

## Fe系軟磁性体中の粒界形状による磁壁ピン留め効果

山田啓介, 入江将太, 村山創, 仲谷栄伸

電気通信大学 情報理工学研究科

Depinning field of domain walls at a misaligned grain boundary in Fe-base soft magnets

Keisuke Yamada, Shota Irie, Soh Murayam, and Yoshinobu Nakatani

Graduate School of Informatics and Engineering, The University of Electro-Communications,

### はじめに

軟磁性材料は、変圧器、発電機、モーターなどの鉄心に広く用いられており、それぞれの機器の電気-磁気変換に伴うエネルギーの低減化が課題となっている。エネルギーの低減化を実現するには、低保磁力、高透磁率、低鉄損の性能を持つ軟磁性体が求められている。高透磁率、高飽和磁化を持つ材料として鉄ベースの軟磁性体材料[1]があり、さらなる性能向上を目指して多くの研究がなされている[2,3]。軟磁性体材料の保磁力機構は、磁壁移動が主な原因とされている。軟磁性体内では、磁性体を構成する粒子間(粒界)で磁壁移動がピン留めされることが保磁力の起源と考えられている[4,5]。しかしながら、軟磁性体に現れる $90^\circ$ 磁壁の粒子/粒界間での移動メカニズムや、粒界における $90^\circ$ 磁壁のピン留めメカニズムについてはまだ詳細に調べられていない。本研究では、マイクロマグネティクスシミュレーションを用いて、鉄ベースの軟磁性体において粒界形状による磁壁ピン留め及びデピンニング機構を調べた。

### 結果

使用した計算領域は、図1に示すように $x$ - $z$ 軸方向に $2048\text{ nm} \times 256\text{ nm}$ (セルサイズ: $2\text{ nm} \times 2\text{ nm}$ )とした2次元の領域とし、この構造が $z$ 方向に周期的につながっているものとした。粒界は、図1中心に白色で示された粒界幅 $\gamma_w = 4\text{ nm}$ の領域とした。粒界の形は、粒界の中心部分を頂点として折れ曲がった形状とし、その深さを $D$ とし変化させた。材料定数は $6.5\text{ wt\% Si-Fe}$ の軟磁性体の値を用いた。シミュレーション結果より、磁壁は粒界でピン留めされるが、2つの $90^\circ$ 磁壁がそれぞれ異なる磁界でデピンされることがわかった。デピンニング磁界は、粒界の深さ $D$ を増加させると減少することがわかった。これは、 $D$ の増加により $90^\circ$ 磁壁が粒界部でピンされる面積が減少するため、粒界での磁壁エネルギーの変化量が減少するためであることがわかった。また、磁壁エネルギー分布と粒界が重なる面積を調べることで、曲がった形状を持つ粒界におけるデピンニング磁界を解析的に求めることができた。

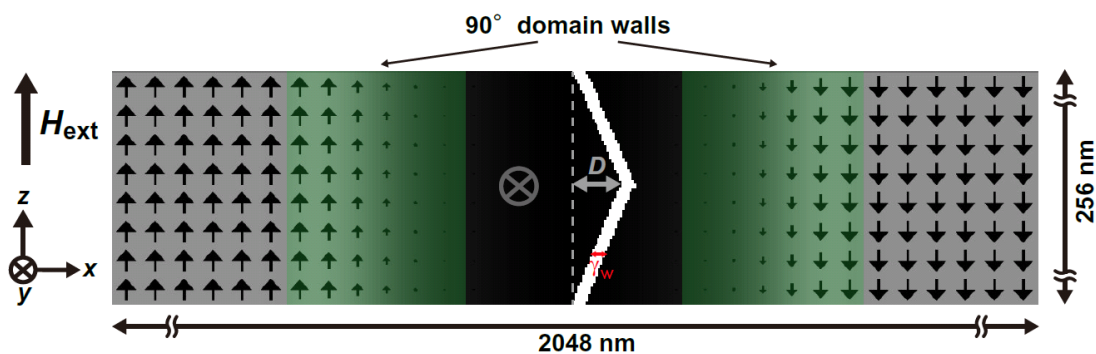


Fig. 1 Geometry of the grain boundary in the soft magnet.

