) annealed at 300°C for 1 h and (c) annealed at 300°C for 7 h.

1 h ならびに 7 h 焼鈍後常温で測定した複素透磁率の実数部分 μ' , 虚数部分 μ'' の駆動磁界依存性を示した. 図の (a) に見るように試料作製後の状態では $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ 合金の場合と同様 μ' は 2 つの明瞭な極大 (図中の矢印) をとって変化している. 一方 μ'' は μ' の 2 つの極大を示す磁界の中間の磁界で極大をとる. 試料を 300°C で 1 h 焼鈍すると (b) 図に見られるように, 試料作製後見られる 2 つの極大の他にさらに 1 つの極大を示す傾向が認められ, さらに 300°C で 7 h 焼鈍後には (図 (c)) μ' および μ'' は 1 h 焼鈍後のそれとはほぼ同様の駆動磁界依存性を示す.

(a) 異常磁界 H_1, H_2, H_3 ならびに $\mu'_m(H_1), \mu'_m(H_2), \mu'_m(H_3)$ の周波数依存性

$\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ 合金の場合と同様 H_1, H_2 および $\mu'_m(H_1), \mu'_m(H_2)$ さらに Fig. 8 の内挿の図に模式的に示した $H_3, \mu'_m(H_3)$ の値を周波数に対して図示し, その一例を Fig. 8 (a)~(c) に示した. 図に見るように周波数に依らず H_1 の

Fig. 8 Frequency dependence of H_1 (○-), H_2 (△-), H_3 (×-), $\mu'_m(H_1)$ (●-), $\mu'_m(H_2)$ (▲-) and $\mu'_m(H_3)$ (□-) for an amorphous $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ alloy; (a) as-prepared, (b) after annealing at 300°C for 1 h and (c) after annealing at 300°C for 7 h.

値は一定であるが, H_2 の値は $\ln f$ に比例して増加する. 試料に焼鈍を施すと, H_2 の値は次第に小さくなり, H_1 と H_2 の幅 (図中の斜線部分) が次第にせままりかつ $\mu'(H_1)$ と $\mu'(H_2)$ の差が次第に小さくなる. なお焼鈍によるこれら H_1, H_2 および $\mu'(H_1), \mu'(H_2)$ の変化の様子は 400°C および 470°C の場合にはこの 300°C の場合に比べより H_1 と H_2 の幅がせままり, $\mu'(H_1)$ を $\mu'(H_2)$ の差が小さくなった. しかし, 200°C の場合にはこれらの値はほとんど変化しなかった.

(b) 透磁率 μ' (4 A/m) の周波数依存性

$\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ 合金の場合と同様に 4 A/m の駆動磁界における μ' の値をとり, その周波数依存性をまとめて Fig. 9 に

示した. 同図には比較のため Silectron ($25\mu\text{m}$) の μ_i の周波数依存性も併せて示した. 図に見るように焼鈍温度が 200°C および 300°C の場合には焼鈍により μ' はあまり変化しないが, 400°C で焼鈍すると増加する. また 470°C では 0.5 h の焼鈍で μ' は一旦著しく増加するが, さらに焼鈍時間が長くなると逆に次第に減少する. これら μ' の周波数依存性と Silectron のそれを比較してみると試料作製後の $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ 合金の μ' は数 kHz 以上から次第に減少し, 周波数特性が Silectron のそれに較べ悪い. しかしながら 470°C で 1.5 h 焼鈍後の μ' の周波数特性は Silectron のそれとはほぼ等しくなる.

Fig. 9 Permeability measured at 4 A/m as a function of frequency for amorphous $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ alloys annealed at various temperatures for various hours.

(2) 損失係数 $\tan \delta$ の駆動磁界依存性およびコア損失の磁束密度依存性

(a) $\tan \delta$ の駆動磁界依存性

$\tan \delta$ の駆動磁界依存性の測定例として Fig. 10(a)~(c) にはそれぞれ試料作製後および, 300°C で 1 h ならびに 7 h 焼鈍後常温で測定した $\tan \delta$ の駆動磁界依存性を示した. 図に見るように $\tan \delta$ は 2~10 kHz で 30~70 A/m の磁界で鋭い極大を示し, 周波数の増加とともにこの極大を示す磁界は次第に高磁界側にズレる. Fig. 7 に示した μ' の駆動磁界依存性とこの図を比較してみると μ' が極小を示す磁界で $\tan \delta$ が極大を示していることが判る.

