研究

非晶質合金粉末よりなる圧粉体の磁気特性*

佐 藤 隆**

Takashi Sato: Magnetic Properties of Compressed Amorphous Alloy Powders.

Magnetic properties of cores formed from amorphous powder prepared by rapid quenching water atomization were studied. It was found that the increase of particle size and relative density of compressed core enhances d.c. magnetic properties and deteriorates a.c. magnetic properties, and that the magnetic properties depend on alloy compositions, which is not the pronounced tendency though. Furthermore, it was found that the variation of the coercivity can be explained by the magnitude of stress variation. (Received September 25, 1989)

I 緒 言

粉末の特徴を活かせる応用分野の一つにノイズ除去用チョークコイルの鉄心がある。鉄心として、飽和磁束密度の高い圧粉磁心あるいはギャップ入り磁心が使用されている。

絶縁した強磁性粉末を静的に圧縮成形して得られる圧粉磁心は、反磁界が大きいため透磁率は低いが恒透磁性を示し、透磁率の安定性が高く、レイリー定数、渦電流損失係数、残留損失係数、ヒステリシス損失係数が小さいという特徴を持っており、高周波用磁心として適している。結晶質の強磁性粉末を用いた圧粉磁心に関する報告は多数見られるが、非晶質圧粉磁心に関する報告¹⁻³⁾は少ない。また、従来の研究に用いられた非晶質粉末は球状あるいはフレーク状であり、不規則形状の非晶質粉末に関する研究は見られない。フレーク状粉末を用いた研究²⁾では、圧粉体密度が73~95%の範囲においては交流特性に差異がないこと、圧粉体密度が90%以下では磁気特性の組成依存性が見られないことなどが報告されている。

本研究では、水アトマイズ法⁴⁾によって作製した不規則形状の非晶質粉末を静的に圧縮成形し、その磁気特性と圧粉体密度および組成との関係について検討を行った。

II 実験方法

実験に用いた粉末は、水アトマイズ法により作製した100 mesh 以下の Fe-P-C, Fe-B-Si 3 元非晶質合金粉末である。各粉末にステアリン酸亜鉛を1重量%添加混合し

た後、油圧プレスを用いフローティングダイ方式によって外径 35 mm, 内径 25 mm, 高さ約 4 mm のリング状鉄心を作製した。本実験においては、粒子間の絶縁処理は施さず、また結合剤も用いなかった。成形圧力は 0.5~2.5 GPa である。圧粉磁心の熱処理はアルゴンガス雰囲気中で行い、温度は 623~773 K, 時間は 1~4 時間、昇降温速度は 10 K/min である。磁気測定は直流磁化曲線、透磁率の周波数特性、鉄損などを測定した。直流磁化曲線は、B-H ループトレーサを用い最大 10 kOe までの磁化曲線を測定した。透磁率の周波数特性はインピーダンスアナライザ (HP: 4192A) を用いて測定した。使用した線径は 0.5 φ, 巻線数は 4~12 ターン、印加電圧は 1 V である。鉄損は電圧と電流の瞬時値とから次の式を用いて求めた。

$$W = (1/T)(N_1/N_2) \int_0^T v_2 i_1 dt \quad (1)$$

$$T = 1/f \quad (2)$$

ここで、 f は周波数、 N_1 は 1 次コイルの巻数、 N_2 は 2 次コイルの巻数、 i_1 は 1 次コイルを流れる電流、 v_2 は 2 次コイルの両端電圧である。測定は 50 Hz~100 kHz の範囲で行った。

III 結果および考察

III-1 圧粉体の磁気特性

(1) 圧粉体の静的磁気特性

Fig.1 に $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ 非晶質粉末を静的に圧縮成形した圧粉体 (熱処理なし) の保磁力 H_c と 300 Oe まで磁化したときの磁束密度 B_{300} の圧粉体密度依存性を示す。保

* 平成元年 9 月 25 日受理。

** (株) 日金総研, 〒174 板橋区舟渡 4-10-1。

Fig. 1 Effect of relative density of cores formed from as-atomized $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ amorphous powder on B_{300} (at $H=300$ Oe) and coercive force H_c . Cores were compressed at various pressures: $\circ$ $\bullet$, 1.0 GPa; $\triangle$ $\blacktriangle$, 1.5 GPa; $\square$ $\blacksquare$, 2.0 GPa; ∇ $\blacktriangledown$, 2.5 GPa.

Fig. 3 Effect of relative density of $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ cores annealed at 648 K for 2 hours on coercive force H_c , induction B_{300} and initial permeability μ_{ik} .