### 参考文献

- [1] Y. Yoshizawa, *et al.*, *J. Appl. Phys.* **64**, 6044 (1988). [2] A. Makino, *et al.*, *Mater. Trans.* **50**, 204 (2009).  
 [3] A. Makino. *IEEE Trans. Mag.* **48**, 1331 (2012).  
 [4] C. Kaido, *et al.*, *J. Magn. Soc. Jpn.* **20**, 649, (1996).  
 [5] C. Kaido, *IEEJ Transactions on Fundamentals and Materials* **131**, 466 (2011).

# CoPd-CaF<sub>2</sub> ナノグラニューラー軟磁性膜の高周波複素透磁率に及ぼす Co と Pd との組成比の影響

直江正幸、飯塚昭光、小林伸聖、岩佐忠義  
(電磁研)

High-frequency complex permeability of CoPd-CaF<sub>2</sub> nanogranular soft magnetic films depending on CoPd nanogranule composition

M. Naoe, A. Iizuka, N. Kobayashi, T. Iwasa  
(Research Institute for Electromagnetic Materials)

## はじめに

一般的に、高い結晶磁気異方性を有する金属のスパッタ単相膜において、極めて薄くしない限り面内磁化膜を得ることは難しいが、磁性グラニューラーとしてナノグラニューラー構造へ導入することにより、結晶異方性の長距離浸透性が分断され、それを得ることができる<sup>1)</sup>。これまでの研究で、CoPd合金が最も異方性磁界の大きな面内一軸異方性膜となり、Pd=15 at. %程度の合金組成で飽和磁化と異方性磁界とのバランスが最適化され、高い複素透磁率の強磁性共鳴周波数  $f_r$  を示すことを明らかにしてきた<sup>2)</sup>。この前提の下、膜の成膜方法を静止対向スパッタからタンデムスパッタ法<sup>3)</sup>に変更すると、膜の異方性磁界は倍増し、 $f_r$ の最高値は従来の4~5 GHzから7 GHz以上に向上した<sup>1)</sup>。また、この成膜方法変更によりPdの最適量が変化することが分かった。今回、CoPdを磁性グラニューラー、CaF<sub>2</sub>をマトリックスとしたCoPd-CaF<sub>2</sub>ナノグラニューラー軟磁性膜において、CoPdグラニューラー組成が $f_r$ に及ぼす影響を調べることで、さらなる高周波化を検討した。

## 実験方法

タンデムスパッタ法では、ナノグラニューラー膜のグラニューラーとマトリックス材料の各組成、および両者の比率を制御できる。今回は、CoPdとCaF<sub>2</sub>との比率を一定とし、CoPd合金グラニューラーの組成比を、スパッタ源であるCoディスク上のPdチップ量で制御した。この時、(Co<sub>100-x</sub>Pd<sub>x</sub>)<sub>80</sub>-(Ca<sub>0.33</sub>F<sub>0.67</sub>)<sub>20</sub> (at. %)の化学式において、化学組成  $x$  を5水準で変化させた。膜厚は1 μmに揃えた。なお、成膜時には、基板を水冷(298 K)とし、磁界印加を行っていない。残留応力除去のために、160 kA/mの直流磁界を試料の面内磁化容易方向に印加し、413 Kで5 min真空熱処理した。全て室温において、膜組成をWDS、静磁化特性をVSM、直流比抵抗を四探針法、および複素透磁率スペクトルを短絡マイクロストリップライン法で測定した。