(b) コア損失の磁束密度依存性

Fig. 11 には一例として試料作製後および 400°C で 7 h

Fig.10 Driving field dependence of loss factor, $\tan \delta$ measured at various frequency for an amorphous $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ alloy.

Fig.11 Core loss vs magnetic flux density B_m of an amorphous $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ alloy.

焼鈍後のそれぞれについてコア損失の磁束密度依存性を示した。同図には比較のため Deltamax および Silectron のそれも併せて示しておいた。図に見るように損失の磁束密度依存性の特徴は、(i) 周波数が 2 kHz 以下の場合 W は B_m の 1.6 乗に比例して増加し、 B_m が約 0.3 T で折れを示し、さらに B_m が大きくなると B_m の約 2.7 乗に比例して急峻に増加する。(ii) 周波数が 5 kHz ~ 100 kHz の場合には W は B_m の約 2 乗に比例して増加し、 B_m が 0.05 ~ 0.08 T で折れを示し、それ以上の B_m では B_m の 1.4 乗に比例して増加し、 B_m が 0.3 ~ 0.5 T で再び折れを生じ、さらに B_m が大きくなると B_m の約 2.7 乗に比例して急峻に増加する。

一方 400°C で 7 h 焼鈍後には (i), (ii) で記述したような W の B_m 依存性の折れは消え、 B_m が 0.01 ~ 0.5 T の範囲で W は B_m の約 1.8 乗に比例して増加し、それ以上の B_m でやや急峻に増加する傾向を示す。また焼鈍することによりいずれの周波数でも損失は焼鈍前のその 1/3 ~ 1/5 に減少する。

次に $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ 合金の場合と同様焼鈍温度ならびに焼鈍時間に対する高周波磁化特性の変化の様子のまとめ、Fig. 12 にはその一例として周波数が 1 kHz の場合の結果を示した。ただし、この場合試料ごとに高周波磁化特性の値がバラついていたので試料作製後の状態のそれで規格化した値を示した。なお図中の○印および数値は Fig. 6 のそれと同じ意味を示す。図に見るように $\mu'_m(H)$, μ' (4 A/m) が最も大きくなり、 W (0.1 T) が最も小さくなるためにはこの合金の T_c , 460°C より数 10 度低い温度で数 10 分焼鈍

Fig.12 $\mu'_m(H)$ (a), $\mu'(4A/m)$ (b) and $W(B_m=0.1T)$ (c) measured at 1kHz as functions of annealing temperature and annealing time for the $Fe_{75}Si_{15}B_{10}$ alloy. These values are normalized by those of as-prepared samples.

するのが望ましい。なお周波数が 10 kHz の場合もこれらの焼鈍による変化の様子は 1 kHz のそれと同様であった。

IV. 考 察

1. μ' の駆動磁界依存性ならびにコア損失の磁束密度依存性

試料作製後の状態での $Fe_{80}P_{13}C_7$ および $Fe_{75}Si_{15}B_{10}$ 非晶質合金の μ' の駆動磁界依存性は 2 つの極大をとる特徴ある変化を示す。そこで先ずこの点について考えてみよう。すでに知られているように試料作製状態の $Fe_{80}P_{13}C_7$ 等の非晶質強磁性合金の磁区模様を観察すると 180° 磁区の他に指紋状またはメイズ状と呼ばれる磁区模様が観察される^{(19)~(21)}。しかも指紋状磁区領域の磁化曲線は 180° 磁区領域のそれに比べ磁化しにくい。従って本実験に用いた非晶質 $Fe_{80}P_{13}C_7$ および $Fe_{75}Si_{15}B_{10}$ 合金中にも多かれ少なかれ磁化しやすい(soft)領域と磁化しにくい(hard)領域が存在しているものと考えられる。そこで試料作製後の状態での磁化特性はこれら両領域のそれを反映しているものとし、Fig.13(a)に模式的に示したように実験で得られた

Fig.13 Schematic representations of μ' vs H (a) and $\ln W$ vs $\ln B_m$ (b).

