

技術論文



Technical Paper

磁場中熱処理を施した Fe 基ナノ結晶合金の透磁率スペクトルと鉄損の解析

富田祐也^{*1, *4}, 小笠原剛^{*2, *4}, 高林宏之^{*1, *4}, 入山恭彦^{*3, *5}

Analysis of Permeability Spectrum and Iron Loss in Transverse-Field-Annealed Fe-Based Nanocrystalline Alloy

Yuya TOMITA, Takeshi OGASAWARA, Hiroyuki TAKABAYASHI and Takahiko IRIYAMA

Synopsis

Along with an increase of operating frequency for power electronic devices, more development of higher-performance soft magnetic material with low iron loss and high permeability at high frequency is expected. In this study, dynamic magnetic domain observation of a Fe-based nanocrystalline core with transverse-field-annealing (TFA) and measurement of its soft-magnetic properties was conducted. The magnetic domain observation revealed that the magnetization process at a frequency below 80 kHz was controlled by domain wall propagation combined with coherent rotation (combined-DWP+CR). We tried to adopt a Cole-Cole diagram for the analysis of the iron loss and complex permeability spectra in a reversible process below 80 kHz and consequently found that the permeability spectrum coincided with the calculated value by the Cole-Cole type relaxation equation. It was also shown that the iron loss P_c depends on the parameter ϵ ($P_c \propto f^{1+\epsilon}$), which corresponds to the dispersion of the relaxation frequency.

1. 緒 言

SiC や GaN に代表されるパワー半導体技術の進展に伴い、パワーエレクトロニクスデバイスの駆動周波数は高周波化している^{1), 2)}。軟磁性材料はパワーエレクトロニクスにおいて重要なインダクタ素子を構成するために不可欠な材料であり、高周波駆動が可能な軟磁性材料の開発が望まれている。

特に Fe 基ナノ結晶材料は、超低損失材料として大きな関心を集めている³⁾。ナノ結晶材料の軟磁気特性は、

Herzer らの提唱したランダム異方性モデル (RAM^{4), 5)}によってよく説明でき、結晶粒径数 10 nm オーダーのサイズまで微細化することで実効磁気異方性を低減することにより低損失化特性を実現することができる。さらに、横磁場中熱処理 (TFA: Transverse-Field Annealing) によって誘導磁気異方性を付与することで高周波において損失低減することがわかっている⁶⁾。ただし、TFA を施したナノ結晶材 (以下、TFA 材) が低損失を示す原因は明らかになっていないといえる。TFA 材の損失低減の機構は Steinmetz の経験式における異常渦電

2025年3月28日 受付

* 1 大同特殊鋼(株)技術開発研究所 (Corporate Research & Development Center, Daido Steel Co., Ltd.)

* 2 国立研究開発法人産業技術総合研究所 電子光基礎技術研究部門, 工博 (Dr. Eng., Research Institute for Advanced Electronics and Photonics, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology)

* 3 大同特殊鋼(株)技術開発研究所, 工博 (Dr. Eng., Corporate Research & Development Center, Daido Steel Co., Ltd.)

* 4 大同特殊鋼×東北大学共創研究所 (DAIDO STEEL x Tohoku Univ. Co-creation Research Center)

* 5 大同特殊鋼×東北大学共創研究所, 東北大学特任教授 (DAIDO STEEL x Tohoku Univ. Co-creation Research Center, Specially Appointed Professor, Tohoku University)

流の低減と紐づけて解釈されることが多いが、本経験式を高周波領域まで拡張して使用する際には注意が必要である。Steinmetz の経験式では1周期当たりの損失 W を周波数に依存しないヒステリシス損失 W_h 、表皮効果に由来する渦電流損失 W_e 、磁壁移動にともなう局所的な渦電流損失と解釈されている異常渦電流損失 W_m に分離するが、1 kHz を超える高周波までこの取り扱いを拡張することはできない。実際、高周波では磁区構造は周波数増加に伴い、細分化されることが知られており、ヒステリシス損失が一定であるという仮定はもはや成り立たない。

