



# Fe-Si合金扁平粉末における透磁率の周波数特性評価

Characterization of frequency dependences of permeability in flaky powders of Fe-Si alloy

三浦 滉大\*1 澤田 俊之\*2

Kodai MIURA and Toshiyuki SAWADA

**Synopsis:** Effects of Si content on frequency dependences of permeability in flaky powders were investigated. 0 to 11 %Si powders were manufactured by gas atomizing process and flattened by attrition mill. Frequency dependences of permeability were characterized in the range of 1 MHz to 9 GHz.

Real part of permeability  $\mu'$  decreased at a certain frequency owing to eddy current loss or magnetic resonance.  $\mu'$  at 10 MHz before magnetic resonance increased with Si content and decreased after taking a maximum at 9% Si. This behavior was discussed from correspondence with coercivity. As a result, in the magnetic sheet of 6.5 % Si or less, the orientation deterioration of the flaky powder due to excessively large powder particle size was inferred. Evaluating the degree of orientation of flaky powder as an apparent aspect ratio according to the Ollendorff equation, it was suggested that the magnetostatic couplings should be less than 2 powder particles at 6.5% Si or less and were more than 2 particles at 9% Si or more.

Profiles of imaginary part of  $\mu''$  were discussed from the viewpoints of resonance frequency  $f_r$  around 100 MHz and type of profile. Assuming that magnetization process is the movement of magnetic domain wall,  $f_r$  around 100 MHz was explained by parameter  $M_s/\mu_i^{1/2}$ . On the other hand, new dispersion observed in  $\mu''$  profile between 2~3 GHz and  $\mu''$  profile varied from unimodal type to bimodal one with increase of Si content. Based on the model of flattening process in Fe-Si-Al alloy, change of profile was attributed to micro-strain  $\varepsilon$  calculated by Williamson-Hall analysis as well as saturation magnetostriction  $\lambda_s$ . Therefore, it was speculated that increase of  $|\lambda_s| \times \varepsilon$  should induce change of  $\mu''$  profile derived from magnetic resonance of magnetostriction effect.

**Key words:** Fe-Si alloy; magnetic flaky powder; frequency dependence of permeability; magnetostatic coupling; magnetostriction effect

## 1. 緒言

電子機器の内部および電子機器間で電磁波ノイズが生じる場合、電子機器の誤作動を起こすため、電子回路の設計を変更するといった電磁波ノイズに対する対策が必要となる<sup>1)</sup>。このような電磁波ノイズ対策の1つとして、例えば金属扁平粉末をフィラーとしたノイズ抑制シートが使用されている<sup>2)</sup>。このノイズ抑制シートのノイズ吸収特性は、磁性体の磁気共鳴による磁氣的損失の大きさに比例するとされている<sup>2)</sup>。したがって、交流磁場における透磁率  $\mu = \mu' + j\mu''$  ( $j$ は虚数単位) で表される透磁率の周波数特性の制御が必要となる。特に、使用周波数域の $\mu'$ 、 $\mu''$ の大きさ、磁気共鳴周波数および周波数に対する $\mu'$ 、 $\mu''$ プロファイルの形状制御が重要である。

近年の第5世代移動通信システム (5G) に代表される世

界的な通信システムの高速化・大容量化により<sup>3)</sup>、使用される周波数域の高周波化が予測されるため、ノイズ抑制シートの磁気共鳴周波数も高周波化する必要がある。ここで代表的な磁気共鳴は、磁壁および磁気モーメントの運動に関係し、それぞれの交流磁場中の運動方程式から<sup>4)</sup>、共鳴周波数 $f_r$ と透磁率 $\mu$ の積は、 $\mu^* f_r \propto M_s$  (磁壁の移動は $n=1/2$ 、磁気モーメントの歳差運動の場合は $n=1$ ) の関係で表わされる。したがって、同じ $\mu$ の場合、高い飽和磁化 $M_s$ を有する材料を使用することで、共鳴周波数を高周波化でき、それに伴いシート吸収域も高周波化できると考えられる。

本研究では高 $M_s$ を有する材料という観点から、Fe-Si-AlやFe-Ni系合金を代表とする軟磁性材料よりも高い $M_s$ を有するFe-Si合金に着目した。Feに対するSiの添加は、結晶磁気異方性定数 $K_1$ 、飽和磁歪定数 $\lambda_s$ および材料強度に大き

\*1 粉末事業部 粉末技術部 技術3グループ

\*2 粉末事業部 粉末技術部 技術3グループ長、博士 (工学)

く変化をもたらす<sup>5)</sup>。特に、扁平形状の磁性フィラーでは、加工によって付与される磁気異方性や加工状態の影響によって、 $\mu''$ の周波数特性が大きく変化するので<sup>2)</sup>、Si量の効果を系統的に評価することは重要であると考えられる。

したがって、本研究では $\mu'$ および $\mu''$ の周波数特性に与えるSiの影響を明らかにするため、Fe-Si-Al合金よりも3~4割程度高い $M_s$ を有するSi量11 mass%（以降%は、mass%を示す）まで添加したFe-Si系2元合金扁平粉末を作製し、透磁率の周波数特性変化について考察した。本論文では、特にノイズ吸収特性に影響を与える3点について考察した。3.1節にて磁気緩和が生じる以前の10 MHzにおける $\mu'$ 値について取り扱った。保磁力 $H_c$ との対応とOllendorflfの式を用いたシート中の粉末配向性を考慮した反磁界係数の観点から考察した。3.2節以降では、主に $\mu''$ プロファイルについて取り扱った。3.2.1にて磁気共鳴周波数 $f_r$ を磁壁の共鳴と仮定し考察を行なった。3.2.2では、9~11% Siにおいて生じた $\mu''$ プロファイルの形状変化について、磁気弾性効果の観点から考察した。