Fig. 2 Effect of annealing temperature on magnetic properties for $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ cores compressed at 1.5 GPa. Cores were annealed for 2 hours.

磁力の値は $1/B^2$ vs. H'_c (各 B での保磁力) をプロットし外挿により求めた。 H_c は圧粉体密度とともに増加する。また、タップ充填により相対密度を種々変化した圧粉体の保磁力はその密度に依存しなかった。このことから、圧粉体密度の増加にともなう H_c の増加は磁壁エネルギーの変化、すなわち成形圧力の増加にともなう内部応力の増加が原因と考えられる。圧粉体に作用した外力が内部応力に等しいと仮定し、Fig. 1 の保磁力を成形圧力に対してプロットし圧粉体の保磁力と内部応力の関係を求めると、

$$H_c = 0.028(\lambda\sigma/I_s) + 1200 \quad (3)$$

となり、内部応力の周期的変化を考えた理論⁹⁾で説明できる。ここで、 I_s は飽和磁化、 λ は磁歪定数で、 $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ 粉末の I_s は 1.78 T、 λ は 3×10^{-5} である。一方、圧粉体密度の増加にともなう B_{300} の増加は、磁性体の体積部分の増加、圧粉体内の反磁界の減少および粒子の配向性

の向上によるものと考えられる。

Fig. 2 に $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ 非晶質粉末圧粉体の磁気特性に及ぼす熱処理温度の影響を示した。圧粉体の成形圧力は 1.5 GPa、熱処理時間は 2 時間である。保磁力は、熱処理温度の増加にともなって減少し結晶化温度 (707 K) より約 50 K 低い温度で最小値を示す。最大透磁率 μ_m は、保磁力と逆の変化を示し保磁力が最小となる温度で最大値を示す。これより高い温度では結晶相が析出するために H_c は増加し μ_m は低下する。結晶相の析出温度が結晶化温度より低いのは結晶化の潜伏期が存在するためである。一方、 B_{300} は熱処理温度に依存しない。

Fig. 3 に H_c 、 B_{300} 、および μ_{ik} の圧粉体密度依存性を示す。 μ_{ik} は、1 kHz における透磁率 (磁化力は 3 mOe) で、ここでは直流で磁化した際の初透磁率に対応する。 B_{300} および μ_{ik} はいずれも圧粉体密度の増加とともに増加する。また、保磁力もわずかながら圧粉体密度の増加にともなって増加する。

Fig. 4 に $\text{Fe}_{75}\text{B}_{15}\text{Si}_{10}$ 非晶質圧粉体 (成形圧力: 1.5 GPa) の密度、 H_c および B_{300} の圧粉体厚さ依存性を示す。熱処理温度は 723 K、時間は 2 時間である。圧粉体密度および B_{300} は圧粉体厚さに依存しないが、 H_c は圧粉体厚さとともにわずかながら増加する。すなわち、熱処理を施した圧粉体の保磁力が圧粉体密度および圧粉体厚さの増加とともに増加するのは、熱処理の際に生ずる熱応力の影響によるものと考えられる。

(2) 圧粉体の動的磁気特性

Fig. 5 に同一の相対密度を有する $\text{Fe}_{72}\text{P}_{13}\text{C}_{15}$ 非晶質圧

Fig. 4 Coercive force H_c , relative density ρ and induction B_{300} as a function of thickness of $\text{Fe}_{72}\text{B}_{13}\text{Si}_{10}$ cores compressed at 1.5 GPa. Cores were annealed at 723K for 2 hours.

粉末と鉄圧粉末の透磁率の周波数依存性の例を示す。粉末の粒度は何れも 100 mesh 以下である。

Fig. 6 には圧粉体を構成する粒子径によって透磁率の周波数特性がどのように変化するかを示した。用いた粉末は $\text{Fe}_{72}\text{P}_{13}\text{C}_{15}$ 粉末である。低周波領域の透磁率は粒子径が大きいほど大きい。微細な粉末になると透磁率が低くなるのは、含まれる磁壁の数が減少するためと考えられる。一般に、周波数が高くなると渦電流の効果によって透磁率は低下し、その程度は粗大な粉末ほど顕著になる。500メッシュ以下の微細な粉末からなる圧粉体では、渦電流の影響が小さいため 10 MHz の高周波領域におい

Fig. 5 Initial permeability at 1 kHz of $\text{Fe}_{72}\text{P}_{13}\text{C}_{15}$ core and iron powder core as a function of frequency. Relative densities of these cores are the same.