そこで筆者らは Steinmetz の経験式に代替する手法として、Beatrice らによって提案された損失分離モデルに着目した。本モデルでは鉄損 P_c を式 (1) のように複素透磁率 μ を用いて表す。

$$P_c = \frac{\mu''}{\mu'^2 + \mu''^2} \pi B_m f \quad (1)$$

ここで、 μ' と μ'' はそれぞれ複素透磁率の実部と虚部、 B_m は動作磁束密度の振幅、 f は動作周波数である。さらにレイリー領域においては複素透磁率は式 (2) のように磁場振幅 H_m に依存しない可逆透磁率 μ_{rev} と磁場振幅 H_m に比例して増加する不可逆透磁率 μ_{irr} に分離することが可能である。損失分離モデルでは、この性質を利用して鉄損を可逆成分 $P_{c,rev}$ と不可逆成分 $P_{c,irr}$ に分離することが可能である。

$$\mu = \mu_{rev} + \mu_{irr} \quad (2)$$

$$P_{c,rev} = \frac{\mu_{rev}''}{\mu'^2 + \mu''^2} \pi B_m f \quad (3)$$

$$P_{c,irr} = \frac{\mu_{irr}''}{\mu'^2 + \mu''^2} \pi B_m f \quad (4)$$

損失分離モデルを用いたいくつかの先行研究では、特に 10 kHz を超える高周波領域では可逆成分が支配的であることが示されている^{9)~13)}。しかし、高周波数における可逆過程の透磁率と鉄損の定式化に関する報告はほとんどなく、その周波数依存性は明らかにされていない。本研究では、低損失軟磁性材料として有望な TFA 処理ナノ結晶材料の可逆透磁率について現象論的アプローチによる定式化を試みるとともに、鉄損の周波数特性とそのメカニズムについて考察を行う。

2. 実験方法

母合金インゴット（原子比組成：Fe_{bal}-Si_{13.5}B₉Nb₃Cu₁）を、真空誘導炉により作製し、得られた合金を、単ロール液体急冷法を用いてロール周速 40 m/s の条件で急冷し、アモルファスリボンを作製した。リボンの幅および厚さは、それぞれ 5.0 mm および 17.8 μ m であった。得られたリボンを 20 回巻回し、外径約 21 mm、内径 20 mm、高さ 5.0 mm のトロイダルコアを作製した。

トロイダルコアの熱処理は以下の手順で行った。まず、コアを 843 K（結晶化温度 $T_x + 20$ K）まで 0.83 K/s の昇温速度で加熱し、1.8 ks 保持することで結晶化させたのちに、823 K まで冷却し、0.1 T の磁場をコア高さ方向に印加した状態で 1.8 ks 保持し、一軸性の誘導磁気異方性を付与した。最後に、炉内で室温まで冷却した。熱処理後のサンプルは XRD（X 線回折法）（樹リガク製、SmartLab）より組織状態を調査した。鉄損は 2 コイル法で BH アナライザにより $B_m = 20$ mT、 $f = 1$ kHz - 1 MHz の励磁条件で測定し、透磁率スペクトルはインピーダンスアナライザ（Keysight Technologies 製、E4990A）により十分に小さい磁場振幅（ $H_m = 0.05$ A/m）で測定した。動的磁区観察は、本論文の著者のひとりである小笠原が開発した時間分解磁気光学顕微鏡を用いて観察した^{14), 15)}。

3. 結果および考察

TFA 材の X 線回折パターンを Fig. 1 に示す Fe(Si)-D0₃ 規則相に対応するピークとアモルファス相を示すハローパターンが確認され、D0₃ 相と残留アモルファス相の二相組織であることがわかる。結晶子サイズはシェラーの式により 12.8 nm と見積もられる。

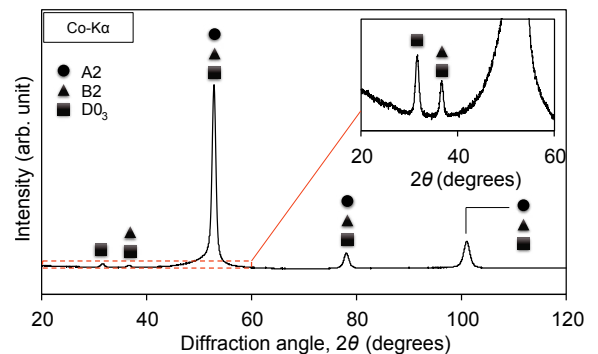


Fig. 1. X-ray diffraction pattern of the transverse-field-annealed nanocrystalline core. The inset provides an enlarged view of the 20 ° to 40 ° range from the main figure.

TFA 材の透磁率スペクトルは Fig. 2(a) に示した通り、徐々に透磁率の実部 μ' が減衰する緩和型の挙動を示した。透磁率スペクトルの代表的な特性を Table 1 に示した。

Table 1. The typical properties of the permeability spectrum in a TFA nanocrystalline core.

