C o 基アモルファスリボンの熱処理による特異な応力磁化特性変化

Peculiar Effect of Heat Treatment on the Stress-magnetization of Co-Based Amorphous Ribbons

石見芳夫・岡崎靖雄・齊藤皓彦*

岐阜大学工学部電気電子工学科、岐阜市柳戸1-1 (〒501-1193)

*福岡女学院大学、福岡市南区日佐3-42-1 (〒811-1313)

Y. Iwami, Y. Okazaki and A. Saito*

Department of Electrical and Electronic Engineering, Faculty of Engineering, Gifu University, 1-1 Yanagido, Gifu 501-1193

*Fukuoka Jo Gakuin University, 3-42-1 Osa, Minami-ku, Fukuoka 811-1313

The stress-magnetization properties of Co-based amorphous ribbons due to heat treatment were investigated. A sample was annealed with a longitudinal magnetic field applied to its ribbon axis. Examination of the stress-magnetization change revealed a stress-insensitive region that depended on the annealing temperature. To apply further stress, the magnetization of the sample was decreased to zero. However, examination of the magnetization change revealed a unique behavior due to a stress application at a lower exciting magnetic field (< 5 A/m). The stress-magnetization change showed irreversibility, with a maximum slightly larger than the initial magnetization value while the stress was decreased and then restored to the initial value. The results could be interpreted as implying a model of combined effects: a magnetic field parallel to the ribbon axis, an induced anisotropy field due to field annealing, and magnetoelastic anisotropy due to the applied tensile stress.

Key words: Co-based amorphous ribbon, stress-magnetization, heat treatment, induced anisotropy, magnetoelastic anisotropy.

1. はじめに

アモルファス磁性材料は結晶磁気異方性をもたないため、その磁気特性は主として磁歪で決定され、応力によって大きく変化を受ける。また磁界中あるいは無磁界中熱処理を施すことにより、アモルファス磁性材料に異方性を誘導し、その磁気特性を大きく変化させることにより各種センサーに応用する試み¹⁾や、高透磁率、低エネルギー損失の特性を持つことから、スイッチング素子やトランス磁心材料などに広く使われている。このように電力利用からマイクロな機能素子利用にいたるまで広汎な応用が期待されている軟磁性アモルファスリボンの磁化機構についてはまだ十分に解明されているとは言えない。特に応力磁化特性変化については、負の飽和磁歪定数を持つ試料について無磁界中あるいは磁界中熱処理を行うことにより、張力印加において磁化の増加する特性が現れる²⁾ことが報告されており、その機構についての解明が望まれている。C o 基アモルファ

スリボンにおいて磁歪定数が熱処理温度によって負から正に変化するが、300℃までの熱処理温度では、磁歪定数はまだ負の値を保っていることが報告されている³⁾。

本研究は、アモルファスリボンの応力磁化機構を理解する目的で僅かに負の飽和磁歪定数を持つC o 基アモルファスリボンについて、リボン軸方向磁界中熱処理を行い、特に低励磁界(1.5 A/m)での応力磁化特性の変化を調べたものである。また、応力印加による保磁力および残留磁化の変化と応力磁化特性変化で見られる磁化上昇の出現について検討した。

2. 試料ならびに実験方法

試料はC o 基アモルファスリボン METGLAS 2705M を用いた。試料の構成成分は $\text{Co}_{69}\text{Fe}_4\text{Ni}_1\text{Mo}_2\text{Si}_{12}\text{B}_{12}$ である。物理定数については Table 1 に示してある。試料サイズは厚さ $20\mu\text{m}$ 、幅 25mm 、であり試料長さは 400mm として使用した。試料はアルゴンガス雰囲気中、リボン軸方向に磁界(4400A/m)を印加し一定温度で1時間の熱処理を行い、炉冷した。飽和磁歪定数の測定はSAMR測定法⁴⁾をもちいた。X線分析、XPSを用い試料表面および近傍で試料の酸化や結晶化が起きていないことを確認した⁵⁾。応力磁化測定に用いた測定装置の概略図をFig.1に示す。試料に一定励磁磁界を与える励磁コイルの中に補償コイルを含む検出コイルがあり、アモルファスリボンは検出コイルを通して一端を移動板に、他端をロードセルに強く固定してある。移動板はハンドルを回すことにより準静的に移動しリボンに均一な張力を与えるようにしてある。応力による試料の磁化変化を磁束計を通じてX-Yレコーダで記録させた。

Table 1. Physical constants of the sample used.
(Allied Co.)

	I_s (T)	T_c (°C)	T_x (°C)	$\lambda_s \times 10^{-6}$
METGLAS 2705M	0.78	365	535	-0.2

Fig. 1 Tension-applying apparatus.