## 2. 実験方法

Table 1に検討した計6組成を示す。扁平化の原料粉末はガスアトマイズ法にて作製し、所定の粒度に分級した。扁平加工は、一般的なアトリクションミルを使用し、原料粉末、溶媒、加工ボールを攪拌して行なった。本実験では、タップ密度約0.9 Mg/m<sup>3</sup>が得られた時間を加工終了条件とした。得られた扁平粉末について、レーザー回折・散乱法により平均粒子径（メジアン径 $D_{50}$ ）、タップ密度 $TD$ 、BET流動法により比表面積 $S$ をそれぞれ測定した。Table 1に測定した結果をまとめて示す。9% Si量以上において微粉化しており、これは合金のSi量増加に伴う靱性の変化に起因していると考えられる。一部の扁平粉末には、Ar雰囲気中にて、焼結温度以下の873および1073 K、 $3.6 \times 10^3$  s、炉冷の条件で熱処理を施した。

Table 1 Flaky powders prepared in this study

Alloy	Si content $C_{Si}$ (mass%)	Median diameter $D_{50}$ ( $\mu\text{m}$ )	Tap density $TD$ ( $\text{Mg/m}^3$ )	Specific surface area $S$ ( $\text{m}^2/\text{g}$ )
Fe	<0.01	92.4	0.95	1.24
3Si	3.12	101.5	0.85	0.73
6.5Si	6.40	153.2	0.85	0.56
9Si	8.84	74.1	0.98	0.79
10Si	10.06	37.7	0.82	1.13
11Si	11.07	39.6	0.93	1.03

$H_c$ および $M_s$ は、 $H_c$ メータ（Qumano製HC801）およびVSMを用いて測定した。ここで記載する $H_c$ は扁平粉末の長軸方向に対し平行に励磁したときの値である。また、扁平粉末と樹脂を混練してスラリーを作製し、ドクターブレード法により、シート状に成形した。作製した磁性シー

トを333 K、50 MPaの条件でプレスした。得られた磁性シートについて、PMM-9MG1（凌和電子製）<sup>6)</sup>を用いて1 MHz~9 GHz域の複素比透磁率の周波数特性評価を行なった。

## 3. 結果および考察

### 3.1 $\mu'$ の周波数特性

Fig. 1 (a) にAs-attritedの $\mu'$ の周波数特性を示す。Feの $\mu'$ は、約70 MHzまでフラットであるが、周波数の増加に伴い減少した。この $\mu'$ プロファイルは渦電流損失が一部重畳した磁気緩和であると考えられる。一方、3%Si以上の $\mu'$ プロファイルは、30~60 MHz近傍で磁気共鳴と推測される極大値を示し、周波数の増加に伴い減少した。Fig. 1 (b) に熱処理した6.5%~11% Siの $\mu'$ の周波数特性を示す。熱処理することで、共鳴周波数は低周波側にシフトし、かつ $\mu'$ の値が増加した。これは、主に焼鈍による残留応力の低減によると推測される<sup>7)</sup>。

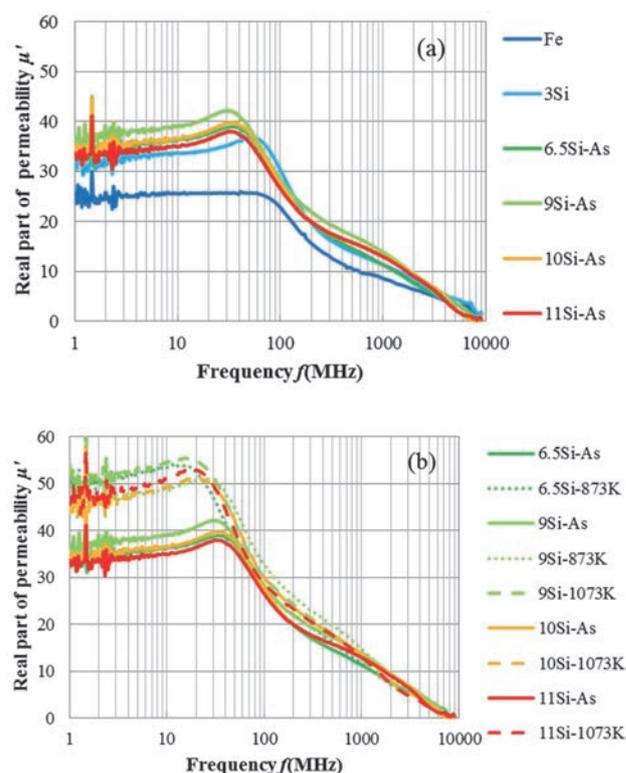


Fig. 1 Frequency dependences of real part of permeability, (a)As-attrited and (b)annealed at 873 and 1073K.

ここで、得られた $\mu'$ 値について考察するため、Fig. 2に磁気緩和以前の10 MHzにおける $\mu'$ および $H_c$ をSi量でプロットした結果を示す。 $\mu'$ は $H_c$ に逆相関するので、Fig. 2中の両値の挙動は概ね対応している。しかし、As-attrited試料の $\mu'$ 極大値は9% Si、 $H_c$ 極小値は6.5% Siであり、こ

これに対応の不一致がある。 $\mu'$ に影響を与える要因として、反磁界の影響が考えられるので、磁性シート中の扁平粉末の配向を確認した。

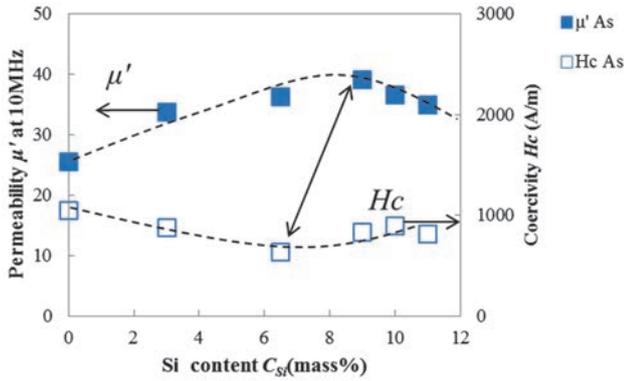


Fig.2 Variations of permeability and coercivity in as-atrited samples as a function of Si content.

