

窒素プラズマ照射によるアモルファス箔帯の軟磁気特性

日大生産工（院）

○三柴 明寛

日大生産工

新妻 清純・移川 欣男

1. はじめに

通常の金属及び合金は原子が周期的に配列した特有の結晶構造を有している。しかし金属を高温で溶解し、その液体を超急冷すると、原子はランダムかつ密に詰まった構造に変化する。このような秩序性を持たない構造を非晶質合金またはアモルファス合金と呼んでいる。アモルファス合金の磁気的な特徴は結晶磁気異方性が非常に小さいことから軟磁気特性であり、すなわち透磁率が高く、ヒステリシス損失が小さい、渦電流損失が少なく電気抵抗率が大きい等の特徴がある¹⁾。

Fe 基合金(Fe-Si-B 系)の組成からなるアモルファス箔帯は、高飽和磁束密度および高透磁率を持つ軟磁性材料である²⁾。そこで、更なる高性能化を図るためにアモルファス磁性体に熱処理を施し、微細結晶化による軟磁気特性の向上に関する報告³⁾が成されている。そこで、本研究では Fe 系アモルファス箔帯に真空中での熱処理と窒素プラズマ照射による熱処理を施し、箔帯の微細結晶化を試み、得られた箔帯試料の磁気特性及び結晶構造について検討を行った⁴⁾。

2. 実験方法

2.1 作製方法

試料の作製には、供試料として 78mass% Fe-13mass%B-9mass%Si の組成を有する Fe 系アモルファス箔帯（三井化学(株)）を用いた。

まず、プラズマ照射処理の磁気特性との比較を行うため電気炉を用いて高真空状態での熱処理を行った。熱処理条件として、 $8.0 \times 10^{-4} \text{Pa}$ 以下まで高真空排気を行い、目標温度を 493～733 K の温度で 60min 保持した。また、プラズマ照射処理条件として、チャンバー内の圧力を $8.0 \times 10^{-4} \text{Pa}$ 以下まで高真空排気した後、 $\text{N}_2 + 30\% \text{H}_2$ 混合ガスを導入し、ガス圧を 8.0Pa 一定としてプラズマを照射した。その際に箔表面温度を 493～733K と変化させ、窒化処理時間を 1min. と一定とした。冷却処理としてプラズマ照射終了した後、真空中での自然冷却処理を行った。

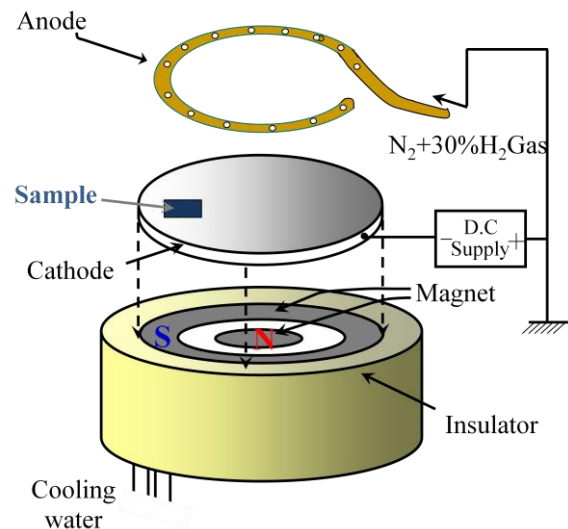


Fig.1 Schematic diagram of nitrogen plasma irradiation apparatus.

Soft Magnetic Properties of Fe-based Amorphous Foils
by Nitrogen Plasma Irradiation

Akihiro MISHIBA, Kiyozumi NIIZUMA, and Yoshio UTSUSHIKAWA

2.2 物性評価法

試料の評価方法として重量の測定にはマイクロ天秤、飽和磁化 M_s ならびに保磁力 H_c の測定には振動試料型磁力計 (VSM)、結晶構造解析には $\text{Cu-K}\alpha$ 線 ($\lambda=0.154\text{nm}$) を線源とする X 線回折装置 (XRD)、組成分析ならびに状態分析には電子線マイクロアナライザ (EPMA) をそれぞれ用いた。