Material	$\mu_{1\text{ kHz}} \sim \mu_{\text{DC}}$	f_{relax}	μ''_{max}
TFA	61000	54 kHz	23600

Fig. 2(b) に TFA 材の鉄損 P_c の周波数依存性を示す。今回調査した 1 kHz - 1 MHz の範囲では鉄損は一見、周波数の 2 乗に比例しているように見えるが、注意深く見ると、80 kHz 以下では鉄損は $f^{1.83}$ に比例し、80 kHz 以上では $f^{1.71}$ に比例しており、すなわち 80 kHz 近傍で周波数依存性が変化していることがわかる。この変化を判別しやすくするために Fig. 2(b) の縦軸を拡大した図が Fig. 2(c) である。

この鉄損のふるまいを詳しく理解するためには前述の通り、透磁率スペクトルの周波数依存性を調査することが有効である。ここで、透磁率スペクトルを定式化するための方法として、誘電体の誘電率の解析に用いられる Cole-Cole プロット¹⁶⁾に着目した。Cole-Cole プロットは、複素誘電率を複素平面に投影して得られる軌跡の幾何学的形状から周波数依存性を推定する方法である。本研究ではこの手法を透磁率スペクトルに適用することを試みた。Fig. 3 に測定した透磁率に対応する Cole-Cole プロットを示す。Cole-Cole プロットの軌跡は、中心が虚軸負の方向にずれた中心角 0.83π rad. (149.4 度) の円弧形状を示した。誘電率解析では、このような中心が実軸からずれた円弧形状を示す場合、誘電率の周波数依存性は Cole-Cole 型緩和式で表せることが知られている。ここでは、誘電率を透磁率に置き換えて次のように表す。

$$\mu = \frac{\mu_{\text{DC}}}{1 + \left(\frac{if}{f_{\text{relax}}}\right)^\epsilon}, \quad \epsilon = \frac{4}{\pi} \arctan\left(\frac{2\mu''_{\text{max}}}{\mu_{\text{DC}}}\right) \quad (5)$$

ここで、 μ_{DC} は直流透磁率、 f_{relax} は緩和周波数である。ここからは式 (5) による計算値と実験値を比較する。計算に必要な直流透磁率を透磁率スペクトルから推定するのは本来難しいが今回調査した TFA 材においては、Fig. 2(a) に示すように、 μ' が低周波数で一定に見えることから、直流透磁率 μ_{DC} として 1 kHz における透磁率 μ' の実部を採用した。パラメータ ϵ は、Cole-Cole プロットにおける円弧の中心角に対応することが知られて

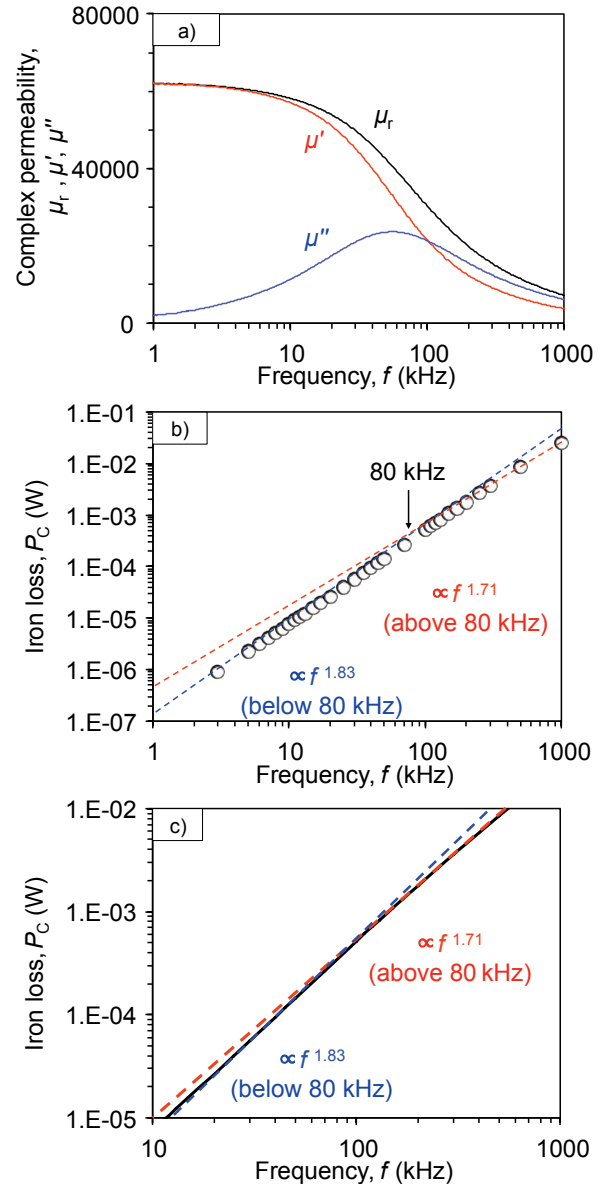


Fig. 2. AC magnetic properties of the TFA-treated nanocrystalline core; a) permeability spectra, b) iron loss, and c) enlarged view of iron loss with black solid line.

