回転液中急冷法による Co-Si-B アモルファスワイヤの磁氣的性質

Magnetic Properties of Co-Si-B Amorphous Wires Prepared
by In-rotating Water Quenching Technique

山崎二郎・F. B. Humphrey*・毛利佳年雄・河村秀樹・高牟礼久宜・R. Malmöhäll**

九州工業大学電気工学科, 北九州市戸畑区仙水町 (〒804)

*カーネギーメロン大学, ピッツバーグ, ペンシルバニア, アメリカ合衆国

**スウェーデン王立工科大学, ストックホルム, スウェーデン

J. Yamasaki, F. B. Humphrey*, K. Mohri, H. Kawamura, H. Takamura and R. Malmöhäll**

Kyushu Inst. Tech., Sensui-cho, Tobata-ku, Kitakyushu, 804

*Carnegie-Mellon Univ., Schenly Park, Pittsburgh, PA 15213, USA

**Royal Inst. Tech., s-100, Stockholm, Sweden

Magnetic properties were measured on Co-Si-B amorphous wires with negative magnetostriction prepared by in-rotating water quenching technique and results were compared to those of Fe wires with positive magnetostriction. The Co wire was found to exhibit the large Barkhausen discontinuities as well as Matteucci effect similar to the Fe wire. It was also found that the Co wire shows a bamboo-like domain pattern at the surface and has a reverse domain propagation mobility larger than the Fe wire.

1. はじめに

回転液中急冷法により作製された Fe-Si-B アモルファスワイヤは as-quenched の状態で顕著なバルクハウゼン跳躍, マチウシ効果を示す¹⁾. この特性を永久磁石小片と組み合わせて利用すると, 微小な運動や変位に応じたデジタルパルスが得られ, 外部電源を必要としない, 小型で簡単かつ廉価なトランスジューサーを構成することができる. 筆者らはアモルファスワイヤのユニークな特性が, 液中急冷時に導入される残留応力と磁気ひずみの相互作用による異方性に起因することを報告した²⁾. 今回, 負の磁気ひずみを有する Co-Si-B ワイヤの異方性に興味を持ったので, その磁気特性を測定し, 結果を Fe-Si-B ワイヤの特性と比較し, バルクハウゼン跳躍の発生機構などについて検討した.

2. 実験方法

本実験で使用したアモルファスワイヤは $\text{Fe}_{77}\text{B}_8\text{Si}_{15}$ ($125\mu\text{m}\phi$), $(\text{Fe}_{60}\text{Co}_{94})_{72.5}\text{Si}_{12.5}\text{B}_{15}$ ($120\mu\text{m}\phi$), $\text{Co}_{72.5}\text{Si}_{12}\text{B}_{15}$ ($123\mu\text{m}\phi$) の組成のものである. 前 2 者は当研究室において回転液中急冷法により作製したものであり, 後者はユニカ社より提供されたものである. 主な作製条件は

次のとおりである. ドラム径: 40 cm, 水深: 2 cm, ドラム周速度: 12 m/s, 液体金属噴出 Ar 圧力: 4.5 kg/cm^2 , ノズル径: $120\mu\text{m}$, 液面に対する液体金属入射角: 65° である. 両ワイヤについては熱磁気特性を測定して微結晶体が存在しないことを確認した. 磁化特性, マチウシ効果は 60 Hz の交流正弦波磁界中で測定した. マチウシ効果の測定に際しては, 電極を設けることによりワイヤに応力が残らないように留意し, 銀ペーストを使用した. 磁区観察はワイヤ軸に直角に 10 Oe ほどの直流磁界を印加して, ビッター法により行った. 逆磁区伝播速度は Sixtus/Tonks による測定系にデジタルメモリーを組み合わせて測定した.

3. 実験結果及び検討

3.1 バルクハウゼン跳躍, マチウシ効果

Fig. 1 は, 最大励振磁界を変化させた場合の Co 基負磁歪ワイヤの磁化特性を, Fe-Co 基無磁歪ワイヤ, Fe 基正磁歪ワイヤの特性と比較したものである. Co, Fe ワイヤは励振磁界が小さい場合, 非可逆な磁化変化は生じないが, あるしきい値に達すると大きな鋭いバルクハウゼン跳躍を示す. 一方, 無磁歪ワイヤはバルクハウゼン跳躍を示さず, 非常にソフトな磁気特性 (保磁力: 10 mOe, 飽和磁界 0.2 Oe) を有している. Co, Fe ワイヤの磁化特性で異なる点を挙げると, (1) しきい値以下の低磁界で Fe ワイヤはほとんど磁化変化を示さないが, Co ワイヤは一定の小さな磁化率を示し, 低磁界で可逆磁化回転による磁化過程を有する. (2) バルクハウゼン跳躍が生じる臨界磁界は, Co ワイヤで 58 mOe であり Fe ワイヤの 93 mOe に比較して小さい. (3) Co ワイヤの残留磁化の飽和磁化に対する比は約 $1/3$ であり, Fe ワイヤの $1/2$ より小さい. (4) 飽和に要する磁界は Co ワ