3. 実験結果及び考察

3.1 熱処理による軟磁気特性

3.1.1 熱処理温度と磁気特性との関係

まず、熱処理による Fe 系アモルファス箔帯の影響を検討するために熱処理温度を $493\sim 713\text{K}$ と変化させた場合の飽和磁化値 M_s 及び保磁力 H_c における温度依存性を Fig.2 に示す。

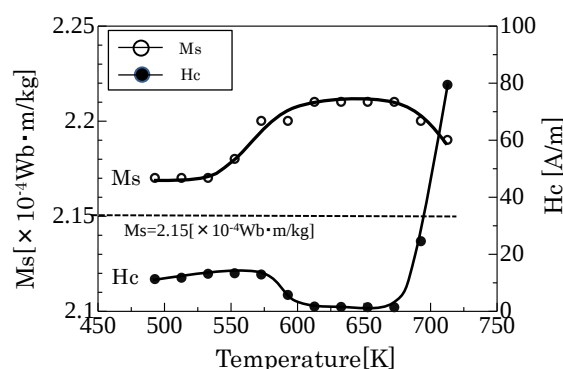


Fig.2 Dependence of M_s and H_c on heat treatment temperature.

図より供試料である Fe 系アモルファス箔帯での未処理の飽和磁化 $M_s=2.150 \times 10^{-4} \text{Wb} \cdot \text{m/kg}$ を示し、 $\alpha\text{-Fe}$ の飽和磁化 $M_s=2.74 \times 10^{-4} \text{Wb} \cdot \text{m/kg}$ の 78% では $M_s=2.137 \times 10^{-4} \text{Wb} \cdot \text{m/kg}$ となるので、 $\alpha\text{-Fe}$ の飽和磁化値とほぼ同値であることが確認された。

一方、熱処理を施すと、飽和磁化 M_s は 553K 付近から増加傾向を示し、 613K から飽和状態となり 693K から減少傾向を示し、飽

和磁化 M_s は 573K 付近において最大値 $M_s=2.213 \times 10^{-4} \text{Wb} \cdot \text{m/kg}$ を示した。また、保磁力 H_c においては 593K 付近からは減少傾向を示し、 613K から飽和状態となり 693K から増加傾向を示し、保磁力 H_c は 573K において最小値 $H_c=1.308 \text{A/m}$ を示した。以上のことから軟磁気特性が向上したのはアモルファスの構造緩和によるものと考えられる²⁾。

3.1.2 熱処理温度と結晶構造解析との関係

熱処理による Fe 系アモルファス箔帯の結晶構造の影響を検討するために熱処理温度を $513\sim 713\text{K}$ と変化させた場合の X 線回折図形を Fig.3 に示す。

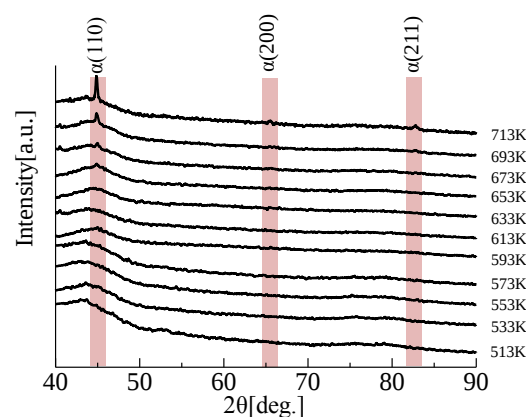


Fig.3 X-ray diffraction patterns for Fe-base amorphous foils prepared at heat treatment temperature.

図より、 633K まで回折線が認められないため 633K 以下ではアモルファス状態であることが確認された。 653K より $2\theta = 44.67^\circ$ 付近に $\alpha\text{-Fe}$ (110) 面からの回折線が認められ、再結晶化し始めたことが確認された。さらに 713K からは $2\theta = 65.18^\circ$ 付近で $\alpha\text{-Fe}$ (200) 面、 $2\theta = 82.33^\circ$ 付近で $\alpha\text{-Fe}$ (211) 面の回折線が認められたため、温度上昇に伴い結晶化が進んでいることが分かる。