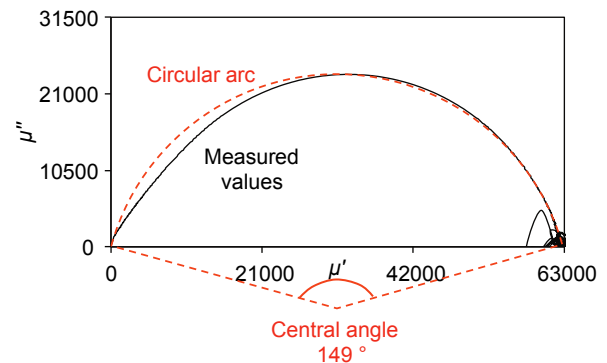


Fig. 3. The Cole-Cole diagram of the measured permeability spectra for the TFA-treated nanocrystalline core.

おり、幾何学的関係から得られる式 (2) を用いて計算することができる。Table 1 の値を用いることで $\epsilon=0.83$ と計算される。なお誘電スペクトルでは、 ϵ は緩和周波数 f_{relax} の分散に対応するパラメータ^{16), 17)} として解釈される。Fig. 4(a) は、TFA 材における透磁率スペクトルの実測値と Cole-Cole 緩和式を用いた計算値との比較を示している。1 kHz - 1 MHz の周波数範囲において、Cole-Cole 緩和式が実験結果とよく一致していることがわかる。Cole-Cole 緩和式の適用周波数範囲をより正確に把握するため、Fig. 4(b) に示すように、位相 $\delta=\mu'/\mu''$ の計算値と実測値を比較した。両者の位相は、約 80 kHz 以下の低周波領域では一致しているが、約 80 kHz 付近で乖離し始める。この結果から、TFA ナノ結晶コアの Cole-Cole 式の適用範囲は 80 kHz 以下であると判断される。

一方、鉄損の周波数依存性は式 (1) と式 (5) から得られる以下の式で計算することができる。

$$P_c = \frac{\sin(\epsilon\pi/2)}{\mu_{\text{DC}} f_{\text{relax}}} \epsilon \pi B_m^2 f^{1+\epsilon} \quad (6)$$

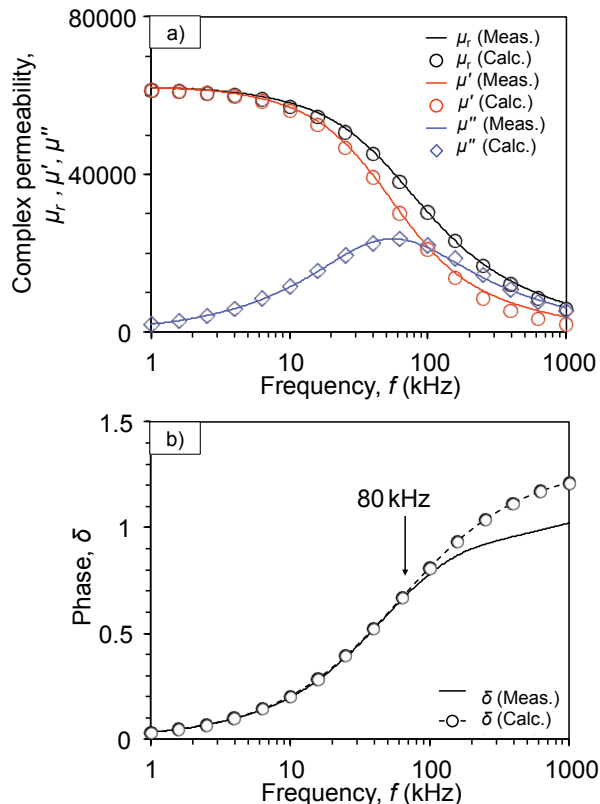


Fig. 4. Comparison between the measured and the calculated values of a) complex permeability, b) phase $\delta=\mu'/\mu''$.

