

氏 名	牧 野 彰 宏
授 与 学 位	工 学 博 士
学位授与年月日	平成 3 年 2 月 13 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 5 条第 2 項
最 終 学 歴	昭 和 55 年 3 月 東北大学大学院工学研究科金属材料工学専攻 前期 2 年の課程修了
学 位 論 文 題 目	音声磁気ヘッド用 Co-Fe-Si-B 系非晶質合金に 関する研究
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 増本 健 東北大学教授 藤森 啓安 東北大学教授 本間 基文 東北大学教授 深道 和明 東北大学教授 井上 明久

## 論 文 内 容 要 旨

### 第 1 章 序 論

昨今の磁気記録技術の発展，とりわけ媒体の高保磁力化，また装置の小型化，高密度化，高画質化，高音質化の流れの中，より高性能な磁気ヘッドが望まれている。これを実現するためには，高い飽和磁束密度と優れた軟磁気特性を兼備し，かつ耐摩耗性，耐環境性などを含め高い信頼性をもつ磁気ヘッド用材料の開発が必要不可欠である。

このような状況の中，1970年代後半から優れた軟磁気特性をもつ磁歪零 Co-Fe-Si-B 系非晶質合金の磁気ヘッドの応用が有望視され，幾つかの検討結果も報告されている。1981年には音声磁気ヘッドが一部実用化されるに至ったが，当初期待されたほどの性能が得られていない。この原因は，種々の材料特性と合金組成の関係に関する詳細な検討，複雑な磁気ヘッドの製造工程における磁気ヘッド材料の特性変化を前提とした材料設計及び熱処理条件の検討，更に磁気ヘッドの構造から必要とされるリボン厚さの精度，表面粗さを実現するための最適な製造方法の検討が不充分であるためと考えられる。

本論文の目的は，上述の観点から，従来にない優れた性能の音声磁気ヘッドを提供するため，液体急冷法を用い音声用磁気ヘッド材料として優れた非晶質合金を見出すこと，更に液体急冷法とリボンの表面研磨法に関する詳細な検討を行ない，音声用磁気ヘッド材料として要求されるリボン



さくなり、また同じ (Si+B) で比較すると  $Si/(Si+B) = 0.5$  で最小となる。この結果は液体急冷状態の Hc の半金属組成依存性と若干異なる。

図 3 に DSC 曲線上で観察された低温側の結晶化温度 ( $T_{x1}$ ) の半金属組成依存性を示す。 $T_{x1}$  は (Si+B) が大きいほど高くなり、また同じ (Si+B) で比較すると  $Si/(Si+B)$  が約 0.55 以下では大きな変化は見られないが、それ以上では急激に低下する。なお、X線回折により、 $Si/(Si+B)$  が大きい場合は hcpCo,  $Co_2Si$  の折出が容易であることが確認されている。焼鈍後の Hc は、液体急冷状態における非晶質相の均一性、完全性と上述したその熱的安定性に関連していることが推測される。

飽和磁化 ( $\sigma_s$ ) および最適焼鈍後の  $\mu_e$  の半金属組成依存性を詳細に調べた結果を整理し、 $\sigma_s$  と  $\mu_e$  の関係に及ぼす半金属組成の影響を図 4 にまとめた。図中、 $Si/(Si+B) = 0.06$  の曲線が最も右上に位置しており、この半金属組成で高い飽和

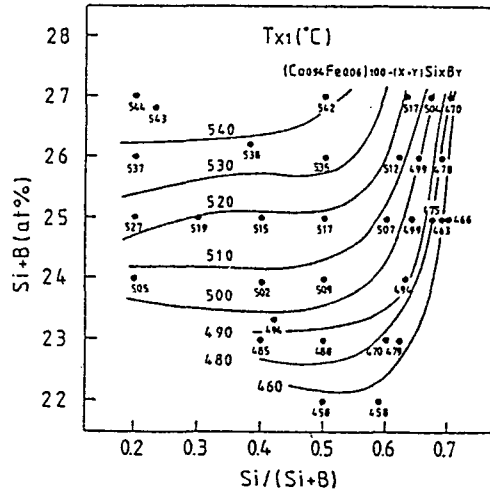


図 3  $(Co_{0.94}Fe_{0.06})_{100-(x+y)}Si_xB_y$  非晶質合金における第 1 の結晶化温度 ( $T_{x1}$ ) の半金属組成依存性