ても透磁率の低下は見られない。

磁束が時間的に正弦波状に変化する場合の鉄損は、

$$W = h_1 f B_{\max}^x + h_2 f^2 B_{\max}^2 \quad (4)$$

$$x = 1 \sim 2 \quad (5)$$

と書き表せることが良く知られている。ここで、 h_1 はヒステリシス損失係数、 h_2 は渦電流損失係数、 $B_{\max}$ は磁束密度、 f は周波数である。(4) 式の右辺第 1 項はヒステリシス損失、第 2 項は渦電流損失を示す。 $B_{\max}$ を一定として周波数 f を変化させ W を測定すると、ヒステリシス損失と渦電流損失とが分離できる。Table 1 に最適熱処理を施した $\text{Fe}_{80}\text{P}_{16}\text{C}_4$ 圧粉体 (成形圧力: 1.5 GPa) のヒステリシス損失と渦電流損失を分離した結果を示す。1 kHz 以下の低周波域ではヒステリシス損失が、また 100 kHz 以上の高周波域では渦電流損失が鉄損の大

Fig. 6 Effect of particle size on μ_{ik} versus frequency of $\text{Fe}_{72}\text{P}_{13}\text{C}_{15}$ cores compressed at 1.5 GPa. Cores were annealed at 680K for 2 hours.

Table 1 Core loss for $\text{Fe}_{80}\text{P}_{16}\text{C}_4$ core annealed at 633 K for 2 hours. The core was pressed at 1.5 GPa. Wh and We are hysteresis and eddy current loss, respectively.

f (Hz)	B (Tesla)	Wh (W/kg)	(%)	We (W/kg)	(%)
50	0.05	2.7×10^{-2}	99.8	5.8×10^{-5}	0.2
	0.1	7.5×10^{-2}	99.7	2.4×10^{-4}	0.3
1k	0.05	5.4×10^{-1}	95.9	2.3×10^{-2}	4.1
	0.1	1.5	94.0	9.5×10^{-2}	6.0
10k	0.05	5.4	70.1	2.3	29.9
	0.1	15	61.2	9.5	38.8
100k	0.05	54	19.0	2.3×10^2	81.0
	0.1	1.5×10^2	13.6	9.5×10^2	86.4

Fig. 7 Core losses for cores compressed at various pressures: ○ ●, 1.0 GPa; △▲, 1.5 GPa; □■, 2.0 GPa; ▽▽, 2.5 GPa; solid line, $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ cores annealed at 648 K for 2 hours; dashed line, $\text{Fe}_{75}\text{B}_{15}\text{Si}_{10}$ cores annealed at 713 K for 2 hours.

Fig. 8 μ_{1m}/μ_{1k} versus μ_{1k} for amorphous cores: ●, Fe-P-C system; ▲, Fe-B-Si system.

Fig. 9 Contours of constant initial permeability of cores compressed at 1.5 GPa: (a), Fe-P-C system; (b), Fe-B-Si system.

部分を占めている。

Fig. 7 には、 $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ 、 $\text{Fe}_{75}\text{B}_{15}\text{Si}_{10}$ 圧粉体の 0.1 T における鉄損を示した。鉄損は、10 kHz を境にしてそれより低い周波数領域においては $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ 圧粉体の方が、それより高い周波数領域においては $\text{Fe}_{75}\text{B}_{15}\text{Si}_{10}$ 圧粉体の方が低くなる。また、図からわかるように、圧粉体密度

の違いによる鉄損の差異は顕著に見られず、この傾向は Raybould ら²⁾の結果と一致する。

Fig. 8 に μ_{1k} と μ_{1M}/μ_{1k} の関係を示す。 μ_{1M} は 1 MHz における透磁率である。 μ_{1k} の値が大きくなるに従い μ_{1M}/μ_{1k} の値は小さくなる。すなわち、 μ_{1k} が大きいほど 1 MHz における渦電流損失は増加する。 Fig. 7 の結果からもわかるように、渦電流損失は Fe-B-Si 系の方が Fe-P-C 系よりも少ない。これはアトマイズ後の急冷凝固過程において粉体表面に形成された酸化被膜の絶縁性の差異に起因するものと考えられる。