ここで鉄損の計算には透磁率スペクトルの測定から得られた μ_{DC} , f_{relax} , ϵ を用いた。Fig. 5 に鉄損の実測値と計算値の比較を示す。前述の通り、鉄損は 80 kHz 付近で周波数依存性が変化し、80 kHz 以下では $f^{1.83}$ に比例し、80 kHz 以上では $f^{1.71}$ に比例する結果であった。低周波における鉄損の周波数依存性 $f^{1.83}$ の値は、式 (6) に $\epsilon=0.83$ を代入して得られた結果と良く整合している。これは透磁率ならびに鉄損の周波数依存性の変化が同一の物理現象に基づくものであると示唆する結果であり、80 kHz 近傍で磁化挙動が変化したと予想される。

これを確かめるために、小笠原氏の開発した時間分解磁気光学顕微鏡を用いて 1, 10, 100 kHz で動的磁区観察を行った。その結果を Fig. 6 に示す。

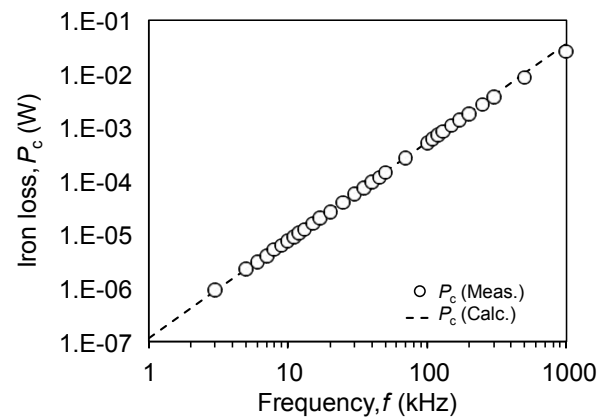


Fig. 5. Comparison between the measured and the calculated values of the iron loss.

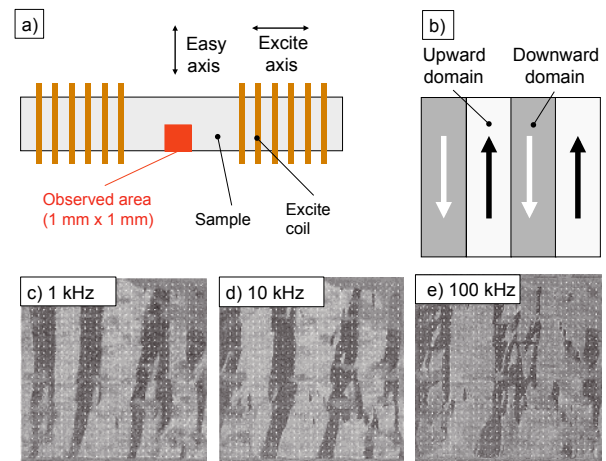


Fig. 6. Result of magnetic domain observation of the TFA-treated nanocrystalline core; a) schematic diagram of the observation method; b) schematic description of magnetic domain structure; c), d), and e) magnetic domain structure at 1, 10, and 100 kHz.

いずれの周波数においても、磁区は誘導磁気異方性の方向に沿って配列しており、周波数が高くなるにつれて磁区が細分化されていることがわかる。続いて、各周波数における動的磁化過程を可視化するために、磁化ベクトルヒストグラムの半周期の変化を Fig 7(b) に示す。10 kHz と 100 kHz の間で磁化ベクトルの経路が定性的に変化しており、磁化挙動が明らかに変化していることがわかる。低周波 ($f = 10 \text{ kHz}$) と高周波 ($f = 100 \text{ kHz}$) における磁化ベクトルの遷移の模式図を Fig. 7(c) に示す。10 kHz ではゼロ磁場近傍で磁化ベクトルの重心位置が反転しており、これは磁壁移動 (DWP: Domain Wall Propagation) により磁化が進行していることを示す。またわずかながら磁化回転 (CR: Coherent Rotation) による磁化進行も見られる。一方で 100 kHz では DWP は起こらず、CR により磁化が進行していることが確認された。

以上の内容を総括すると、TFA ナノ結晶コアの磁化過程は 10 kHz から 100 kHz の間で DWP+CR の複合過程から CR 過程へ遷移する。これは鉄損や透磁率スペクトルなどの交流磁気特性の実験値と計算値が 80 kHz 付近で乖離する結果とよく整合している。つまり DWP+CR 過程においては鉄損ならびに透磁率スペクトルの周波数挙動が Cole-Cole 型の緩和式で記述できることが示された。

