Fe-Al-Si-Ni-Zr-B 微結晶合金の軟磁気特性

Soft Magnetic Properties of Microcrystalline Fe-Al-Si-Ni-Zr-B Alloys

長 勤・五十嵐雅昭・成宮義和

TDK(株)開発研究所, 市川市東大和田 2-15-7 (〒272)

T. Chou, M. Igarashi and Y. Narumiya

R & D Center, TDK Corporation, 15-7, Higashi-owada 2-chome, Ichikawa 272

The magnetic properties of Zr- and B- added Supersendust (Fe-Al-Si-Ni) alloy ribbons were studied. Although the ribbons became brittle and their magnetization decreased with an increase in Zr and B addition to the Supersendust, their soft magnetic properties improved. Ribbons with ductility after melt quenching and fairly low coercivity after annealing were obtained by the addition of about 1.5 at% Zr and 8 at% B to the Supersendust. The structural change from an amorphous to a microcrystalline state led to a decrease in the magnetostriction and coercivity and an increase in the initial permeability. Microcrystalline $\text{Fe}_{69.7}\text{Al}_7\text{Si}_{9.8}\text{Ni}_4\text{Zr}_{1.5}\text{B}_8$ alloy exhibited a fairly high permeability of about 25,000.

Key words: Supersendust, high permeability, microcrystalline, melt quenching

1. はじめに

微細結晶粒よりなる Fe-Cu-Nb-Si-B 合金, Fe(-Cu)-Zr-B 合金などで優れた軟磁気特性が得られることが知られている^{1)~4)}。これらの合金系では非晶質薄帯を結晶化させて微細結晶粒組織とすることにより結晶磁気異方性の著しい増大を防ぐと同時に磁歪の小さな状態を実現できるため優れた軟磁性が得られると考えられている^{4)~6)}。

したがって、微細な結晶相を磁歪が零で結晶磁気異方性がより小さな合金系で置き換えることができればさらに軟磁性を向上させることが期待される。本研究では、スーパーセンドラストおよびこれに Zr と B を添加した組成系について磁気特性、脆さおよび構造の合金組成、熱処理温度依存性を調べ、トロイダルコアに加工できる範囲において優れた軟磁性を得る条件を検討した。

2. 実験方法

実験に用いた合金薄帯はアーク溶解法にて作製した母合金を 2×10^{-3} Torr の真空中で液体急冷して得た。薄

帯の脆さは 180° 折曲げ試験により評価した。

まず、スーパーセンドラスト ($\text{Fe}_{79.9}\text{Al}_{7.5}\text{Si}_{10.8}\text{Ni}_{2.8}$) 合金およびこの合金の一部を 6 at% 以下の Zr, 12 at% 以下の B で置き換えた組成の磁気特性および脆さを調べ、次に、B を 8 at% 添加した Fe-Al-Si-Ni-Zr-B 合金に対し Ni 添加量を 1, 2, 3, 4, 7, 10 at% と変化させた合金, Al 添加量を 0, 3.5, 7, 10.5 at% と変化させた合金および Cu を 1 at% 添加した合金の合金元素添加効果を調べた。

薄帯は窒素ガス雰囲気中で熱処理を行い、VSM, 直流 BH ループトレーサで飽和磁化、保磁力を測定し、微小磁化回転法を用いて磁歪を測定した。結晶粒径は TEM 像および XRD ピークの半値幅より求めた。

3. 実験結果および考察

3.1 スーパーセンドラスト薄帯の磁気特性

板厚約 20 μm のスーパーセンドラスト薄帯は as quench で約 1 μm の多結晶粒組織を示す。この薄帯の保磁力および磁歪の熱処理温度依存性を Fig. 1 に示す。

急冷後では保磁力が約 2 Oe と大きく高温で熱処理を施すことにより保磁力、磁歪ともに低下してバルクで報

Fig. 1 Dependence of the coercivity and magnetostriction on the annealing temperature for Supersendust.

Fig. 2 Ribbon thickness in a ternary Supersendust-Zr-B alloy system.

Fig. 3 Minimum coercivity in the ternary Supersendust-Zr-B alloy system.