Fig.3にAs-atritedの扁平粉末を使用した磁性シートの断面図を示す。0~6.5% Siのシート中の扁平粉末は、一部に屈曲や磁性シート面に対し傾斜している様子が多く観察された。一方、9% Si以上のシートには上記した現象は少なく、比較的扁平粉末が同一方向に揃う良好な配向性である。したがって、Fig.2の $\mu'$ と $H_c$ の極大および極小の不一致は、6.5% Si以下の扁平粉末の配向性劣化による、反磁界係数の増大に起因すると推測される。また、Fig.4に示すように、この配向性の劣化は、90  $\mu\text{m}$ 以上の $D_{50}$ を有する扁平粉末において生じていることが示唆される。したがって、本条件では $D_{50}$ が過度に大きいと、粉末がお互いに重なり合い屈曲することで、配向性が低下することが考えられる。

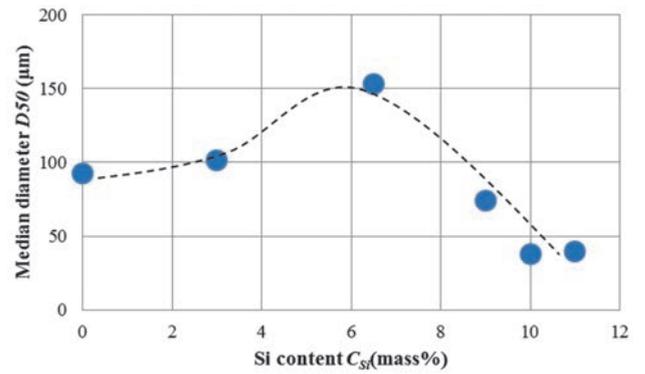


Fig.4 Variations of median diameter in as-atrited samples as a function of Si content.

さらに、上記したシート中の反磁界係数をOllendorffの式を用いて定量的に考察する。以下に反磁界係数の算出式<sup>8)</sup>を式(1)、およびOllendorffの式<sup>9)</sup>を式(2)に示す。

$$N = \frac{1}{2} \left[ \left\{ \frac{m^2}{(m^2-1)^{\frac{3}{2}}} \right\} \left\{ \sin^{-1} \left\{ \frac{(m^2-1)^{\frac{1}{2}}}{m} \right\} - \left\{ \frac{1}{(m^2-1)} \right\} \right\} \right] \dots (1)$$

$$\mu' = \left[ \left\{ \frac{P(\mu_t-1)}{N(1-P)(\mu_t-1)+1} \right\} \right] + 1 \dots (2)$$

ここで、式(1)の $m$ は粉末粒子の形状が扁平回転楕円体である場合の粒子径と厚さの比として定義されるアスペクト比を表す。アスペクト比は、光学顕微鏡にて扁平粉末の厚さを50個以上測定し、算出した厚さの平均値で $D_{50}$ を除いた値を簡易的に用いた。また、扁平粉末の反磁界の影響を無視した真の透磁率 $\mu_t$ は、扁平粉末の $H_c$ から見積も

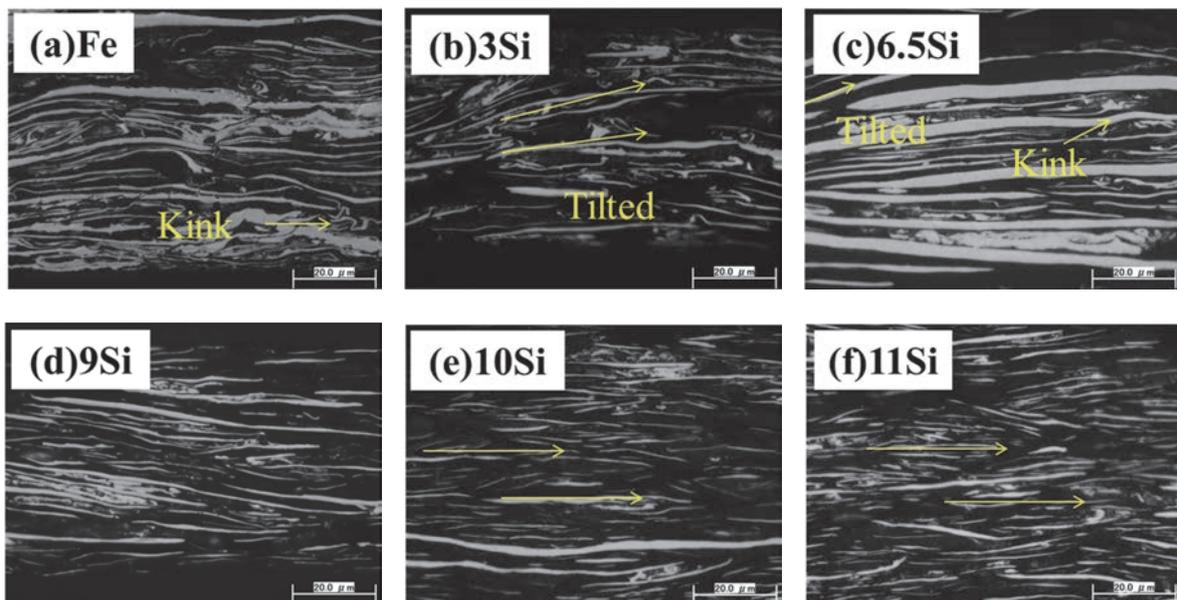


Fig.3 Optical micrographs of cross sectional view of magnetic sheet, (a)Fe, (b)3Si, (c)6.5Si, (d)9Si, (e)10Si and (f)11Si.