(3) 磁気特性の組成依存性

圧粉体 (成形圧力: 1.5 GPa) の静的磁気特性の組成依存性を Fig. 9~11 に示す。 Fe-P-C 系の非晶質圧粉体の初透磁率は、10~17at%P の濃度領域において高い値を示す。一方、 Fe-B-Si 系では、15 at%B 付近において初透磁率が高くなる傾向が認められる。保磁力は Fe-P-C、Fe-B-Si 何れの系においても非晶質相形成範囲の中心より鉄濃度の低い側において最も小さくなり、 Fe-P-C 系では 10 at%C-18 at%P、 Fe-B-Si 系では 12 at%Si-14 at%B 付近において最小値を示す。 B_{300} の組成依存性は顕著ではないが、 Fe-P-C 系では高炭素濃度領域において、また Fe-B-Si 系では低鉄濃度領域において低くなる

傾向が見られる。

Fig. 12 には 1 kHz および 100 kHz の 0.1 T における鉄損の組成依存性を示す。 Fe-P-C 系非晶質圧粉体では、1 kHz の鉄損は非晶質相形成範囲の中心において小さくなり、100 kHz の鉄損は P 濃度が高く C 濃度が低いほど大きくなる傾向を示す。一方 Fe-B-Si 系では 1 kHz の鉄損は Si 濃度が低く B 濃度が高いほど大きくなり、100 kHz の鉄損は非晶質相形成範囲の中心において小さくなる傾向が認められる。

圧粉体の磁気特性は、内部反磁界の影響が大きいためバルク材ほど顕著ではないが明らかに組成依存性がみられ、相対密度が 90% 以下の圧粉体において組成依存性が認められないとする Raybould らの結果²⁾とは異なっている。

III-2 圧粉体の透磁率に関する考察

圧粉体のような粉末集合体では各粉末が空隙を介して存在するため、集合体としての透磁率は反磁界の作用を受け粉末材料固有の透磁率より小さくなる。強磁性粉末からなる集合体の見掛けの透磁率に関しては Doebke⁶⁾、Ollendorf⁷⁾などの研究があり、装荷線輪のような透磁率が 10 程度の圧粉磁心に対しては適用できるが、透磁率

Fig. 10 Contours of constant coercive force (Oe) of cores compressed at 1.5 GPa: (a), Fe-P-C system; (b), Fe-B-Si system.

Fig. 11 Contours of constant induction B_{300} (Tesla) of cores compressed at 1.5 GPa: (a), Fe-P-C system; (b), Fe-B-Si system.

Fig. 12 Contours of constant core loss (W/kg) at 0.1 Tesla of cores compressed at 1.5 GPa: (a), Fe-P-C system; (b), Fe-B-Si system; solid line, at 1 kHz; dotted line, at 100 kHz.

の高い圧粉磁心には適用できない。

立方体の形をした強磁性体がドーナツ状に連なり、磁気回路を形成していると仮定する。このドーナツ状磁性体に巻き付けたコイルによって磁気回路を磁化する。コイル全体の巻数を N 、電流の強さを i とし、この磁気回路一周に沿って Ampère の回路定理を適用すると、

$$\oint H dl = Ni \quad (6)$$

となる。

材料および空隙内の磁場を H_m , H_{gj} とし、全磁路長および空隙長を l , l_{gj} とすると、

$$H_m(l - \sum l_{gj}) + \sum H_{gj} l_{gj} = (4\pi/10) Ni \quad (7)$$

$$(B_m/\mu_m)(l - \sum l_{gj}) + \sum B_{gj} l_{gj} = (4\pi/10) Ni \quad (8)$$

となる。 B_m , B_{gj} は材料内および空隙内の磁束密度、 μ_m は材料固有の透磁率である。磁束密度 B がいたるところで連続と仮定すると、

$$B_m = B_{gj} = B \quad (9)$$

となるから、(8) 式は次式のようにになる。

$$(B/\mu_m)(l - \sum l_{gj}) + \sum B l_{gj} = (4\pi/10) Ni \quad (10)$$

見掛けの透磁率を μ_a とすると、(10) 式は次式のように書き直せる。

$$\mu_a = \mu_m / \{1 + (\sum l_{gj}/l)(\mu_m - 1)\} \quad (11)$$

Fig. 13 Calculated dependence of apparent permeability of compressed core with various β on relative density. These curves were calculated as $\mu_i = 10^4$. The dotted line indicates the data obtained from Fig. 3.