告されている値⁷⁾に近づく傾向を示した。

3.2 スーパーセンドラストへの Zr, B 添加効果

得られた薄帯の板厚と非晶質化した範囲を Fig. 2 に示す。Zr, B 添加量が多いほど容易に非晶質化する。また、Zr 添加量が多くなると石英ノズルから噴出させるのがむずかしくなり、薄い薄帯を得るのが困難になる。

室温から 600°C の温度で熱処理を施して得られた最小の保磁力の合金組成依存性を Fig. 3 に示す。Zr, B 添加量が多いほど保磁力が小さくなる。また、Fig. 2 と比較すると、この組成系では急冷状態で結晶化している場合でも著しい保磁力の増大が観察されないという特長を示す。したがって、この組成系では異方性の大きな相が析出しにくいと考えられる。

飽和磁化および脆さの合金組成依存性を Fig. 4 に示す。Zr 添加量が多くなると飽和磁化が減少し、同時に脆

Fig. 4 Saturation magnetization and brittleness in the ternary Supersendust-Zr-B alloy system.

Fig. 5 Dependence of the initial permeability, coercivity, magnetostriction, and average grain size for [Supersendust]₉₀Zr₂B₈ alloys.

くなる。以上より、Zr を約 2 at%, B を約 9 at% 添加した合金がトロイダルに加工可能で比較的飽和磁化が高く、低保磁力であるという条件を満たす。

[Supersendust]₉₀Zr₂B₈ 合金薄帯の初透磁率、保磁力、磁歪および平均粒径の熱処理温度依存性を Fig. 5 に示す。450°C より高い温度で約 130~200Å の微結晶となり、同時に磁歪が低下した。これに伴い保磁力が減少し、初透磁率が増大した。しかし、初透磁率の最高値は 20,000 程度であり Fe-Cu-Nb-Si-B 合金の値 (100,000)

Fig. 6 TBM image of a [Supersendust]₉₀Zr₂B₈ ribbon annealed at 500°C for an hour.

Fig. 7 Dependence of the coercivity on Zr addition for [Supersendust]_{92-x}Zr_xB₈ alloys.

と比較するとかなり小さい。この原因として、透磁率が最大値を示す 500°C の熱処理温度において磁歪が約 10×10^{-6} と比較的大きいことが考えられる。

500°C で熱処理を施した薄帯の TEM 像を Fig. 6 に示す。この合金ではやや多くの非晶質相が観察される。約 200Å の微細な結晶相がやや多い非晶質相の中に均一に分散しているのがこの合金系の特徴であり、磁歪が大きいのはこの非晶質相に起因すると考えられる。微細な析出相の格子定数はアーク溶解で作製した Supersendust インゴットの格子定数と有意差が認められなかった。微細な析出相では規則格子を示す X 線回折ピークが認められなかったことにより α 相になっていると推定される。600°C で熱処理を施した場合には、磁歪が小さい微細結晶粒組織となるが X 線回折チャートにホウ化物と推定されるピークが現れることにより、この温度での保磁力の著しい増大は、高保磁力相の出現による異方性の

Fig. 8 Dependence of the average grain size on the annealing temperature for Fe_{73.88-x}Al_{6.81}Si_{9.81}Ni_xZr_{1.5}B₈ ($x=0\sim7$) alloys.

Fig. 9 Dependence of the coercivity and initial permeability on Ni addition for Fe_{73.88-x}Al_{6.81}Ni_xZr_{1.5}B₈ alloys.

増大によると考えられる。

3.3 Fe-Al-Si-Ni-Zr-B 合金の組成の最適化

室温から 600°C の温度で熱処理を施して得られた最小保磁力の Zr 添加量依存性を Fig. 7 に示す。Zr 添加量を増加させると脆くなるため、Zr 添加量を 1.5 at% に固定してその他の添加元素の最適添加量を求めた。

Fig. 8 に Fe_{73.88-x}Al_{6.81}Si_{9.81}Ni_xZr_{1.5}B₈ 合金の平均粒径の熱処理温度依存性を示す。熱処理温度 500~600°C では Ni 添加量に伴い粒径が減少した。また、Ni 添加量が 7 at% 以上ではさらに粒径が小さくなる傾向は認められなかった。微細結晶粒組織を示す合金の場合、結晶粒径の小さい方がマクロな結晶磁気異方性 (K) を小さくするのに有利であるが⁵⁾、粒径がある程度小さくなると他の要因が軟磁性に与える影響が強くなる。最適熱処理温度における保磁力および初透磁率の Ni 添加量依存性を Fig. 9 に示す。初透磁率の値は Ni 添加量 4 at% 程度で極大を示すと推定される。

Fig. 10 Dependence of the coercivity and average grain size on the annealing temperature for $\text{Fe}_{76.7-x}\text{Al}_x\text{Si}_{9.8}\text{Ni}_4\text{Zr}_{1.5}\text{B}_8$ alloys.