り<sup>10)</sup>、シート中の扁平粉末の充填率 $P$ は、磁性シートの $M_s$ を扁平粉末の $M_s$ で除して求めた。

Fig.5にOllendorffの式を用いた $\mu'$ の計算値と実験値の相関を示す。90  $\mu\text{m}$ 以上の $D_{50}$ を有する0~6.5% SiのAs-attributed試料は、おおよそ計算値と一致する。一方で $D_{50} < 80 \mu\text{m}$ の9~11% SiのAs-attributed試料および熱処理試料は、計算値から13以上の差異がある。また、熱処理温度が高い試料は、計算値との差異が顕著である。本解析の結果および計算に用いたパラメータをTable 2にまとめて示す。

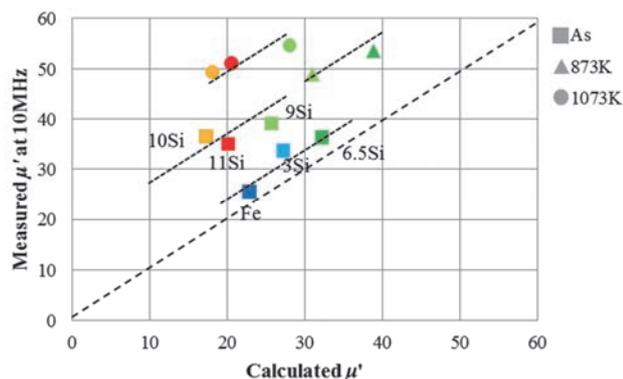


Fig.5 Relation between calculated permeability and measured one at 10MHz. Colors indicate Si content.

ここで、磁性シート中の扁平粉末は、磁性を持つ微粒子材料の集合体とみなすことができ、外部磁場を加えた時、粒子間に静磁氣的結合が生じ、反磁界の影響を低減すると推測される<sup>11)</sup>。この磁氣的結合の観点から、前述した計算値との差異を考察する。また、シート中の扁平粉末充填率は33~36%と試料間の差異は小さいので (Table 2)、充

填率に依存した磁氣的結合<sup>11)</sup>は同程度として考える。この仮定をもとに、実測した $\mu'$ に対してアスペクト比をフィッティングパラメータとして算出した見かけのアスペクト比 $m_a$ を、実測した粉末自体のアスペクト比 $m$ と比較することで、配向性や熱処理による影響を評価することができる。まず、 $D_{50} \geq 90 \mu\text{m}$ 以上である0~6.5% SiのAs-attributed試料は、配向性に劣るため (Fig.3)、 $m_a$ は低い傾向であると推測される。見かけのアスペクト比を測定値で除した $m_a/m$ は2未満であることから、 $m$ を扁平粉末1個の値として代表させると、0~6.5% Si試料では粉末2個未満の磁氣的結合状態であることが示唆される。一方、9~11% SiのAs-attributed試料の $m_a/m > 2$ であり、粉末2個以上の磁氣的結合が示唆される。この結果から、たとえ粉末自体の $m$ が小さくとも、シート中の配向性が良好であれば、 $m_a$ を増大できると考えられる。また、熱処理を加えることで、 $m_a$ はさらに増加する傾向にあり、残留応力の低減による $\mu'$ の増大が磁氣的結合をより強化することが示唆される。

### 3.2 $\mu''$ の周波数特性

#### 3.2.1 共鳴周波数 $f_r$

Fig.6(a) にAs-attributedの $\mu''$ の周波数特性を示す。Feの $\mu''$ は、10 MHz近傍から立ち上がり、他の試料に比べて分散がブロードであった。3.1で述べたように、Feのプロファイルは渦電流損失が一部重畳した分散と推測される。Siを添加した扁平粉末は、100 MHz前後に磁性共鳴と推測される分散が観測された。Si量の増加に伴い共鳴周波数 $f_r$  (ここで、分散のピーク値を共鳴周波数とする) は低周波域にシフトする傾向であった。また、Fig.6(b) に示すように、熱処理によって、分散のピーク値は増加し、 $f_r$ は

Table 2 Analytical parameters of Ollendorff equation

Alloy	Condition	$H_c$ (A/m)	Volume fraction of flaky powder (%)	Calculated $\mu'$ (A)	Measured $\mu'$ (B)	Difference of $\mu'$ (B)-(A)	Measured aspect ratio $m$	Apparent aspect ratio $m_a^*$	$m_a/m$
Fe	As-attributed	1050	36	22.9	25.5	2.6	58	74	1.3
3Si	As-attributed	875	34	27.3	33.7	6.4	86	151	1.8
6.5Si	As-attributed	637	34	32.3	36.3	4.1	93	121	1.3
6.5Si	873K	366	33	38.9	53.5	14.7	97	179	1.8
9Si	As-attributed	828	36	25.7	39.1	13.4	62	176	2.9
9Si	873K	454	36	31.0	48.9	17.9	62	142	2.3
9Si	1073K	414	33	28.1	54.6	26.6	62	220	3.6
10Si	As-attributed	891	34	17.3	36.6	19.3	37	223	6.0
10Si	1073K	589	33	18.1	49.4	31.2	37	309	8.4
11Si	As-attributed	812	35	20.1	35.0	14.8	42	136	3.2
11Si	1073K	430	33	20.6	51.1	30.5	40	194	4.9

\* Apparent aspect ratios were calculated as a fitting parameter.