## 実験結果

CoPdとCaF<sub>2</sub>との比率は、CoPdが79.1から80.9%までばらついたが、この領域でこの程度のばらつきでは、膜特性に大きな影響を与えない。一方、化学組成  $x$  は、Pdチップ量に依存して12.5, 15.7, 20.8, 23.2, および26.2%と変化した。今回の組成制御範囲で試料は全て面内一軸異方性膜となり、CoPdグラニューラーのPd含有量と $f_r$ との関係には、Pdの増加に伴って $f_r$ が高くなる傾向が見られた。Fig. 1は、(Co<sub>0.74</sub>Pd<sub>0.26</sub>)<sub>80</sub>-(Ca<sub>0.33</sub>F<sub>0.67</sub>)<sub>20</sub>膜の面内磁化困難方向について、高周波複素透磁率スペクトルを測定した結果である。本膜の飽和磁化は0.94 T、異方性磁界は110 kA/m、比抵抗は4 μΩ·mであった。LLG方程式に基づく計算で、 $f_r$ は10.8 GHzと見積もられた。実測では11.3 GHzとなり、概ね一致した(▼)。しかし、CoディスクにPdチップを貼り付けるスパッタ源構成の転写性の影響と考えられる強度分散があるため単分散とならず<sup>1)</sup>、計算で17.9 GHzと見積もられる、より寄与度の高い第二ピークが高周波側にあることがわかる(▽)。

## 参考文献

- 1) Naoe et al., *IEEE Magn. Lett.*, **5**, #3700404 (2014).
- 2) Ohnuma et al., *J. Magn. Magn. Mater.*, **310**, 2503 (2007).
- 3) Kobayashi et al., *J. Magn. Soc. Jpn.*, **23**, 76 (1999).

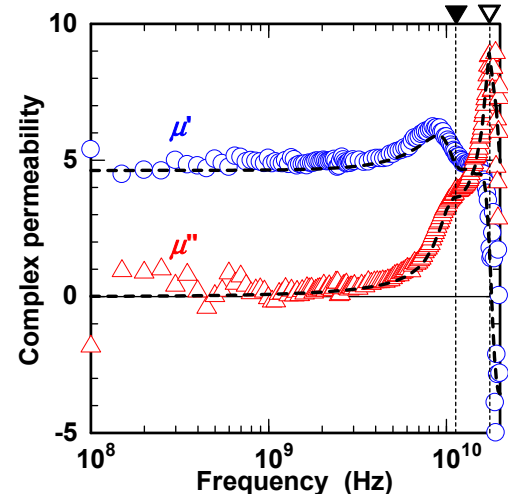


Fig. 1 Complex permeability spectra of the hard axis of (Co<sub>0.74</sub>Pd<sub>0.26</sub>)<sub>80</sub>-(Ca<sub>0.33</sub>F<sub>0.67</sub>)<sub>20</sub> film.

## FeSiBNb 薄膜の作製と磁気特性の評価

武内雄輝, 藤原裕司, 神保睦子\*, 前田浩二, 小林正  
(三重大学, \*大同大学)

Magnetic properties of FeSiBNb thin films

Y. Takeuchi, Y. Fujiwara, M. Jimbo\*, K. Maeda, T. Kobayashi  
(Mie Univ., \*Daido Univ. )

### はじめに

磁性グラニューラー薄膜の TMR を利用した GIG 磁気センサー<sup>1)</sup>では, 軟磁性薄膜をヨーク部に使用し, この漏れ磁界を利用して感度を上昇させている。我々のグループでは, 現在ヨーク部に主に用いられている a-CoFeSiB 薄膜に Hf などを微量加えることで耐熱性が向上することを報告してきた<sup>2)</sup>。しかし,  $B_s$  が 8kG 程度まで低下してしまうために, 耐熱性が高くかつさらに高  $B_s$  を示す材料が必要であると考えている。そこで本研究では高  $B_s$  が期待できる Fe 基アモルファス合金<sup>3)</sup>である FeSiB に Nb を添加したアモルファス合金薄膜を作製し, その磁気特性を評価したので報告する。

### 実験方法

試料は, マグネトロンスパッタ装置を用い, Fe ターゲットとその上に各チップ (Si,B,Nb) を数個置いて作製した。基板の温度は液体窒素利用して  $-10^{\circ}\text{C}$  程度とし, 作製した試料の膜厚は 100-300nm, 上部には保護膜として SiN 膜を 20nm 堆積させた。熱処理は真空中で行った。熱処理温度は  $200^{\circ}\text{C}$  から  $600^{\circ}\text{C}$  である。磁気特性は VSM, 構造解析は XRD, TEM を用いた。