Fig. 11 Dependence of the coercivity and average grain size on the annealing temperature for $[\text{Supersendust}]_{90-x}\text{Cu}_x\text{Zr}_2\text{B}_8$ alloys.

次に Al の添加効果を調べた。Al 無添加の場合は石英ノズルからの噴出が困難であり、10.5 at% 添加した場合は、結晶粒径 $0.1 \mu\text{m}$ 以上の粗大結晶粒となり軟磁性は得られなかった。 $\text{Fe}_{76.7-x}\text{Al}_x\text{Si}_{9.8}\text{Ni}_4\text{Zr}_{1.5}\text{B}_8$ 合金で Al 添加量を 3.5 および 7 at% と変化させた場合の保磁力と平均粒径の熱処理温度依存性を Fig. 10 に示す。Al 添加量が 3.5 at% よりも 7 at% の方が結晶粒径、保磁力ともに小さい。したがって Al 添加量 7 at% 付近で保磁力が極小になると推定される。

Cu を添加すると結晶化温度が低下し、非晶質相中への α 相均一析出の促進を期待できるので^{2), 8)}、Cu を 1 at% 添加する効果を調べた。 $[\text{Supersendust}]_{90-x}\text{Cu}_x$

Zr_2B_8 合金の保磁力、平均粒径の熱処理温度が依存性を Fig. 11 に示す。Cu を 1 at% 添加することで、結晶粒径、保磁力ともに減少して軟磁性が改善されるが、薄帯が脆くなるという欠点がある。

4. 結 論

1) 急冷直後のスーパーセンドラスト薄帯は保磁力が約 2 Oe と大きく、高温で熱処理を施すことにより保磁力、磁歪ともに低下し、バルクの値に近づく傾向を示した。

2) スーパーセンドラスト組成へ添加する Zr, B の添加量を増加すると飽和磁化が減少すると同時に脆くなる。一方、保磁力は Zr, B の添加量に伴い低下する。

3) 500°C で熱処理を施した微細結晶粒組織の TEM 像では、やや多くの非晶質相が存在し、この中に約 $200 \text{ \AA}$ の微細結晶粒が均一に分散している組織が観察された。したがって、非晶質相が磁気特性に大きな影響を与えていると考えられる。

4) 薄帯をトロイダルに加工できる組成範囲では $\text{Fe}_{69.7}\text{Al}_7\text{Si}_{9.8}\text{Ni}_4\text{Zr}_{1.5}\text{B}_8$ 合金で最大の初透磁率 25,700 が得られた。

謝 辞 最後に本研究の機会を与えてくださった TDK (株) の斎藤俊次郎取締役に深く感謝致します。併せて、TEM 像を撮ってくださった素材解析動の内田信也殿に感謝致します。

文 献

- 1) 吉沢克仁, 小熊 繁, 山内清隆: 日本金属学会春季大会講演概要集, p. 393 (1988).
- 2) Y. Yoshizawa, S. Oguma and K. Yamauchi: *J. Appl. Phys.*, **64**, 6044 (1988).
- 3) K. Suzuki, N. Kataoka, A. Inoue, A. Makino and T. Masumoto: *Mater. Trans. JIM*, **31**(8), 743 (1990).
- 4) 山内清隆, 吉沢克仁, 杉原はさき: 電子情報通信学会技術報告, **PE88-21**, 43 (1988).
- 5) G. Herzer: *IEEE Trans. Magn.*, **25**, 3327 (1989).
- 6) O. Kohmoto, N. Uchida, E. Aoyagi, T. Chou and K. Hiraga: *Mater. Trans. JIM*, **31**, 820 (1990).
- 7) 山本, 移川: 日本金属学会誌, **40**, 975 (1976).
- 8) S. Budurov, T. Spassov, G. Stephani, S. Roth and M. Reibold: *Mater. Sci. Eng.*, **97**, 361 (1988).

1992 年 11 月 18 日受理, 1993 年 2 月 2 日採録