ところが、DWP+CR 過程と Cole-Cole 型の緩和式の関係についての物理的解釈に関しては後述のように不明な点が多い。誘電体分野において Cole-Cole 型緩和式は、異なる緩和周波数を有する Debye 緩和型緩和式に従う素過程として解釈されている。Debye 型緩和式は式 (8) で示した通り、Cole-Cole 型の緩和式において $\epsilon = 1$ とした式に一致する。

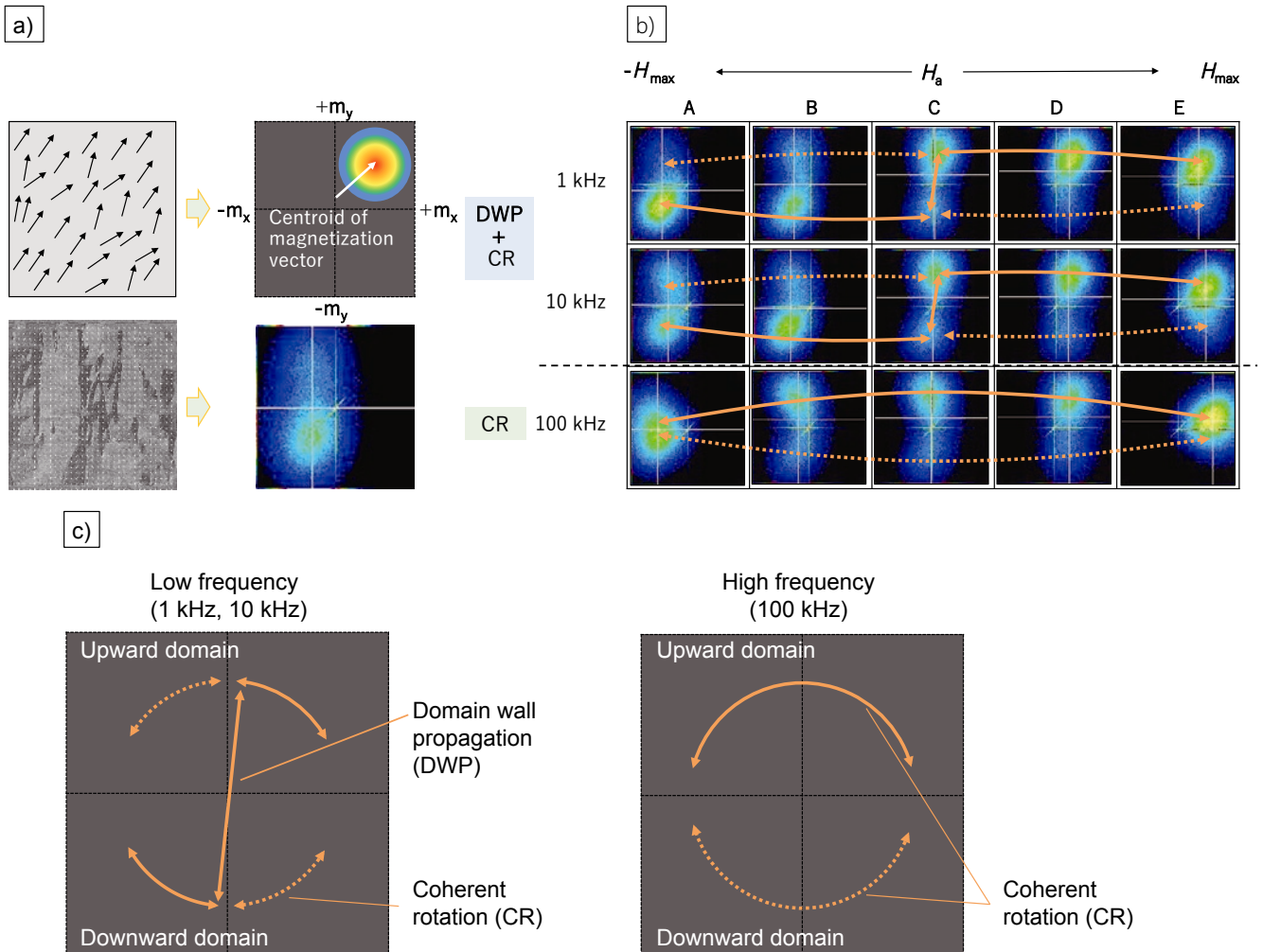


Fig. 7. a) Schematic diagram to produce the vector histogram, b) dynamical changes of the vector histogram at the frequency of 1, 10, and 100 kHz under the condition of $H_{max} = 500 \text{ A/m}$, and c) schematic image of changes of vector histogram at near zero field with low (1 kHz, 10 kHz) and high (100 kHz) frequency.