Fig. 1 Hysteresis loops measured in 60 Hz sinusoidal field for Co, Fe-Co and Fe base amorphous wires.

ヤで 15 Oe, Fe ワイヤで 40 Oe 程度である。低磁界の磁化率、残留磁化の違いは、後で述べる両ワイヤの磁区構造の違いに基づくものであるが、逆磁区生成磁界の違いは、磁歪の絶対値に起因する磁気弾性効果による異方性の違いによるものと思われる。逆磁区生成磁界が、磁壁エネルギーとゼーマンエネルギーの兼ね合いで決まる²⁾と考えると、その大きさは $\sqrt{(\lambda_s \sigma)/M_s}$ (λ_s : 飽和磁歪, σ : 残留応力, M_s : 飽和磁化) に比例するであろう。残留応力を両ワイヤで同程度とみなし、Co ワイヤ ($\lambda_s = -2.3 \times 10^{-6}$, $M_s = 560$ G), Fe ワイヤ ($\lambda_s = 32 \times 10^{-6}$, $M_s = 1270$ G) について $\sqrt{\lambda_s/M_s}$ の両ワイヤの値の比を取ると約 0.61 となり実測値 0.6 にほぼ等しい値となる。

水中急冷法により得られるアモルファスワイヤの最大

Fig. 2 Matteucci voltage waveform measured in 60 Hz sinusoidal field for Co, Fe-Co and Fe base amorphous wires.

Fig. 3 Voltage waveform induced in 320 turns pick-up coil for Co, Fe-Co and Fe base amorphous wires excited by 60 Hz sinusoidal field.

線径は 120~130 μm であり、この値はロール法により得られるアモルファスリボンの厚みの 3 倍程度である。このことから、液中急冷法で得られる急冷速度はロール法に比較して大きいことが推測され、as-quenched のアモルファスワイヤはリボンに比べ大きな残留応力を蓄えていると考えられる。Fig. 1 に示す 3 種類のワイヤの磁気特性の比較から、低磁歪 Co ワイヤのバルクハウゼン跳躍も、Fe ワイヤの場合と同様に、残留応力と磁気ひずみによる異方性に起因しているものと考えられる。

Fig. 3, Fig. 4 に、磁化反転に伴い 14 cm 長さのワイヤ両端に誘起されるマチュシ電圧 e_p 、ワイヤ周囲に巻かれた 320 ターンのコイルに誘起される $d\Phi/dt$ 電圧 e_p を 3 種類のワイヤについて示す。バルクハウゼン跳躍に対応して、Co ワイヤは Fe ワイヤと同じように鋭い、 e_p 、 e_p 電圧を発生するが、無磁歪ワイヤの e_p は正負に振れた不規則な波形を示す。マチュシ効果はワイヤ軸方向からそれた磁化成分の反転によるものであるから、飽和磁化が小さいにもかかわらず大きな e_p を示す Co ワイヤの磁化は、Fe ワイヤに比較し、軸方向からのゆらぎが大きいことが推測される。一方、Co ワイヤの低磁界における e_p 電圧は Fe ワイヤの 1/2 程度に小さく、バルクハウゼン跳躍を示さない無磁歪ワイヤの e_p は大きな半値幅を有する。低磁界でマチュシ効果を利用するセンサー素子としては、Co ワイヤが優れているが、通常の、検出コイルを使用するセンサ素子としては Fe ワイヤが優れている。

3.2 磁区構造

Fig. 4 に、Co ワイヤの残留磁化状態 (a), 円周磁界印加時 (b) (c) のビッターパターンを示す。写真はカメラの焦点深度が浅いため、ワイヤの頂上付近の極一部を示すも

Fig. 4 Bitter patterns of Co-Si-B amorphous wires at remanent state (a), and with axial dc current of 50 mA (b), 200 mA (c).