ここで、 B の不連続性を考慮して

$$\sum l_{gj}/l = \beta \alpha \quad (12)$$

$$\alpha = 1 - \rho/\rho_0 \quad (13)$$

とおくと、(11) 式は、

$$\mu_a = \mu_m / \{1 + \beta \alpha (\mu_m - 1)\} \quad (14)$$

となる。ここで、 α は磁性体以外の体積部分、 β は定数、 ρ は圧粉体密度、 ρ_0 は材料の真密度である。ここで β は、圧粉体内の反磁界、粒子の配向性、磁気異方性などによって決まる定数である。

Fig. 13, 14 に (14) 式を用いて計算した初透磁率の圧粉体密度依存性を示す。図中の点線は、 $\text{Fe}_{80}\text{P}_{13}\text{C}_7$ 非晶質圧粉体で得られた実験結果 (Fig. 3) をプロットしたもので、 $\beta = 1/70$ として計算した値とよく一致する。圧粉体の見掛けの透磁率は材料固有の透磁率よりも β の値によって大きく影響され、材料固有の透磁率の影響は相対密度の高い領域において現れる。

Fig. 5 からわかるように同一相対密度の圧粉体で比較した場合、非晶質圧粉体の見掛けの透磁率は鉄圧粉体のそれの 2 倍以上の値を示している。この差異は材料固有の透磁率によるのではなく β の差異によるものと考えられる。水アトマイズ法により作製した非晶質粉末の磁気モーメントはその長軸方向に配向することがわかっている⁹⁾。圧粉体内における粉体は、磁化困難な短軸方向が粉体の圧縮方向に配向し、磁化が容易なあるいは比較的

Fig. 14 Calculated dependence of apparent permeability of compressed core with various intrinsic permeability on relative density: a, $\mu_i=10^8$; b, $\mu_i=10^4$; c, $\mu_i=10^3$; $\beta=1/50$.

容易な方向が磁化方向に配向する。それ故、形状異方性および磁気異方性が大きいと考えられる非晶質粉末を用いる方が結晶質粉末からなる圧粉体よりも高い透磁率を得ることができるものと考えられる。

IV 結 言

水アトマイズ法により作製した非晶質合金粉末を静的に圧縮成形しその圧粉体の磁気特性について検討を行った結果、以下のことが明らかになった。

- (1) 熱処理を施さない非晶質圧粉体の保磁力は圧粉体密度とともに増加する。保磁力と内部応力の関係は、 $H_c=0.028(\lambda\sigma/I_s)+1200$ となり、内部応力の周期的変化を考えた理論で説明できる。

- (2) 圧粉体密度および圧粉体を構成する粒子径の増加にともない静的磁気特性は向上するが動的磁気特性は低下する。

- (3) 熱処理を施した圧粉体の保磁力は、圧粉体密度および圧粉体体積の増加にともなわずかながら増加する。

- (4) 非晶質圧粉体の磁気特性は、Fe-P-C, Fe-B-Si いずれの系においても顕著ではないが組成依存性が認められる。

- (5) Ampère の定理を用いて圧粉体の見掛けの透磁率を表す式を導出し初透磁率を計算した結果、実験値とよく一致した。

- (6) 圧粉体の初透磁率は、材料固有の透磁率よりも圧粉体内の反磁界、粒子の配向性、磁気異方性などにより大きく影響されるものと考えられる。

謝 辞

本研究を行うに当たり実験に協力頂いた中川虎雄氏に感謝致します。

文 献

- 1) 山口：アモルファス電子材料，サイエンスフォーラム，(1981)，78.
- 2) D. Raybould and K. S. Tan: J. Mater. Sci., **20** (1985), 2776.
- 3) H. Y. Chang, P. C. Yao, D. R. Huang and S. E. Hsu: Sci. Tech. Rapidly Quenched Alloy, Eds. M. Tenhover, W. L. Johnson and L. E. Tanner, Material Research Society, Pennsylvania, (1987), 423.
- 4) T. Sato: Scripta Met., **20** (1986), 1801.
- 5) M. Kersten: Z. f. angew. Phys., **7** (1956), 313; **8** (1956), 382, 496.
- 6) W. Doebke: Z. Techn. Phys., **11** (1930), 12.
- 7) F. Ollendorf: Arch. f. El., **25** (1931), 436.
- 8) T. Sato and T. Ichiyama: J. Mater. Sci. Lett., (in press).

会 告

第 1 回国際スプレイフォーミング会議

FIRST INTERNATIONAL CONFERENCE ON SPRAY FORMING (ICSF)

1990年 9 月17～19日

ウェールズ地方のスワンジー市 (SWANSEA, U.K.)

主 催：Nottingham University, England

問合先：Prof. John V Wood (Cripps Professor of Materials Engineering) The University of Nottingham University Park Nottingham NG7 2RD United Kingdom TEL (0602) 484848 FAX (0602) 588138