$$\mu = \frac{\mu_{DC}}{1 + (if/f_{relax})} \quad (7)$$

まず緩和周波数の分散については、Fuoss と Kirkwood は、Debye 緩和挙動を示す素過程の緩和周波数が式 (8) で表される周波数分散を持つとき、Cole-Cole 型緩和式を代数的に正しく再現できると主張した¹⁷⁾。

$$F(s) = \frac{1}{2\pi} \frac{\sin \epsilon \pi}{\cosh(\epsilon s) + \cos \epsilon \pi}. \quad (8)$$

しかし、この周波数分散の物理的な起源は明らかにされておらず、誘電体分野における未解決の問題である。軟磁性材料においても周波数分散の起源、つまり ϵ パラメータの影響因子を明らかにする必要があるが、これは今後の課題である。

次に、Debye 型の緩和式で表される素過程自体についても、さらに議論が必要である。Debye 緩和式に対応する物理現象はいくつかあり、磁壁運動方程式や CR の磁化挙動は、いずれも TFA ナノ結晶材においては Debye 緩和と同じ振る舞いを示す可能性がある^{18) ~ 22)}。Doring らにより磁壁運動は以下の微分方程式に従うことが示されている。

$$m \frac{d^2 x}{dt^2} + \beta \frac{dx}{dt} + \alpha = 2I_S H. \quad (9)$$

この方程式を正弦波励磁 $H = H_0 e^{i\omega t}$ の条件下で、磁壁の磁壁質量 m に関する項を無視して解くと、次式が得られる：

$$\mu_{DWP} = \frac{\mu_{DC,DWP}}{1 + (if/f_{relax,DWP})}, f_{relax} = \beta/2\pi\alpha. \quad (10)$$

ここで、 α と β は磁壁の復元定数とダンピング定数である。他方、ナノ結晶薄箔のような厚みの小さい箔材料の CR 過程においても以下の式 (11) で透磁率の周波数依存性が記述されることが先行文献で示されている²²⁾。

$$\begin{aligned} \mu_{rot} &= \frac{\mu_{DC,CR}}{1 - (f/f_{res,CR})^2 + (if/f_{relax,CR})} \\ &\simeq \frac{\mu_{DC,CR}}{1 + (if/f_{relax,CR})}. \end{aligned} \quad (11)$$

これは Debye 型の緩和式と相似形である。

ところで適切なパラメータを代入して計算することで、DWP における緩和周波数 $f_{relax,DWP}$ ならびに CR における緩和周波数 $f_{relax,CR}$ はそれぞれ 10 kHz – 100 kHz、10 MHz – 100 MHz と計算される。TFA 材の実験結果は前

述のように、80 kHz 以下の周波数では DWP+CR の複合過程によって引き起こされると予測される。さらに、磁壁をまたぐ磁化の向きは印加磁場に対して垂直であるため、印加磁場方向の磁化変化に対する DWP 過程の寄与はほとんどない。そのため、80 kHz 以下の磁化変化は主に CR 過程によるものと考えられる。にもかかわらず TFA 材の実測値 $f_{relax} = 54$ kHz は、DWP 過程のオーダーに近い値を示している。

この矛盾の一因として考えられるのが、Kuramoto モデルである²³⁾。これは、異なる固有周波数を持つ非線形振動子が相互作用によって結びついたときに、同じ周波数で共鳴する現象を記述する物理モデルである。このモデルにおいて、異なる固有周波数を持つ振動子同士が同期すること現象は、前述の磁化過程と非常によく似ている。つまり CR および DWP は、磁気交換相互作用を介して協調し共鳴することで、磁化変化を担う CR 過程の緩和周波数が DWP 過程の緩和周波数領域まで大幅に低下したのではないかと考えられる。いずれにせよ、この問題については今後さらに調査・議論を進める必要がある。

4. 結 言

本研究では、横磁場熱処理 (TFA) を施したナノ結晶コアの交流磁気特性と動的磁化挙動を調査し、交流磁気特性を定式化する方法を検討した。その結果、以下の知見を得た。