3.1.3 熱処理により得られた箔帯の状態分析

電子線マイクロアナライザ(EPMA)による $N\text{-}K_{\alpha}$ 、 $Fe\text{-}K_{\alpha}$ 、 $B\text{-}K_{\alpha}$ 及び $Si\text{-}K_{\alpha}$ の特性 X 線強度の熱処理温度依存性を Fig.4 に示す。図より、いずれの試料において顕著な変化が認められず、ほぼ一定の値を示した。以上のことより、Fe 系アモルファス箔帯は熱処理による状態変化は認められなかった。

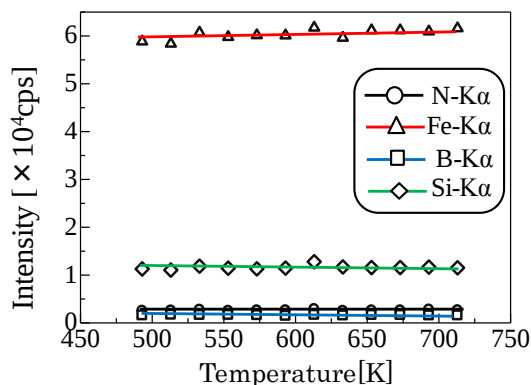


Fig.4 X-ray intensities of Fe-base amorphous foils prepared at heat treatment temperature.

3.2 窒素プラズマ照射処理による軟磁気特性

3.2.1 プラズマ照射処理温度と磁気特性との関係

次に、窒素プラズマ照射処理による Fe 系アモルファス箔帯の影響を検討するためにプラズマ照射処理温度を 493~693K と変化した場合の飽和磁化値 M_s 及び保磁力 H_c における温度依存性を Fig.5 に示す。図より、飽和磁化 M_s は 553K 付近から増加傾向を示し、593K 付近で最大値 $M_s=2.171 \times 10^{-4} \text{Wb} \cdot \text{m/kg}$ を示し、その後、減少傾向を示した。保磁力 H_c では 593K 付近から減少傾向を示し、533K 付近で最小値 11.03 A/m を示し、その後増加傾向を示した。以上のことから軟磁気特性が向上したのはアモルファスの構造緩和によるものと考えられる²⁾。

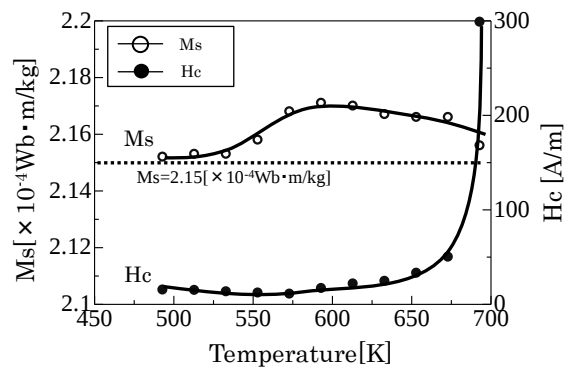


Fig.5 Dependence of M_s and H_c on plasma treatment temperature.

3.2.2 プラズマ処理温度と結晶構造解析との関係

窒素プラズマ照射処理による Fe 系アモルファス箔帯の影響を検討するためにプラズマ照射処理温度を 513~693K と変化した場合の X 線回折図形を Fig.6 に示す。

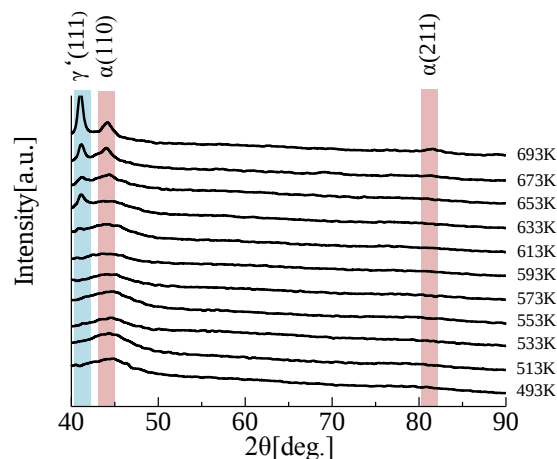


Fig.6 X-ray diffraction patterns for Fe-base amorphous foils prepared at plasma treatment temperature.