μ' の駆動磁界依存性はそれぞれの領域での μ' の和で与えられると考えてよいであろう。

すると Fig.13(a)に示したように定性的に、I の領域： μ' の大部分が soft な領域によるもので μ' の最初の極大を示す磁界領域、II の領域： μ' が soft および hard な両領域によるもので μ' が駆動磁界に対してほぼ平坦となる磁界領域、III の領域： μ' の大部分が hard な領域によるもので μ' の第 2 の極大を示す磁界領域と 3 つの領域に μ' の駆動磁界依存性を分けることができる。Fig.1 および Fig.7 に示したようにこれらの磁界の範囲は周波数により異なり、約 2 kHz 以下では II の領域がほとんどなく I と III のみからなり、周波数が高くなると II の領域すなわち μ' が駆動磁界に対して平坦な磁界の範囲が広がる。

これら I, II, III の領域の磁化状態が磁束密度とコア損失の関係のどの状態に対応しているかをしらべその結果を Fig.5 および 11 の実験結果に記入しておいたが、これらを模式的に示すと Fig.13(b)のようになる。それぞれの領域でのコア損失の磁束密度依存性を、 $W \propto B_m^n$ と近似し、試料作製後の $Fe_{80}P_{13}C_7$ および $Fe_{75}Si_{15}B_{10}$ 合金についてべき数 n を整理してみると、I, II, III の領域で 1.4~2, 1.3, 4.5 ($Fe_{80}P_{13}C_7$) および 1.6~2, 1.4, 2.7 ($Fe_{75}Si_{15}B_{10}$) となり両合金とも II の領域で n が最も小さく、III のそれで最も大きくなっている。しかも興味ある点は Fig.13(b)に示したように II の領域の中心の磁束密度(図中の矢印↑)に

における損失はⅠおよびⅢの領域の W の磁束密度依存性をその磁束密度に外挿した損失の平均の値となっていることである。このことはⅡの領域においては μ' が soft および hard な領域のその和で表現できると仮定したが、この領域のコア損失もまた単純に両領域の損失の和で表わされることを示している。

試料を焼鈍すると Fig.2 に示したように第 2 の極大を特徴づける磁界 H_2 は低磁界側に移り、 H_1 の磁界に近づく。また $\mu'_m(H_1)$ および $\mu'_m(H_2)$ の値は焼鈍により大きくなり、両者は次第に一致する。従って焼鈍によりⅢの hard な領域が次第にⅠの soft な性質に近づくとともにⅠの soft な領域自身もさらに soft となると考えられる。このような変化にともなってコア損失の磁束密度依存性に見られた損失の折れがなくなり、 B_m が 0.01~1 T の範囲で $n=1.8\sim 2$ とほぼ同一の磁束密度依存性を示すこととなる。

2. 損失の機構

前節で記述したⅠおよびⅢの領域での損失の機構がどのようなものであるかが次に問題となる。しかしながら hard なⅢの領域での損失の機構を議論するには複雑な磁壁の移動を考慮する必要がある、非常に困難である。そこでここでは 180° 磁壁の移動が主であると考えられる soft なⅠの領域の損失について既存の損失の機構に関する理論と実験結果を比較する。

いま全体の損失がヒステリシス損失 W_h と渦電流損失 W_e の和で表わせると仮定する。すると渦電流損失は、

$$W_e = W - W_h \quad (4)$$

であり、実験で求めた W から W_h を差し引くことにより渦電流損失のみを求めることができる。そこで 1 節で記述したⅢの領域に入らない磁束密度として B_m が 0.05, 0.1 および 0.2 T のそれぞれにおいて直流の履歴曲線を測定して W_h を求めた。その結果、 $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ および $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ 両合金についてそれぞれの磁束密度での損失は 0.1, 0.5, 1 J/m³ および 0.2, 0.5, 0.9 J/m³ であった。これらの値は 1 kHz ではそれぞれの磁束密度の W の 10~15% であり、2 kHz 以上では 10% 以下となる。従って損失の大部分は渦電流損失であると考えてよい。