- 1) 80 kHz 以下の可逆過程における透磁率と鉄損の周波数依存性は、Cole-Cole 型の緩和式によって定式化できる。可逆過程における鉄損は動作周波数の $1+\epsilon (= 1.83)$ 乗に比例する。これは、Steinmetz の経験式や Bertotti の統計モデルでは記述されていない新しい周波数依存性であり、重要な結果である。
- 2) 動的磁区観察から、磁化過程は 10 kHz から 100 kHz の間で、磁壁移動と磁化回転の複合過程 (DWP+CR) から磁化回転過程 (CR) へと変化するが示された。これらの結果は、DWP+CR 過程における透磁率の周波数依存性が Cole-Cole 緩和 (CCR) 方程式によって定式化できることを示唆している。

ただし、Cole-Cole 型の緩和式における緩和周波数の分散の起源や Debye 緩和を示す素過程の物理的理解はまだ十分ではないため、今後議論して明らかにしていく必要がある。

謝辞

本研究の遂行にあたり、東北大学の杉本諭特任教授、岡本聡教授、遠藤教授には多大なるご指導ご鞭撻をいただきました。この場を借りて深くお礼申し上げます。

(文 献)

- 1) T. Minato, K. Sato: IEICE Electron. Exp., 11(2014).
- 2) A. Tüysüz, R. Bosshard and J. W. Kolar: The 2014 International Power Electronics Conference(2014), 1904.
- 3) Y. Yoshizawa, S. Oguma and K. Yamauchi: J. Appl. Phys., 64(1988), 6044.
- 4) G. Herzer: Acta Mat., 61(2013), 718.
- 5) K. Suzuki, G. Herzer and J. M. Cadogan: J. Magn. Magn. Mater., 177-181(1998), 949.
- 6) S. Flohrer, R. Schafer, J. McCord, S. Toth, L. Schultz, F. Fiorillo, W. Gunther and G. Herzer: Acta Mater., 54(2006), 4693.
- 7) C. P. Steinmetz: Proceedings of the IEEE, 72(1984), 196.
- 8) C. Beatrice, V. Tsakaloudi, S. Dobak, V. Zaspalis, F. Fiorillo: J. Magn. Magn. Mater., 429(2017), 129.
- 9) E. Ferrara, F. Fiorillo, C. Beatrice, S. Dobak, C. Ragusa, A. Magni and C. Appino: J. Mat. Res., 33(2018), 2120.
- 10) S. Dobak, C. Beatrice, F. Fiorillo, V. Tsakaloudi and C. Ragusa: IEEE Magn. Lett. 10(2018), 7100205.
- 11) H. Zhao, C. Ragusa, C. Appino, O. de la Barriere, Y. Wang and F. Fiorillo: IEEE Trans. Power Electron. 34(2019), 2655.
- 12) N. Ono, Y. Uehara, T. Onuma, T. Taniguchi, N. Kikuchi and S. Okamoto: J. Magn. Magn. Mater., 603(2024), 172222.
- 13) V. Tsakaloudi, C. Beatrice, F. Fiorillo and V. Zaspalis: J. Magn. Magn. Mater., 603(2024), 172228.
- 14) T. Ogasawara: Jpn. J. Appl. Phys., 56(2017), 108002.
- 15) T. Ogasawara and A. Yamaguchi: Jpn. J. Appl. Phys., 61(2022), 018001.
- 16) K. S. Cole, R. H. Cole: J. Chem. Phys., 9(1941), 341.
- 17) R. M. Fuoss, J. G. Kirkwood: J. Am. Chem. Soc., 63(1941), 385.
- 18) W. Döring: Z. Naturforsch., 3a(1948), 373.
- 19) L. Landau, E. Lifshitz: Phys. Z. Sowjet. Union, 8(1935), 153.
- 20) H. J. Williams, W. Shockley and C. Kittel: Phys. Rev., 80(1950), 918.
- 21) T. L. Gilbert: Phys. Rev., 100(1955), 1243.
- 22) C. Ragusa, S. Dobak, C. Beatrice, L. Solimene, A. Magni and F. Fiorillo: IEEE Access, September, 42(2024), 136713.
- 23) Y. Kuramoto: Chemical Oscillations, Waves and Turbulence, Springer-Verlag(1984).



富田祐也



小笠原剛



高林宏之



入山恭彦

本論文は、「AIP advances」3号 15巻, 035115に掲載された“Analysis of iron loss and complex permeability spectra for transverse-field-annealed Fe-based nanocrystalline core” ©Yuya Tomita, Takeshi Ogasawara, Hiroyuki Takabayashi, Takahiko Iriyama(2025)(CC BY 4.0, <https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>) [<https://doi.org/10.1063/9.0000892>]の内容を翻訳し、加筆修正したものである。