低周波域にシフトした。これら $f_r$ の変化をFig.7にまとめて示す。

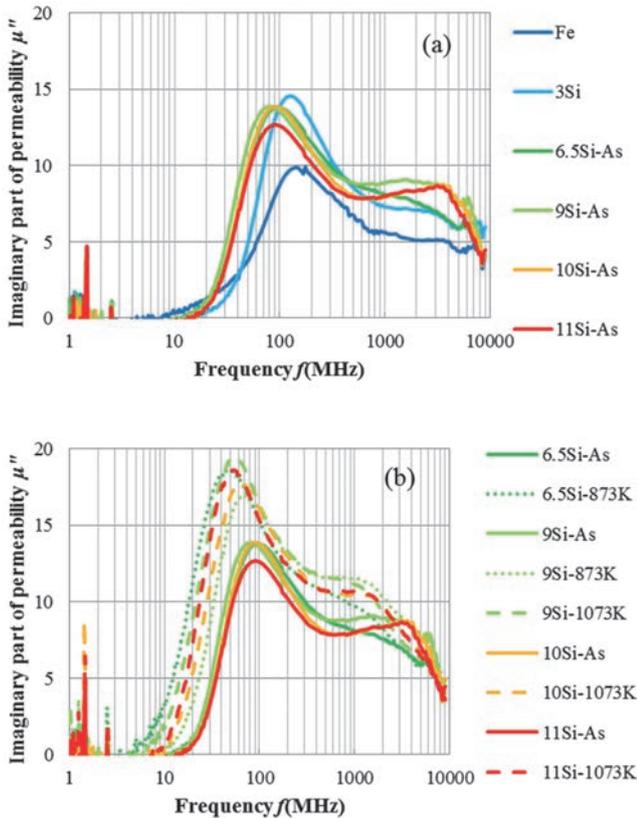


Fig.6 Frequency dependences of imaginary part of permeability, (a)As-attributed and (b)annealed at 873 and 1073K.

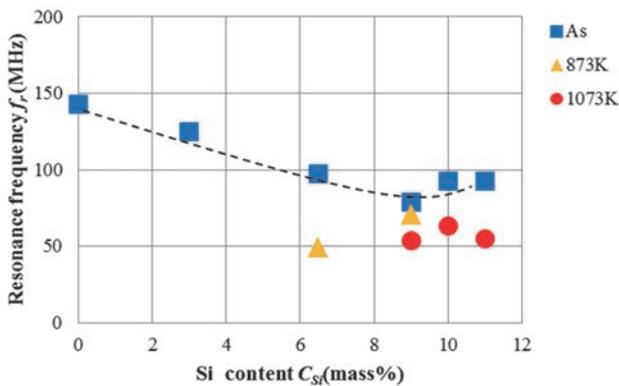


Fig.7 Variations of resonance frequency as a function of Si content.

齋藤らは、Fe-Cr合金扁平粉末における低周波域の分散について、磁壁共鳴の観点から考察した<sup>12)</sup>。磁壁の共鳴周波数 $f_r$ は以下の式で表される<sup>4)</sup>。

$$f_r = 1.0 \times 10^4 M_s \sqrt{\frac{S_w \delta}{\chi_r}} \dots\dots (3)$$

ここで、 $M_s$ 、 $S_w$ 、 $\delta$ および $\chi_r$ はそれぞれ飽和磁化、磁壁の面積、磁壁の幅および比磁化率を表す。 $\chi_r = \mu_r - 1$ であるので、 $\mu_r \gg 1$ のとき $f_r$ は、 $f_r \propto M_s / \mu_r^{1/2}$ の相関を持つ。Fig.8に各 $\mu$ プロファイルから得られた $f_r$ を $M_s / \mu_r^{1/2}$ でプロットした結果を示す。Fig.8に示すように $M_s / \mu_r^{1/2}$ によって概ね整理することができる。この近似直線の傾きから磁壁の体積を求めると、 $1.1 \times 10^{-2} \text{ m}^3$ が得られた。この値は、フェライトにおける磁壁の共鳴周波数の算出に用いられた値<sup>4)</sup>よりも約10倍大きい値であり、扁平粉末中では磁壁の体積がより多いことが示唆される。しかし、扁平粉末中の磁区構造の詳細は不明であり、この点については今後の詳細な検討が必要である。

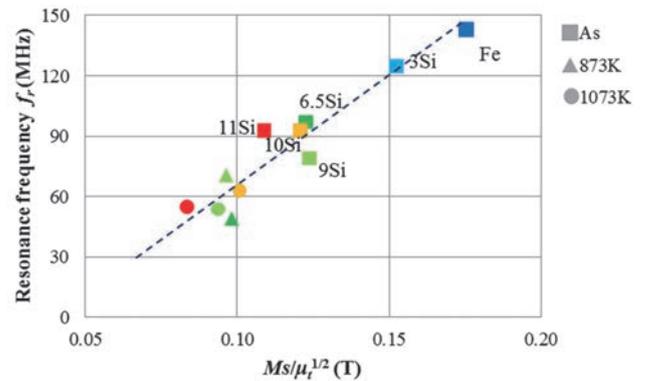


Fig.8 Relation between  $M_s / \mu_r^{1/2}$  and  $f_r$ . Colors indicate Si content.