のである。円周磁界は、ワイヤに直流電流を流すことにより印加した。以前報告したように、正磁歪を有する($\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x$)基ワイヤは、 $x=0\sim 0.9$ の範囲でワイヤ全面に迷路状磁区様を示すが²⁾、Co ワイヤは、ワイヤ軸と直角方向に直線状の磁壁が走った、バンパー状の磁区模様を呈する。磁壁間隔は $20\mu\text{m}$ 程度である。直線状磁壁から、ワイヤ表面磁区内で磁化は円周方向に閉磁路を形成していることが推測される。このことは、円周磁界印加時の磁区模様の変化からも確認された。ワイヤ軸方向に 50 mA の直流電流を印加すると磁壁間隔が変化し (b)、200 mA の電流で、ワイヤ表面は飽和し、単磁区を呈する (c)。また、ワイヤ軸方向に低磁界を印加した時に生じられるバルクハウゼン跳躍の前後で、(a) に示す残留磁化状態の磁区模様は変化しないことが確認された。このことから as-quenched の Co ワイヤは、Fig. 5 に示すような、シェル磁区とコア磁区からなる磁区構造を有することが推測される。バルクハウゼン跳躍はコア磁区内で生じる。コア軸の直径は、残留磁化と飽和磁化の比から $70\mu\text{m}$ 程度と推測される。

Co ワイヤのバンパー状磁区模様と Fe ワイヤの迷路状磁区模様が磁歪を通じて、ほぼ同一の残留応力分布を反映していると考え、as-quenched のアモルファスワイヤは、ワイヤ放射方向に張力を蓄えていることが推測される。この張力は、液中急冷法における溶湯のユニークな凝固過程で導入されるものと考えられる。すなわち、液体金属ジェットが回転液中に噴出された時、

Fig. 5 Domain structure expected for Co-Si-B amorphous wire.

Fig. 6 Residual stress distribution and easy axes of magnetization induced by stress for Co and Fe wires.

ジェット表面は瞬時に固化され、固体ワイヤの直径が決定される。凝固が外周から内部に進行するに従い、収縮が起こるが、外周が固化されているため、ワイヤ放射方向に張力が残留するであろう。Fig. 6 は化学エッチングを施したワイヤについて、軸方向に磁界を印加して測定した磁化曲線から評価した磁気異方性: K のワイヤ径依存性である。各線径において、 $10\mu\text{m}$ ほどのエッチングによる K の変化分を単位体積当たりの値に直して示している。Co, Fe ワイヤいずれの場合も、異方性は外周に近い部分で大きく、中心にいくに従って減少する。凝固は外周から内部に進むため、急冷速度、したがって、残留応力は外周で大きく、内部で減少するであろう。Fig. 6 の K の変化は、想定した液中急冷法におけるワイヤの凝固過程をよく反映していると思われる。

Fig. 7 に示すような、放射状の残留張力下では、Co ワイヤには、円周方向とワイヤ軸方向に、Fe ワイヤには放射方向に磁化容易軸を持つ異方性が誘起されたが、Fig. 5 に示す Co ワイヤのコア磁区の形成には、応力による異方性ととも、ワイヤの形状効果が寄与していると考えられる。すなわち、ワイヤ端部の磁極による静磁エネルギーを低下させる観点からは、ワイヤ全体が、磁化が円周方向で閉じるシェル磁区で占められる方が安定であ

Fig. 7 Change in anisotropy constant in cross section of Co and Fe wires.

ろう。しかし、シェル磁区は交換エネルギーを蓄えており、このエネルギーは、円周方向で一周するスピン間の回転角が大きくなる中央部で増大する。このため、ワイヤ中心に近い部分の磁化はワイヤ軸方向にそろい、コア磁区を形成するものと考えられる。同様な形状効果は、Fe ワイヤのコア磁区²⁾の形成にも働いているものと思われる。Fe ワイヤは放射状の磁化容易軸を有するため、内部磁化は放射方向に配列し、ワイヤ表面で磁化が還流する迷路状磁区を形成するが、放射状磁化磁区内には、ワイヤ中心からの距離に逆比例した磁極が分布するため、ワイヤ中心部は大きな静磁エネルギーを蓄えることになる。この静磁エネルギーを低下させるためワイヤ中心部の磁化はワイヤ軸に向かうとし、コア磁区を形成するものと考えられる。