3. 実験結果と考察

Fig. 2 は試料 2705M についてリボン軸方向磁界中熱処理による熱処理温度の違いによる応力磁化特性変化を示したものである。測定は励磁磁界強度 80 A/m 一定で行った。熱処理前 (AS-CAST) 試料の応力磁化特性は熱処理温度 100℃ での応力磁化変化とほぼ同じような変化を示している。熱処理温度が高くなると 220℃ で 150 MPa, 250℃ で 400 MPa, そして 300℃ では 700 MPa 程度まで応力非依存領域が拡大しているのが分かる。さらに張力印加していくと磁化は減少していく。

Fig.3 にリボン軸方向磁界中 220℃ 熱処理試料における応力磁化変化の測定励磁磁界 1.5 A/m ~ 80 A/m に変えて測定した結果を示す。挿入図はヒステリシス曲線上での測定箇所を示している。Fig.3 に見られる様に応力非依存領域

Fig. 2 Stress-magnetization loci of the sample annealed in a longitudinal magnetic field applied along its axis at temperatures of 100°C, 220°C, 250°C, and 300°C.

域を示す応力は励磁磁界強度によらず、およそ 150 MPa 程度である。また、低励磁界 (1.5 A/m ~ 5 A/m) では応力磁化特性に僅かながら磁化の増加している領域が観測された。

Fig.4 は Fig.3 における励磁磁界 1.5 A/m での応力磁化特性変化を示した。張力印加による初期段階で応力非依存領域が存在し、更に張力の印加により磁化は減少していく。しかしながら、張力除去過程における磁化の増加は可逆的に戻らずに、ピーク値を持って初期の磁化量に戻るヒステリシスを示す特異な現象が現れる。尚、熱処理温度 300℃ の試料で飽和磁歪定数が -0.1×10^{-6} であることを SAMR 測定にて確認している。また、励磁磁界が 1.5 A/m と小さいことから、地磁気などの影響が考えられるが、測定装置をアモルファスリボン軸が東西になるように設置しても、応力磁化特性に大きな影響を与えず、地磁気の影響でないことを確認している。

Fig. 3 Stress-magnetization changes in a sample annealed at 220°C in a longitudinal magnetic field. The inset shows solid circles at points where the magnetization changes were measured on the hysteresis loop.

Fig. 4 Stress-magnetization change measured at of 1.5 A/m exciting magnetic field in the sample annealed at 220°C in a longitudinal magnetic field.

Fig. 5 Hysteresis loops of a sample annealed at 220°C in a longitudinal magnetic field. The loops were obtained under the indicated stress applications.

Fig. 5 に、220°C 熱処理試料に張力を印加したときのヒステリシス曲線の変化を示す。励磁磁界 20 A/m での磁束密度 (B_{20}) は張力印加 200 MPa から減少している。保磁力 (H_c) は張力印加の初期段階 (<200 MPa) で僅かに減少するが、300 MPa から増大している。張力印加値が 200 MPa から試料のヒステリシス曲線にバルクハウゼン跳躍が見られ、磁壁移動が起きていていると考えられる。特に、300 MPa では顕著に現れている。400 MPa では磁化回転が主であるようなヒステリシス曲線を示している。この様に、張力を印加したヒステリシス曲線に磁壁移動や磁化回転に関する変化が見られている。

Fig. 6, 7, 8, にそれぞれ 220°C で磁界中熱処理を行った試料について、磁束密度 (B_{20})、保磁力 (H_c)、残留磁化 (B_r) の変化についてまとめたものを示してある。同時に、熱処理温度の影響を比較できるように、250°C, 280°C で磁界中熱処理を行った結果についても示してある。

Fig. 6 に示す、 B_{20} の張力印加による変化は、Fig. 2 に見られる応力非依存領域に対応しているものと考えられる。また、Fig. 7 に見られる保磁力の変化についても B_{20} の変化と同様に応力非依存領域に対応しているものと考えられる。Fig. 8 は残留磁化の変化について示したものである。

Fig. 6 Magnetization (B_{20}) changes in samples annealed at 220°C (▲), 250°C (■), and 280°C (●) due to stress application.

Fig. 7 Coercive force changes in samples annealed at 220°C (▲), 250°C (■), and 280°C (●) due to stress application.

Fig. 8 Residual magnetization changes in samples annealed at 220°C (▲), 250°C (■), and 280°C (●) due to stress application.

Fig. 9 Configuration of the three factors in the induced anisotropies.

Fig. 10 Schematic model of the stress-magnetization change.