### 3.2.2 $\mu$ プロファイルの形状変化

本項では、 $\mu$ プロファイルの形状変化に着目する。3.2.1項で述べたように、100 MHz前後に磁性共鳴と推測される分散が観測された。ここで、0~6.5% Siでは、 $\mu$ の分散は1つのみ観測されていることから (Fig.6 (a))、単峰型と分類する。一方、9~11% Siでは、2~3 GHzにおいて $\mu$ の増加が観測された。特に10および11% Siでは、 $\mu$ の増加が顕著である。ここで、2~3 GHzにおける $\mu$ の増加を1つの分散であるとし、9~11% Siのプロファイルを双峰型と分類する。また、熱処理を加えると、9~11% Siに現れた高周波域の分散は消滅し、単峰型へ変化した (Fig.6 (b))。

Fig.9にSi量の増加に伴う $\mu$ プロファイルの変化を整理するため、低周波域の分散の $\mu$ ピーク値を $\mu'_L$ 、高周波域のそれを $\mu'_H$ として (分散が無いプロファイルについては、2 GHzの $\mu$ の値を用いた)、分散比 $\mu'_H / \mu'_L$ をSi量で整理した結果を示す。Fig.9に示すように、Si量の増加に伴い $\mu'_H / \mu'_L$ は増加し、この増加は $\mu$ プロファイルの単峰型から双峰型への変化を示す。

このSi量の増加に伴う $\mu$ プロファイルの形状変化について、扁平粉末における磁気共鳴の発現原理から考察する。吉田は、Fe-Si-Al合金の扁平化プロセスにおける $\mu$ プロ

ファイルの変化を4つのステージに分類した<sup>2)</sup>。このモデル中で、 $\mu''$ の分散は、主に3つの要因によって生じる。1つめが渦電流損失による分散DIであり、主に球状粉末において生じる。2つめは、磁性粉末が加工によって、扁平状の異方的な形状になることで発現する磁気共鳴による分散DIIである。本研究において100 MHz域に現れた分散は、この分散DIIに相当すると考えられる。そして、3つめが磁気弾性効果によって粉末表面近傍に発現する磁気異方性の磁気共鳴による分散DIIIである。9~11% Siの2~3 GHzに発現した分散は、この分散DIIIであると想定して以降考察を行なう。なお、DIIは $K_f$ および $\lambda_s$ <sup>7)</sup>、DIIIは $\lambda_s$ と残留応力の大きさ<sup>14)</sup>に影響されると推測されている。

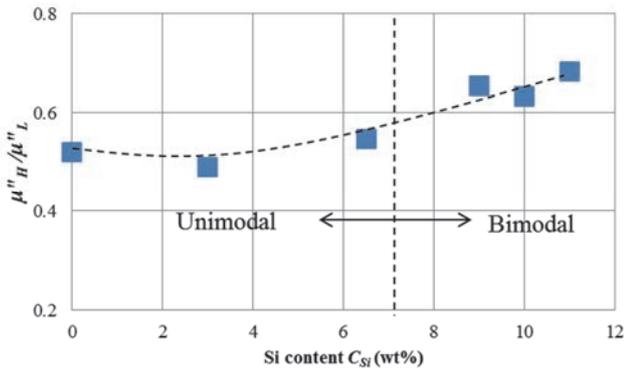


Fig.9 Variations of  $\mu''_H/\mu''_L$  in as-attrited samples as a function of Si content.

さらにIgarashiらによって、正の $\lambda_s$ を系統的に変化させた合金について透磁率の周波数特性を解析した結果から、 $\mu''_{DM}/\mu''_{DM} \propto \lambda_s$ の関係を示すことが報告された ( $\mu''_{DM}$ と $\mu''_{DM}$ はそれぞれ分散DIIおよびDIIIにおける $\mu''$ ピーク値を表す)<sup>15)</sup>。この相関関係に基づき、 $\mu''_{DM}/\mu''_{DM}$ に相当する $\mu''_H/\mu''_L$  (Fig.9) を $|\lambda_s|$ <sup>16)</sup>で整理した。Fig.10に、 $\mu''_H/\mu''_L$ と $|\lambda_s|$ の相関を示す。3% Siは9~11% Si以上の $\lambda_s$ を有するが、 $\mu''_H/\mu''_L$ が低く、単峰型である。したがって、9~11% Siのプロファイルが双峰化する要因として $|\lambda_s|$ のみでは不十分であることがわかった。

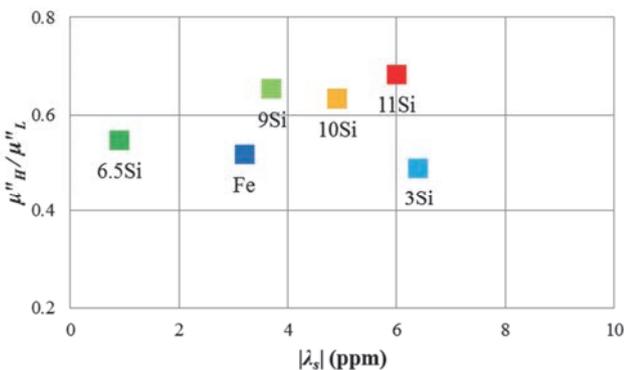


Fig.10 Relation between  $|\lambda_s|$ <sup>16)</sup> and  $\mu''_H/\mu''_L$  in as-attrited samples.