### 実験結果

Fig.1 に FeSiBNb 薄膜の飽和磁束密度の熱処理温度依存性を示す。この FeSiBNb 薄膜の組成は, Fe : Si : B : Nb = 74.3 : 12.5 : 8.8 : 4.4 であった。 $350^{\circ}\text{C}$  までの熱処理では飽和磁束密度に大きな変化は見られなかった。 $550^{\circ}\text{C}$  より高温で熱処理すると飽和磁束密度が大きく上昇しており, 結晶化が起きているものと考えられる。Fig.2 は保磁力の熱処理温度依存性である。成膜直後の保磁力は 2.60Oe であった。熱処理温度の増加とともに保磁力は減少し,  $350^{\circ}\text{C}$  で 0.20Oe 程度となり, その後上昇した。熱処理による保磁力の低下は応力の緩和が原因と考えられるため, 磁歪定数が比較的大きな値になっていることが推察される。 $550^{\circ}\text{C}$  より高温での熱処理による保磁力の上昇は結晶化によるものと考えられる。当日は, Nb 添加量に対する依存性などを報告する。

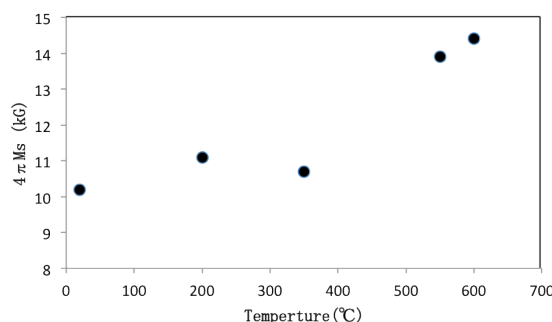


Fig.1 Dependence of the saturation magnetization on annealing temperature.

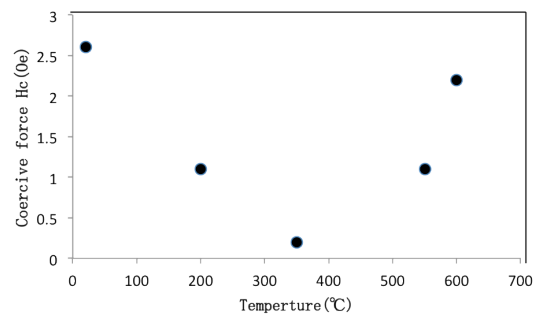


Fig.2 Dependence of the coercive force on annealing temperature.

### 参考文献

- 1) N. Kobayashi et al. : J. Magn. Magn. Mater., **188** (1998) 30.
- 2) M. Jimbo et al. : J. Appl. Phys., **117** (2015) 17A313.
- 3) 例えば K. Inomata et al.: J.Magn. Magn.Mater.,**31-34** (1983)1577.

## 厚肉 Fe 基 非晶質合金箔 の 軟磁気特性

佐藤 駿                      小山 裕太                      中村 吉男  
(SACO 合同会社)      (東工大 金属工学科) (同 材料工学専攻)

Soft Magnetic properties of Fe-base thick amorphous alloy sheets

T. Sato<sup>1)</sup>                      Y. Koyama<sup>2)</sup>      Y. Nakamura<sup>2)</sup>

1) SACO Limited Liability Company      2) Tokyo Institute of Technology

### はじめに

昨年の本学会で  $50\mu\text{m}$  厚の Fe 基非晶質合金箔が準工業規模で製造できることを報告した<sup>1)</sup>。市販の薄い箔に比べて磁気特性に遜色はなく、加工性も克服可能な範囲である。前報では as cast の磁気特性であったが、その後、アニーリング後の磁気特性を測定すると市販材 ( $25\mu\text{m}$ ) に比べて期待した特性ではなかった。以前の結果は、板厚  $50\text{--}60\mu\text{m}$  付近で鉄損は最小であった<sup>2)</sup>。そこで、入手した市販数社の磁気特性を比較して特性差の理由を明らかにする。