180° ブロッホ磁壁の運動にともなう渦電流損失については単結晶および多結晶薄板について多くの人々により計算が行われている^{(22)~(24)}。Pry and Bean⁽²²⁾によると $B_m \ll B_s$ の磁化状態での渦電流損失は

$$W_e = \frac{96}{\pi^3} \frac{L}{d} \sum_{n:\text{odd}} \frac{1}{n^3} \coth(n\pi L/d) \cdot W_c \quad (5)$$

と表わすことができる。ここで W_c は $(\pi B_m f d)^2 / 6 \rho$ で古典的な渦電流損失であり、最大磁束密度 B_m 、周波数 f 、試料の厚さ d 、および抵抗率 ρ により決まる。また $2L$ は磁区幅を示す。 $2L \gg d$ の場合には式(5)は

$$W_e \approx 1.63(2L/d) \cdot W_c = 2.7 \frac{B_m^2 f^2 d L}{\rho N} \quad (6)$$

と近似できる、ここで L は試料の幅であり、 N は磁壁の数を示す。 $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ および $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ 合金の場合それぞれ $\rho = 1.6 \times 10^{-6} \Omega \cdot \text{m}$, $d = 1.9 \times 10^{-5} \text{ m}$, $L = 2 \times 10^{-3} \text{ m}$ および $\rho = 1.8 \times 10^{-6} \Omega \cdot \text{m}$, $d = 2.7 \times 10^{-5} \text{ m}$, $L = 2 \times 10^{-3} \text{ m}$ であるから、これらの値を式(6)に代入すると $W_e/f = 6.4 \times 10^{-2} \cdot f B_m^2 / N$ ($\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$)、 $W_e/f = 8.1 \times 10^{-2} \cdot f B_m^2 / N$ ($\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$) となる。 $B_m \ll B_s$ を満足する $B_m = 0.05, 0.1, 0.2 \text{ T}$ について実験値と上記の計算値の周波数依存性を併せて Fig.14, 15 に示した。ただしこの場合 Fig.5 および Fig.11 に示した損失の値から先に記述したヒステリシス損失 W_h の値を差し引いた損失を渦電流損失とした。図中の破線は磁壁の数 N が 1 と仮定した場合であり、実線は 1 kHz で N が 1 であるととし、周波数とともに N が f のべき乗に比例して増加すると仮定した場合の W_e の値である。図に見るように作製したままの試料の W_e の周波数依存性は磁壁の数が一定および周波数の増加にともなって増加すると仮定したいずれの計算結果とも一致しない。一方焼鈍後の W_e の周波数依存性は $\ln f$ に比例して変化し、磁壁の数が f^k に比例して増加するとすれば実験結果は

Fig.14 Eddy current loss vs frequency for an amorphous $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ alloy. Dotted and solid lines in the figure are calculated values based upon the assumption that the number of domain wall is constant and increases with frequency, respectively.

Fig.15 Eddy current loss vs frequency for an amorphous $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ alloy. Dotted and solid lines in the figure are the same meaning with those in Fig.14.

Pry and Bean のモデルによる計算結果とほぼ一致する。次に周波数に対して N がどの程度増大するかを見てみよう。Fig.14, 15 の実線の勾配をとると $\text{Fe}_{80}\text{P}_{19}\text{C}_7$ および $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ 合金のいずれについても W_e はおおまかに $f^{0.5}$ に比例するので式(6)のように W_e が記述できるためには、 $N \propto f^{0.5}$ となり、10 kHz で $N \approx 3$ 、100 kHz で $N \approx 10$ となり周波数が1から100 kHz となると N は約10倍となる。50%Ni-Fe および 3%Si-Fe 合金については N は $f^{0.4 \sim 0.6}$ に比例して増加することが報告されているが⁽²⁵⁾、非晶質合金の場合実際に1 kHz 以上で磁壁の数がこのように増加するか否かについては現在のところ明らかでない。ので、損失の機構に関してさらに詳しく検討するにはこの点をしらべる必要がある。