一般に、軟質磁性体が顕著なバルクハウゼン跳躍を示すためには、逆磁区生成磁界が磁壁抗磁力に比較し、十分に大きいことが必要である。結晶質材料においては、磁歪線に軸方向に張力を印加することによりバルクハウゼン跳躍が観測されている^{3), 4)}。軸方向張力は磁気弾性効果による異方性を通じて、磁壁エネルギー、したがって、逆磁区生成磁界の向上とともに、軸方向の磁化成分を作り出すことにも寄与する。アモルファスワイヤにおいては、放射方向の張力が逆磁区生成磁界を増加させ、ワイヤの形状効果と相まって軸方向磁化成分をつくり出し、バルクハウゼン跳躍に寄与しているといえるであろう。

3.3 逆磁区伝播速度

Fig. 8 は Co ワイヤのワイヤ軸方向の逆磁区伝播速度: V_{ax} 、及び、 V_{ax} の伝播磁壁面に垂直な方向の成分: V_n の外部駆動磁界依存性を、Fe ワイヤの値と比較したものである。 V_n は伝播する逆磁区の先端の形状をコンカル状とみなし、実測した磁区先端の長さ、コア磁区径から算出した。磁区先端長は Co ワイヤで 4.8~6.2 cm, Fe ワイヤで 6.1~6.8 cm であった。 V_{ax} , V_n は駆動磁界の増加で直線的に増加する。直線の傾きは易動度: μ を与える。Co ワイヤの μ_{ax} , μ_n は、各々、 6.2×10^5 , 3.3×10^2 cm/s·Oe であり、Fe ワイヤの μ_{ax} , μ_n よりそれぞれ約 4 倍ほど大きい。 μ_n を使用すると、Fig. 3 に示すバルクハウゼン跳躍に伴う $d\Phi/dt$ 電圧 e_p は、 $e_p \propto \mu_n \cdot M_s \cdot (H_n - H_w)^2$ で表される。ここで、 M_s : 飽和磁化、 H_n : 逆磁区生成磁界 (Fig. 1 における保磁力)、 H_w : 磁壁抗磁力、 r : コア磁区半径である。Co, Fe ワイヤで Fig. 8 における H_w を各々 20 mOe, 30 mOe とし、Co ワイヤで $M_s = 560$ G, $H_n = 58$ mOe, $r = 70 \mu\text{m}$, Fe ワイヤで 1270 G, $H_n = 93$ mOe, $r = 90 \mu\text{m}$ を使用して、 $e_p(\text{Co})/e_p(\text{Fe})$ の

Fig. 8 Reverse domain propagation velocity as a function of drive field for Co and Fe wires.

比を取ると約 0.48 となり、実測値 0.5 に近い値となる。以上のことから、Co ワイヤが Fe ワイヤより数倍大きい逆磁区伝播速度を有するにもかかわらず、低い e_p 電圧を示す主な理由は、低磁化、小さいコア磁区径の他に、逆磁区生成磁界が低いことによるといえるからであろう。

4. む す び

液中急冷法による Co-Si-B アモルファスワイヤの諸特性について検討したが、結果は次のように要約される。

1) Co ワイヤは大きなバルクハウゼン跳躍を示し、これに伴うマチュウ電圧は Fe ワイヤの値の 2 倍程度に大きい。2) Co ワイヤはバンブー状の磁区模様を呈する。これは放射状の残留張力によるものであり、残留張力はワイヤの形状効果と相まって、バルクハウゼン跳躍の発生に寄与する。3) Co ワイヤは大きな逆磁区伝播速度を示す。その大きさは Fe ワイヤの値の 4 倍程度であるが、バルクハウゼン跳躍によりコイルに誘起される、Co ワイヤの $d\Phi/dt$ 電圧は、低磁化、コア磁区径が小さい、逆磁区生成磁界が小さい、などの理由により、Fe ワイヤの値より小さい。

文 献

- 1) K. Mohri: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-20**, 924 (1984).
- 2) 山崎, 毛利, 真部, 河村: 電気学会研究会資料: MAG-85-98 (1985); 木下, R. Malmhäll, 真部, 川本, 毛利, 山崎: 日本応用磁気学会誌, **10**, 253 (1985).
- 3) K. J. Sixtus and L. Tonks: *Phys. Rev.*, **37**, 930 (1931).
- 4) L. J. Dijkstra and J. L. Snoek: *Philips Res. Rep.*, **4**, 334 (1949).

1987 年 12 月 14 日受理, 1988 年 2 月 12 日採録