### 実験方法

昨年報告した  $50\mu\text{m}$  厚の準量産材 (B-1) に対して、同社で製造した  $30\mu\text{m}$  厚の試料 (B-3) および、市販 3 社 (X, Y, Z) の材料を入手した。市販材はいずれも  $20\text{--}25\mu\text{m}$  である。これらを幅  $25\text{mm}$ 、長さ  $100\text{mm}$  に切断し、磁場なしでアニーリングした。温度は  $375^\circ\text{C}$ 、保持時間は  $60\text{分}$ 、雰囲気は Ar ガスである。磁界は付与していない。磁気測定は岩通計測 (株) の SST (SY-956) を借用した。SST 値は東英工業 (株) のエプスタイン値で校正した。磁気特性の差異を解釈するため光学顕微鏡で試料の表面観察をした。特にロール面に着目した。試料によりロール面の小さな窪み (エアポケット) の大きさ、数が違うので数値化した。

### 実験結果

Fig. 1 は各試料アニーリング後の  $W$  を  $f$  に対してプロットした図である。 $W$  は  $1.3\text{T}$  における鉄損、 $f$  は測定周波数である。Fig. 1 のように B 社の試料 (以下 B) は鉄損が大きい。直線の勾配に大きな差はなく、Y 軸切片の大きさ (ヒステリシス損  $W_h$ ) が、B の鉄損が大きい理由である。そこで、 $W_h$  の大きい理由を調べた。光学顕微鏡観察の結果、B のロール面は、板厚によらずエアポケットが大きく数が多い (Fig. 2a, 2b)。エアポケットを定量化すると、鉄損との対応が明確になった。この結果から、表面 (特にロール面) のエアポケットの性状が同等ならば板厚が厚いほど鉄損低減に有利であることが予測される。

### 参考文献

1) 佐藤駿, 日本磁気学会講演概要集 2aE-11 p89(2014 年)

2) 佐藤駿, 学位論文 (東北大学 1991 年)

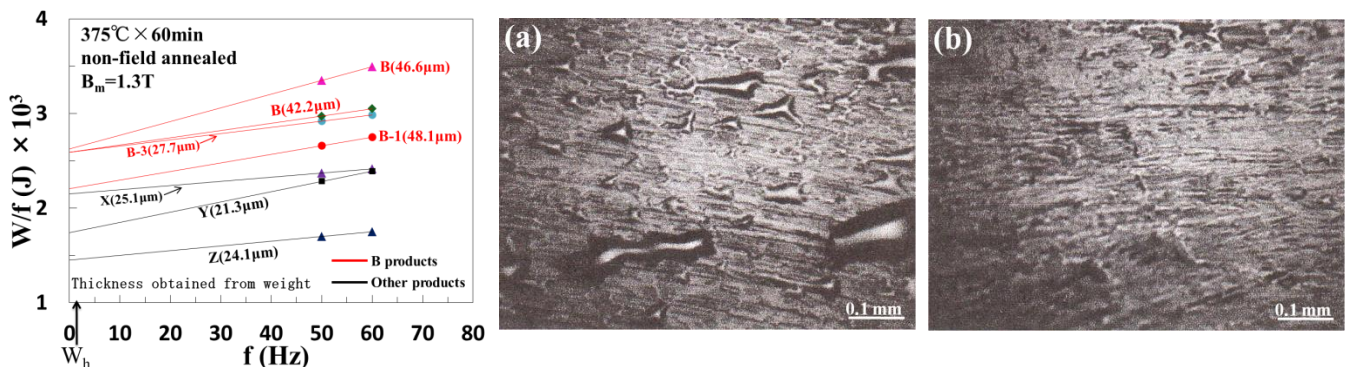


Fig.1 Core loss/frequency vs frequency. Fig.2 Photomicrographs for  $50\mu\text{m}$  (a),  $25\mu\text{m}$  (b) thick roll side.