図より、613K まで回折線が認められないため 613K 以下ではアモルファ状態であることが確認された。633K より $2\theta = 41.18^\circ$ 付近に $\gamma'\text{-Fe}_4\text{N}$ (111) 面からの回折線⁵⁾が認められ、窒化鉄の生成されたことから再結晶化し始めたことが確認された。673K からは $2\theta = 44.67^\circ$ 付近で $\alpha\text{-Fe}$ (110)面、 $2\theta =$

82.33° 付近で α -Fe(211)面の回折線が確認されたため、温度上昇に伴い結晶化が進んでいることが確認された。

3.2.3 窒素プラズマ照射処理により得られた箔帯の状態分析

電子線マイクロアナライザ(EPMA)による N-K α 、Fe-K α 、B-K α 及び Si-K α の特性 X 線強度の熱処理温度依存性を Fig.7 に示す。図より 573K において N-K α 線の特性 X 線強度が増加傾向を示したことから、窒素の混入が認められた。さらに、N-K α 線のピーク波長は窒素混入量の増加に伴い、標準 N $_2$ 波長 $\lambda_0=31.6\text{\AA}$ にシフトする傾向が認められた。今後はピーク波長と生成した窒化鉄の相関について検討する必要がある。

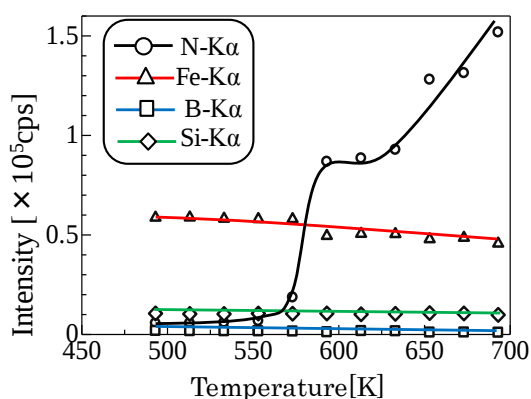


Fig.7 X-ray intensities of Fe-base amorphous foils prepared at plasma treatment temperature.

4. まとめ

本研究では、Fe系アモルファス箔帯試料を用いて、熱処理及び窒素プラズマ照射処理を施した試料について、磁気特性及び結晶構造の観点から検討をした。本実験をまとめると以下の通りである。

- (1) 熱処理を施した試料の飽和磁化値 M_s は最大値 $2.213 \times 10^{-4} \text{Wb} \cdot \text{m/kg}$ 、保磁力 H_c は最小値 1.308A/m を示した。また、

窒素プラズマ照射処理を施した試料の飽和磁化値 M_s の最大値は $2.171 \times 10^{-4} \text{Wb} \cdot \text{m/kg}$ 、保磁力 H_c は最小値 11.03A/m を示した。

- (2) プラズマ照射処理を施した試料では、633[K]より γ' -Fe $_4$ Nからの回折線が認められ、再結晶化し始めたことが確認された。
- (3) 以上のことから Fe系アモルファス箔帯に窒素プラズマ照射処理では軟磁気特性の向上は図れなかったが、一般的な熱処理を施すことにより軟磁気特性の向上が認められた。

5. 参考文献

- (1) 竹内伸,枝川圭一:「結晶・準結晶,アモルファス」内田老鶴圃出版社(1997)
- (2) 増本健:「アモルファス金属の基礎」オーム社(1985)
- (3) K. Suzuki, N. Kataoka, A. Inoue, A. Makino and T. Masumoto: *High Saturation Magnetization and Soft Magnetic Properties of bcc Fe-Zr-B Alloys with Ultrafine Grain Structure.*, Materials Transactions, JIM, Vol. 31, No. 8, pp. 743 to 746 (1990)
- (4) 三柴明寛,新妻清純,移川欣男:「窒素プラズマ照射による Fe系アモルファス箔帯の磁気特性」2010年電気学会基礎・材料・共通部門大会講演概要集 VIII-10(2010)
- (5) JCPDS-International Centre for Diffraction Data