プロファイルの双峰化に必要な要因を考察するため、双峰型である9~11% Siにおける $\mu''$ プロファイルの熱処理前後の形状変化に着目した。Fig.6 (b) より、熱処理によって、高周波域の分散は消滅し、単峰型へ変化した。熱処理によって、扁平粉末中のひずみが低減されることが推測されるので、プロファイルの双峰化の要因としてひずみ量を評価した。

扁平粉末中に蓄積されたミクロひずみ量はXRD測定によりWilliamson-Hall法を用いて求めた<sup>17)</sup>。ここでミクロひずみ $\epsilon$ は、転位密度、転位の性質や分布<sup>18)</sup>、または弾性ひずみ<sup>19)</sup>に依存するパラメータであると言われている。本研究で扱うFe-Si合金扁平粉末は、扁平加工により強加工された状態であるので、本測定で得られた $\epsilon$ は、転位を反映したパラメータであるとして考察する。

Fig.11にSi量および扁平時の加工時間に対して $\epsilon$ と $\lambda_s$ をプロットした結果を示す。Si量の増加に伴い $\epsilon$ は単調に増加した。Si量の増加に伴い扁平加工時間も増加しており、加工時間に依存して $\epsilon$ が増加していると考えられる。ここで、高周波域の分散が生じた9~11% Siの3つの試料は、 $\epsilon$ が大きくかつ $|\lambda_s|$ も高い領域であることがわかった。一方で、単峰型である0~6.5% Si領域では、3% Siの $\lambda_s$ が高くなるが、 $\epsilon$ は低い状態である。したがって、プロファイルの双峰化は、 $|\lambda_s|$ に加え $\epsilon$ の大きさも起因していると推測される。

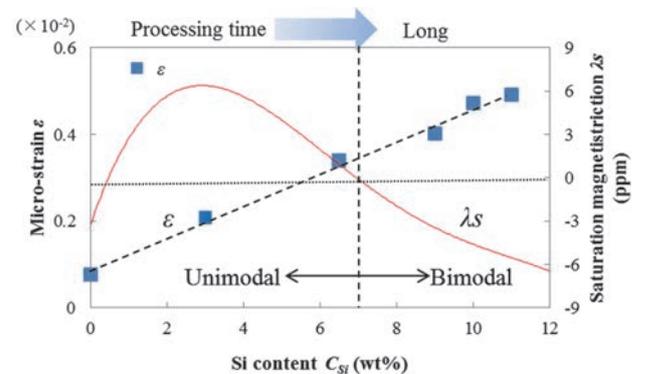


Fig.11 Variations of micro-strain and saturation magnetostriction<sup>16)</sup> in as-attrited samples as functions of Si content and processing time.

この仮定に基づいて、Fig.12 (a) に $\mu''_H/\mu''_L$ を $|\lambda_s| \times \epsilon$ のパラメータで整理した結果を示す。

$|\lambda_s|$ と $\epsilon$ の積をパラメータとすることで、プロファイル形状の単峰型と双峰型を分けることができる。さらに、 $|\lambda_s| \times \epsilon$ のパラメータでプロファイル形状が変化するのであれば、 $\epsilon$ を高めることで、プロファイル形状は双峰型へ変化することが予測される。この予測を確認するため、高い正の $\lambda_s$ を有する3% Siについて長時間加工を加え、 $\epsilon$ を高めた試料3Si-LPを作製した。Fig.12 (a) (b) に3Si-LPの透磁率を測定した結果をそれぞれ示す。長時間加工を加えた試料に

において3 GHz近傍に分散を観測した (Fig.12 (b))。また、その時の $|\lambda_s| \times \varepsilon$ の値は、 $\mu''$ プロファイルの双峰化を示す9~11% Siのレベルにまで増加した (Fig.12 (a))。この結果は、プロファイル双峰化の要因として、 $|\lambda_s|$ と $\varepsilon$ の2つの因子が寄与するという仮説を支持すると考えられる。なお、ここで用いた $\varepsilon$ から、転位密度を算出することができ<sup>20)</sup>、そして、その転位密度からBailey-Hirschの式<sup>21)</sup>を用いることで、加工硬化量を求めることができる。したがって、転位の動きに対する内部応力 $\sigma$ を表すパラメータとして $\varepsilon$ を考えれば、 $|\lambda_s| \times \varepsilon$  (または $\sigma$ ) は磁気弾性エネルギーを表すと考えられるが、今後さらに理論的な検討をする必要がある。

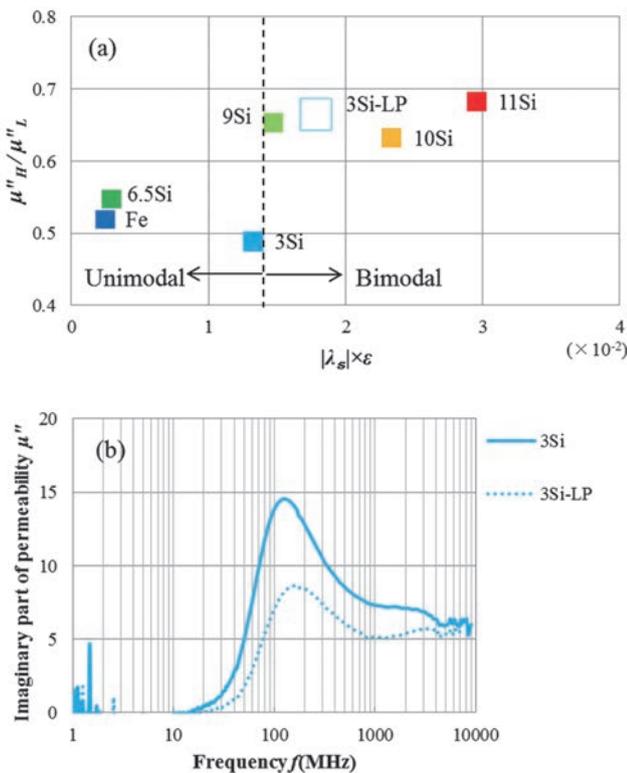


Fig.12 (a) Relation between  $|\lambda_s| \times \varepsilon$  and  $\mu''_H/\mu''_L$  in as-attrited samples. (b) Frequency dependence of imaginary part of permeability in 3Si and long processed one (3Si-LP).