最後に試料作製に御協力いただいた高倉敏一氏に感謝致します。

文 献

- (1) T.Egami, P.J.Flanders and C.D.Graham, Jr.: AIP Conf. Proc., No.24(1974), 697.
- (2) M.Kikuchi, H.Fujimori, Y.Obi and T.Masumoto: Jpn. J. Appl. Phys., **14**(1975), 1077. H. Fujimori, M.Kikuchi, Y.Obi and T.Masumoto: Sci. Rep. RITU, **26**(1976), 36.
- (3) H.Fujimori, S.Ohta, T.Masumoto and K.Nakamoto: *Rapidly Quenched Metals III*, vol. 2, Ed. B.Cantor, The Metals Society, London, (1978), p.232.
- (4) K.I.Arai, N.Tsuya, M.Yamada and T.Masumoto: IEEE Trans. Magn., **MAG-12** (1976), 939.
- (5) O.Kohmoto, N.Yamaguchi, K.Ohya, H.Fujishima and T.Ojima: IEEE Trans. Magn., **MAG-14**(1978), 949.
- (6) 牧野好美, 阿蘇興一, 上平 暁, 伊藤盛康, 早川正俊, 保田井和秀: 日本応用磁気学会第11回研究会資料, ((1979-6月), p.83.
- (7) 榎間 博, 先納治文, 広田栄一: 日本応用磁気学会第11回研究会資料, ((1979-6月), p.65.
- (8) R.C.O'Handley: AIP Conf.Proc., No.29(1976), 206.
- (9) F.E.Luborsky: *Amorphous Magnetism II*, Eds. R.A.Levy and R.Hasegawa, Plenum Press, New-York, (1977), p.345.
- (10) R.C.O'Handley, L.I.Mendelsohn, R.Hasegawa, R.Ray and S.Kavesh: J. Appl. Phys., **47**(1976), 4660.
- (11) S.Hatta and T.Egami: J. Appl. Phys., **50**(1979), 1589.
- (12) R.Hasegawa and R.C.O'Handley: J. Appl. Phys., **50**(1979), 1551.
- (13) R.C.O'Handley, C.-P.Chou and N.De Cristofaro: J. Appl. Phys., **50**(1979), 3603.
- (14) H.Fujimori, T.Kato, T.Masumoto and H.Morita: *Rapidly Quenched Metals III*, vol.2, Ed. B.Cantor, The Metals Society, London, (1978), p.240.
- (15) M.Mitera, T.Masumoto and N.S.Kazama: J. Appl. Phys., **50**(1979), 7609.
- (16) 杉浦利之: 日本応用磁気学会研究会資料, ((1979-6月), p.89.
- (17) 高橋 実, 宮崎照宣, 渡部明夫: 日本金属学会誌, **43**(1979), 339.
- (18) 宮原鉄洲: 電気学会論文誌A, **98**(1978), 339.
- (19) M.Takahashi, T.Suzuki and T.Miyazaki: Jpn. J. Appl. Phys., **16**(1977), 521.
- (20) Y.Obi, H.Fujimori and H.Saito: Jpn. J. Appl. Phys., **15**(1976), 611.
- (21) S.Tsukahara, T.Satoh and T.Tsushima: IEEE Trans. Magn., **MAG-14**(1978), 1022.
- (22) R.H.Pry and C.P.Bean: J. Appl. Phys., **29** (1958), 532.
- (23) E.W.Lee: Proc. Instn. Elect. Engrs., **107 c** (1960), 257.
- (24) F.J.Young, S.K.Bhate and W.M.Swift: IEEE Trans. Magn., **MAG-10**(1974), 814.
- (25) 榎 陽, 石川一美, 山岸一郎: 電気学会論文誌, **A-95**(1975), 125. Y. Sakaki: IEEE Trans. Magn., **MAG-16** (1980), 569.