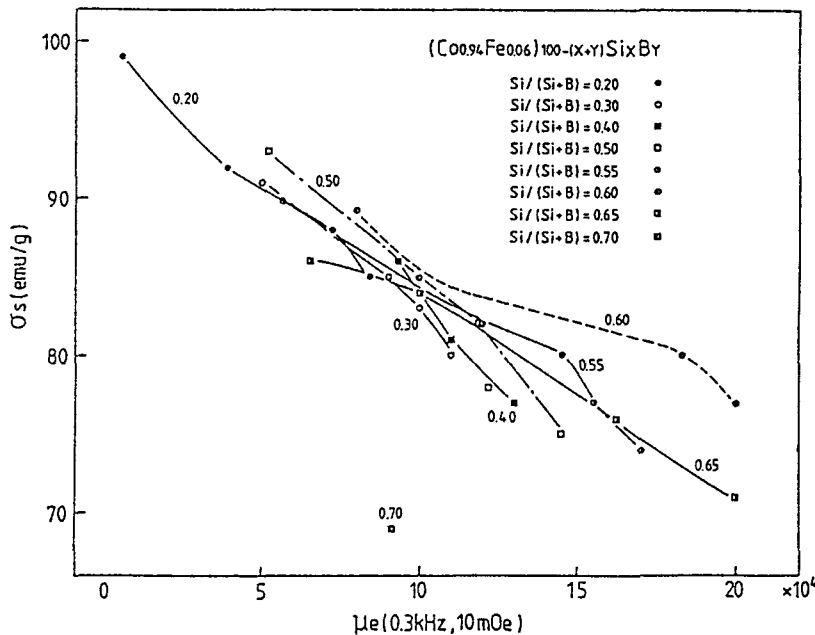


図 4 最適焼鈍された  $(Co_{0.94}Fe_{0.06})_{100-(x+y)}Si_xB_y$  非晶質合金における飽和磁化 ( $\sigma_s$ ) と透磁率 ( $\mu_e$ : 0.3kHz, 10mOe) の関係に及ぼす  $Si/(Si+B)$  の影響

和磁化と焼鈍後における高い $\mu_0$ (0.3kHz)が最も得られ易いことが判る。 $\mu_0$ (100kHz)においてはこの傾向がより顕著であったが、これは、固有抵抗が(Si+B)およびSi/(Si+B)の増加にともない高くなることによると考えられる。

即ち、序論で述べた高い $\sigma_s$ と高い $\mu_0$ を兼備した半金属組成はSi/(Si+B)=0.06付近に存在することが見い出された。

## (2) 磁気特性に及ぼす添加元素の効果

磁気特性に及ぼす添加元素(V, Cr, Mn, Nb, Mo, Ta, W, Ru)の効果は、大半の元素では半金属元素量を増加したのと定性的には類似しているため、本研究における添加元素効果については磁気特性の観点のみでなく、磁気ヘッド材料としての信頼性、耐環境性の観点からも調べた。

## 3-2 Co-Fe-Si-B系非晶質合金の熱的安定性

### (1) 脆化挙動

図5に種々の非晶質合金の $\lambda_f$ (曲げ試験における破壊ひずみ)の熱処理温度依存性を示す。用いたすべての非晶質合金において2段の脆化が観察され、高温側の脆化温度( $T_{B2}$ )は結晶化によるものであり、低温側の脆化温度( $T_{B1}$ )は低温で生じる非晶質相の構造緩和によることを見い出された。また、 $T_{B1}$ に及ぼす添加元素の効果を図6に示す。いずれの添加元素においても $T_{B1}$ を上げる効果は見い出されず、WおよびMnは著しく $T_{B1}$ を下げ、NbおよびTaも $T_{B1}$ を低下させる。またRuおよびCrはほとんど $T_{B1}$ に影響を及ぼさない。

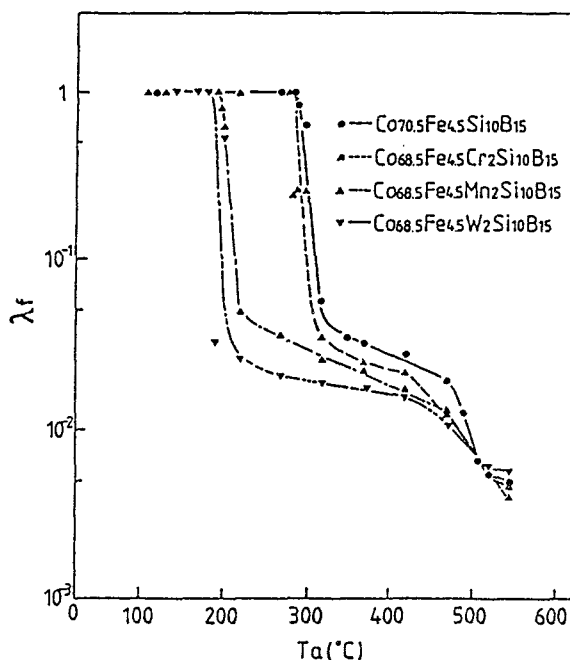


図5  $\text{Co}_{70.5}\text{Fe}_{4.5}\text{Si}_{10}\text{B}_{15}$  および  $\text{Co}_{68.5}\text{Fe}_{4.5}\text{M}_2\text{Si}_{10}\text{B}_{15}$  ( $\text{M}=\text{Cr}, \text{Mn}, \text{W}$ ) 非晶質合金における最大ひずみ ( $\lambda_f$ ) の熱処理温度 ( $T_a$ ) 依存性