本研究では、Fe-9~11% Siの負の $\lambda_s$ を有する磁性材料において、磁気弾性効果によって発現する分散DIIIと推測される分散を観測した。過去の研究として、正の $\lambda_s$ を有する材料について、深瀬らのFe-13Crの結果<sup>22)</sup>、そしてIgarashiらによる系統的な研究<sup>15)</sup>がある。本研究の結果を加えると $\lambda_s$ の正負に関わらず、分散DIIIが発現する可能性が考えられるが、その発現メカニズムの詳細は不明であり、さらなる研究が望まれる。

## 4. 結言

本研究で得られた知見は以下の通りである。

- (1)  $\mu'$ の周波数特性は、渦電流損失または磁気共鳴により、ある周波数から磁気緩和を生じ $\mu'$ が減少した。磁気緩和が生じる以前の $\mu'$ はSi量と共に増加し、9%で極大値を取ったのち減少した。この挙動は、 $H_c$ の挙動と一致しなかった。磁性シート中の扁平粉末の配向を観察した結果、6.5% Si以下の磁性シートにおいて、過大な $D50$ による扁平粉末の配向性劣化が観察された。したがって、 $\mu'$ と $H_c$ の挙動の不一致は、粉末の磁気特性の他に、シート中の配向性が $\mu'$ に寄与したことで生じたことが推測される。また、この配向性の程度をシート中の見かけのアスペクト比としてOllendorffの式を用いて評価した結果、6.5% Si以下では扁平粉末2個未満、9% Si以上では2個以上の磁氣的結合状態であることが示唆された。
- (2)  $\mu''$ プロファイルにおける100 MHz域の分散の磁気共鳴周波数 $f_r$ は、Si量の増加と共に減少し、また、熱処理によってさらに減少した。 $f_r$ について磁壁共鳴の理論から考察した結果、 $M_s/\mu_i^{1/2}$ のパラメータで概ね整理することができた。
- (3) 9~11% Siにおいて $\mu''$ プロファイルの形状が単峰型から双峰型に変化した。この形状変化には、Fe-Si-Alの扁平化モデル、 $\mu''_{DIII}/\mu''_{DII} \propto \lambda_s$ の関係、熱処理前後のプロファイル変化を考慮した結果、 $|\lambda_s|$ に加えWilliamson-Hall法により求めたミクロひずみ $\varepsilon$ 量が寄与することが推測された。これにより、 $\mu''_H/\mu''_L$ を $|\lambda_s| \times \varepsilon$ のパラメータで整理することができた。また、単峰型を示した3% Siに対し、長時間加工を加えて $\varepsilon$ を高めた結果、 $\mu''$ プロファイルは双峰型を示した。この結果は $|\lambda_s| \times \varepsilon$ の $\mu''$ プロファイル形状変化 (磁気弾性効果による分散DIII) への寄与を支持すると考えられる。

## 参考文献

- 1) 小暮裕明,小暮芳江: 電磁波ノイズ・トラブル対策,誠文堂新光社, (2010), 22-40.
- 2) 吉田栄吉: まぐね, 3(2008)3, 134-141.
- 3) 岸山祥久, 永田聡, 中村宏武: NTT技術ジャーナル, 1(2017), 13-17.
- 4) 太田恵造: 磁気工学の基礎 II, 共立全書, (1973), 313-366.
- 5) R. Bozorth: "Ferromagnetism", D. Van Nostrand Company, New York, (1951) and references therein.

- 6) 宮澤安範, 上西克二, 山口正洋, 安藤仁司: 日本応用磁気学会誌, 28(2004)3, 222.
- 7) 吉田栄吉, 安藤慎輔, 小野裕司, 島田寛: 日本応用磁気学会誌, 26(2002)6, 843-849.
- 8) 太田恵造: 磁気工学の基礎 I, 共立全書, (1973), 35.
- 9) von F. Ollendorff: Magnetostatik der Massekerne, archiv für Elektrotechnik. X X V Band, (1931).
- 10) 近角聡信: 強磁性体の物理(上), 裳華房, (1978), 32.
- 11) 島田寛: まぐね, 5(2010)2, 74-81.
- 12) 齋藤章彦, 小川道治, 矢萩慎一郎: 電気製鋼, 69(1998)3, 195-200.
- 13) 太田恵造: 磁気工学の基礎 II, 共立全書, (1973), 268-271.
- 14) 吉田栄吉, 安藤慎輔, 島田寛, 山口正洋, 鈴木圭, 野村貴美, 深道和明: 日本応用磁気学会誌, 26(2002)6, 850-854.
- 15) T. Igarashi, K. Kondo, S. Yoshida: J. Magn. Magn. Mater, 444(2017), 390-393.
- 16) T. Yamamoto, "The development of Sendust and other ferromagnetic alloys", Chiba, Japan, Komiyama printing, (1980), pp.27-29
- 17) 中島孝一, 二村裕一, 飛鷹秀幸, 土山聡宏, 高木節雄: CAMP-ISIJ, 17(2004), 396-399.
- 18) 高木節雄, 増村拓朗, 土山聡宏, 鉄と鋼, 105(2019)6, 648-654.
- 19) 前島健人, 米村光治, 河野佳織, 宮本吾郎, 鉄と鋼, 104(2018)11, 673-682.
- 20) G. K. Williams and R. E. Smallman: Philos. Mag., 8(1956), 34.
- 21) J. E. Bailey and P. B. Hirsch: Philos. Mag., 5(1960)53, 485-497.
- 22) 深瀬美紀子, 武本聡: 電気製鋼, 82(2011)1, 23-30.

■ 著者



三浦 滉大



澤田 俊之