熱処理温度 220℃の試料で 400 MPa 付近に顕著なピークが現れ、熱処理温度 250℃では 700 MPa 付近にピークが出現している。リボン軸方向に磁界印加して熱処理をした場合、残留磁化の変化は無磁界中熱処理を行った場合²⁾と同様な変化を示している。

以上の実験結果より、応力磁化機構に関係する要因として 3つのパラメータを考慮した。Fig. 9 に示す様に、励磁磁界が及ぼすリボン軸方向の磁界 ($H_{//}$)、張力印加による弾性磁気異方性 (H_{σ})、そして試料内部に製造時より存在する内部応力と熱処理により誘導される磁気異方性 (H_a) である。 H_a はリボン軸方向磁界中熱処理により軸方向に誘導されている⁶⁾。

Fig. 10 に Co 基アモルファスリボンの応力磁化変化のモデル図を示す。Fig. 2, 3, 4 に見られる、応力による磁化変化曲線から、磁化の変化しない領域 (I)、磁化の減少あるいは上昇が出現する領域 (II)、そして更なる応力印加により磁化が単調に零に漸近する領域 (III)、の 3つの領域を仮定した。図中の H_{a1} は試料の各熱処理温度によって誘導される異方性の大きさとする。領域 I は、 $H_{a1} > H_{\sigma}$ ($\sigma < \sigma_1$) の状態であり、リボン軸方向熱処理による誘導異方性が強く、応力印加による磁化の減少が妨げられている領域であり、応力非依存領域に対応する。領域 II は、 $H_{a1} \leq H_{\sigma}$ ($\sigma_1 < \sigma < \sigma_2$) の関係にある、応力印加による磁化の減少、あるいは応力の脱却による磁化の上昇が起きる領

域である。Fig. 4 の 150 MPa から 500 MPa の応力範囲での磁化変化は、Fig. 5 に見られるように 300 MPa 付近でバルクハウゼン跳躍が顕著に現れ、400 MPa では磁化回転が見られていることから、この領域 II では磁壁移動と磁化回転が混在している状態と考える。領域 III では $H_{a1} \ll H_{\sigma}$ ($\sigma_2 < \sigma$) の状態にあるとする。領域 III では磁化の変化は磁化回転が優勢な領域である。

応力印加において、 H_{σ} が H_a を上回る (領域 II) 状態になると、軸方向に並んでいた磁壁の移動が起こる。リボン幅方向に異方性をつけた試料において、磁化困難軸 (リボン軸方向) に励磁磁界を大きくしていくと残留磁化状態でリボン幅方向に並んでいた磁区および磁壁がリボン軸方向に再配列する過程で過渡段階として細分化されることが観察されている⁶⁾。軸方向磁界中熱処理では十分大きな応力印加により磁化はリボン幅方向に揃うことから、領域 II での磁壁移動は磁区および磁壁の細分化を伴うものと考えられる。応力減少過程では、この逆の過程が進行するものと考えられる。このような過渡段階でリボン軸方向である励磁磁界方向に磁化の増加が現れるものと考えられる。

しかしながら、応力印加により磁化の増加する特異な現象については、まだ良く分かっていないのが現状である。応力印加による磁化機構の解明には磁区の変化を明らかにすることが重要である。

4. まとめ

軸方向磁界中熱処理を行った負磁歪 Co 基アモルファスリボンの応力磁化特性変化を調べた。低励磁界領域において応力磁化特性にヒステリシスが存在し、低励磁界領域での応力磁化特性において特異な磁化の上昇が認められた。この磁化の上昇は応力を取り去る過程で顕著に出現し、ピーク値を持つことが観測された。この特異な応力磁化機構についてモデルの検討を行った。

文献

- 1) M. Takajo, and J. Yamasaki, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **24**, 663 (2000)
- 2) A. Saito, T. Yamasaki, T. Sugawara, and S. Murashige, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **20**, 457 (1996)
- 3) M. Vazquez, J. Gonzalez and A. Hernando, *J. Magn. Mater.* **53**, 323 (1986).
- 4) K. Narita, J. Yamasaki, H. Fukunaga, *IEEE Trans. Magn.*, **16**, 435 (1980).
- 5) Y. Iwami, T. Yamasaki, T. Shimizu, M. Ohkita, and A. Saito, *Non-Linear Electromagnetic Systems (IOS Press)*, **13**, 351 (1998)
- 6) Y. Iwami, T. Hirakawa, A. Saito, and Y. Okazaki, *Papers of Technical Meeting on Magnetism, IEE Jpn. MAG-00-309*, (2000).

2001年10月9日受理, 2002年1月17日採録