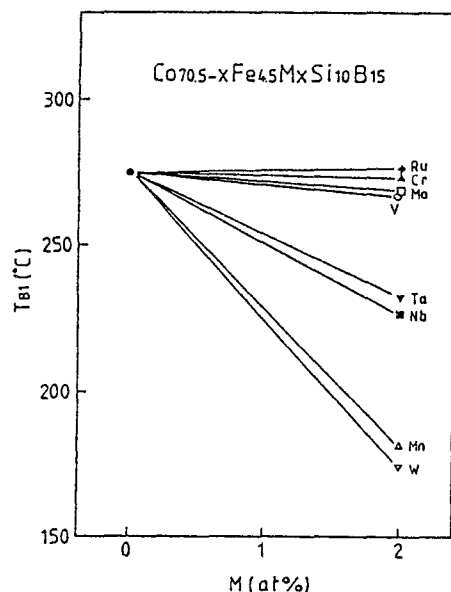


図6  $\text{Co}_{70.5}\text{Fe}_{4.5}\text{Si}_{10}\text{B}_{15}$  非晶質合金における低温側の脆化開始温度 ( $T_{B1}$ ) に及ぼす添加元素の影響

音声磁気ヘッドの製造工程中、焼鈍された磁気ヘッド材料が研磨される工程には幾つかあり、この研磨により磁気ヘッド材料にクラックなどが発生し易いため、熱処理後の材料の延性が高いことが必要である。この様な観点から、添加元素の使用は極力行わない方が良いが、特に W, Mn, Nb, Ta は好ましくないと言える。

#### 第4章 磁気ヘッド用 Co-Fe-Si-B 系非晶質合金における最適組成の検討

本章では前章の結果をふまえ、音声磁気ヘッド材料としての実用化に向けた具体的な検討を行なった。

非晶質合金が結晶質合金に比較して熱的安定性に欠けること、形状がリボン状であることを考慮し、優れた性能を持つ音声磁気ヘッドの実現のために開発すべき非晶質合金に要求される具体的な性質としては、

①樹脂モールド後の軟磁気特性が優れていること

高い飽和磁気を備え、かつ樹脂モールドにより応力が負荷されたり、加熱されたりしても、軟磁気特性が変化しないこと。また樹脂モールド後の透磁率の周波数特性 (0.3kHz~100kHz) が良いこと

②軟磁気特性の温度依存性が小さいこと

③耐摩耗性が大きいこと

④耐環境性が高いこと

⑤打抜加工性が良いこと

などが挙げられる。

磁歪零付近の Co-Fe-Si-B 系非晶質合金を用いて作製した磁気ヘッドの実走行試験の結果、摩耗量は  $Si/(Si+B)$  が大きい方が若干少なくなる傾向が見られ、また摩耗量の (Si+B) 依存性がほとんど観察されなかった。摩耗量に及ぼす添加元素の効果を図7に示すが、Ruのみ改善効果が認められた。非晶質合金の耐摩耗性は高い硬度を示すにも関わらず高硬度パーマロイ (Nb-パーマロイ) より劣り、Ruを2%添加することによりほぼ同等となる。

耐環境性の検討としては、塩水噴霧試験、耐湿試験、磁気テープによる腐食試験を行ない、Cr, Ruの添加が耐環境性の改善に効果があり、その効果は  $Si/(Si+B)$  が大きいとき著しいことが判明した。Cr, Ruは、3章にて述べた様に、加熱により脆化を促進しない元素であり、また本研