## Fe 基非晶質合金における厚肉箔量産技術の提案

佐藤 駿

(SACO 合同会社)

### Proposal of Large -Scale Production Method for Thick Amorphous Sheet

T. Sato

(SACO Limited Liability Company)

#### はじめに

Fe 基非晶質合金において板厚が  $35\mu\text{m}$  以上の急冷箔は工業規模で生産されていなかったが、最近、 $25\text{mm}$  幅で  $50\mu\text{m}$  厚の材料が数  $100\text{kg}$  規模で製造できるようになった。現時点で  $50\text{mm}$  幅、 $50\mu\text{m}$  の材料は  $100\text{kg}$  単位で製造できる。しかし、さらに幅を広げ、板厚を大きくするには課題がある。この問題をクリアする方法を提案する。

#### 従来法の問題点

急冷箔を安定的に製造するには冷却ロールが溶湯から奪う熱量とロール内面から冷却水に排出される熱量がバランスしなければならない。しかし、板厚が  $35\mu\text{m}$  を大きくこえると困難になる。ロールの温度が casting 時間とともに上昇して箔の冷却速度が低下し、ロール表面の温度がある温度をこえると部分的に結晶化が始まる。どの位の温度で結晶が発生するか著者らは Fe ロールを使って実験している。それによれば約  $250^\circ\text{C}$  から結晶化が始まる。Fig. 1 は casting 開始からの箔の長さおよび箔の温度と鉄損の関係を示す<sup>1)</sup>。板厚は重量厚で  $20\sim 23\mu\text{m}$  の範囲にある。挿入図は casting 開始からの距離とロール温度の関係を示す。挿入図によればスタートから  $130\text{m}$  (リボン温度  $360^\circ\text{C}$ ) 付近で鉄損が増加している。これは結晶化の始まりと考えられる。 $130\text{m}$  におけるロール温度は  $250^\circ\text{C}$  であった。Cu ロールの場合も、勾配は小さいがやはり温度は上昇する。板厚が厚くなると通常の方法では冷却水により熱を奪いきれない。

#### 2 ロール法 (2 レーン法) の提案

従来、冷却ロールはシングルである。高熱伝導率の Cu 合金を用いても水の排熱量をこえる量の非晶質箔は連続的には製造できない。そこで、2つの冷却ロール<sup>2)</sup> あるいは Fig. 2 のように中央を断熱材で仕切った2つのレーンからなるロールを使う方法を考えた<sup>3)</sup>。左のレーンで casting をスタートする。板厚が厚くなると、レーン温度の上昇率は大きくなる。Fe ロールの結果が適用できると仮定すると、表面温度が  $250^\circ\text{C}$  までは casting を継続できる。 $250^\circ\text{C}$  に達する前に中止して casting を右のレーンに移す。同様に表面温度が  $250^\circ\text{C}$  までは casting を続ける。その間、左のレーンの表面温度は冷却水で冷却され室温近くに戻る。これを繰り返せばほぼ連続的に厚い非晶質箔の製造が可能である。

#### 文献

- 1) 佐藤 駿, 学位論文 p 114 (東北大学、1991年)
- 2) 佐藤 駿, 日本特許 5114241 (2012年)
- 3) 佐藤 駿, 日本特許 5270295 (2013年)

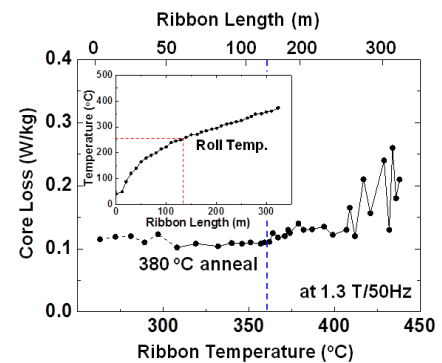


Fig. 1 Core loss vs Ribbon temperature (Inset: Roll temperature vs Ribbon length)

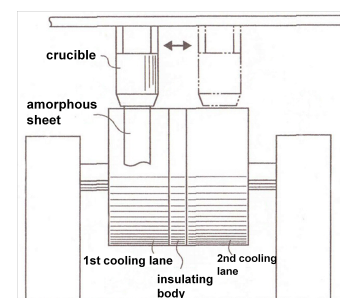


Fig. 2 Proposed two-lane alternate casting