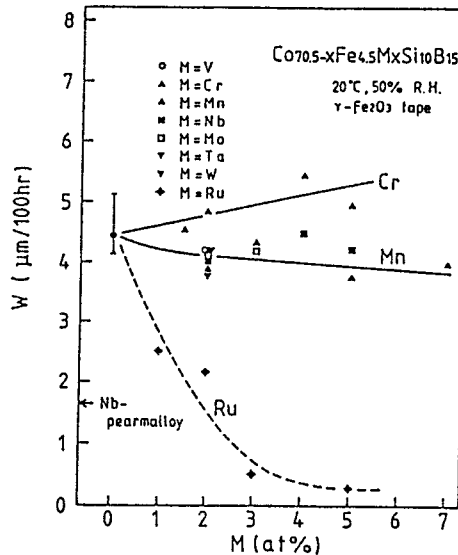


図7 Co<sub>70.5-x</sub>Fe<sub>4.5</sub>M<sub>x</sub>Si<sub>10</sub>B<sub>15</sub>非晶質合金の摩耗量 (W) に及ぼす添加元素の効果

究で検討した元素の中では  $\sigma_s$  の低下の程度が小さい点からも好ましい。

実際に材料が磁気ヘッドに組み込まれた状態での軟磁気特性を評価するため、磁気ヘッド製造工程中において非晶質合金の軟磁気特性におおきな影響を及ぼすと考えられる積層接着および乾燥硬化、樹脂注入および乾燥硬化の2つを取りあげ、リング試料を焼鈍した後、上記の2つの工程と同一条件での処理を行ない、工程の前後で軟磁気特性を測定した。試料の組成はこれまでの結果をふまえ、 $Si/(Si+B)=0.06$ 付近、添加元素をCr, Ruとし、また(Co+Fe)はメタルテープ対応のために、8000G程度の磁束密度( $B_{10}$ )が得られる様に選択した。

図8は $Co_{68.1}Fe_{4.1}Cr_{1.5}Ru_{3.3}Si_{13.3}B_{10}$  [ $Si/(Si+B)=0.57$ ] 非晶質合金における焼鈍後および積層・樹脂モールド後の $\mu_o$ と焼鈍温度( $T_a$ )との関係を示す。焼鈍後の $\mu_o$ の $T_a$ 依存性はほとんど見られないが、積層・樹脂モールド後の $\mu_o$ の $T_a$ 依存性は大きい。また $T_a$ を一定にしたとき、積層・モールド後の $\mu_o$ の $Co/(Co+Fe)$ 依存性が観察され、 $Co/(Co+Fe)$ を小さくすると $T_a$ を上げることが積層・モールド後の $\mu_o$ に対し同様の効果を持つことが見出された。積層・モールド後の $\mu_o$ のこのような挙動は磁歪の微小な変化によると推察される。

図9に示した様に種々の非晶質合金において、 $T_a$ と $Co/(Co+Fe)$ の間に適正な関係が満たされるとき、図10に示す様な積層・モールド後の $\mu_o$ が得られる。これらの値は従来の磁気ヘッド材料である高硬度パーマロイ、センダストおよび一部で実用化されているCo基非晶質合金よりも著しく優れており、また時効(120°C×10h)による変化も観察されず、高い熱的安定性が確認された。

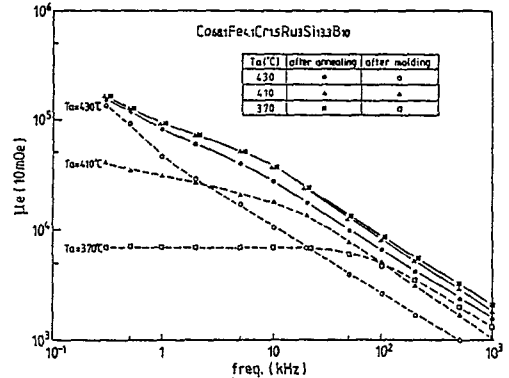


図8  $Co_{68.1}Fe_{4.1}Cr_{1.5}Ru_{3.3}Si_{13.3}B_{10}$  非晶質合金における積層、樹脂モールド後の透磁率( $\mu_o$ : 10mOe)と焼鈍温度( $T_a$ )の関係

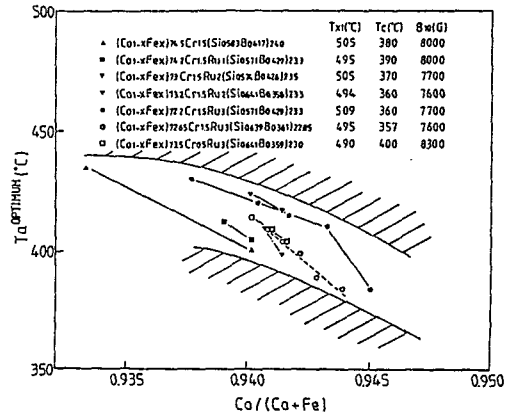


図9 種々の組成の非晶質合金における最適焼鈍温度( $T_a$  OPTIMUM)と $Co/(Co+Fe)$ の関係

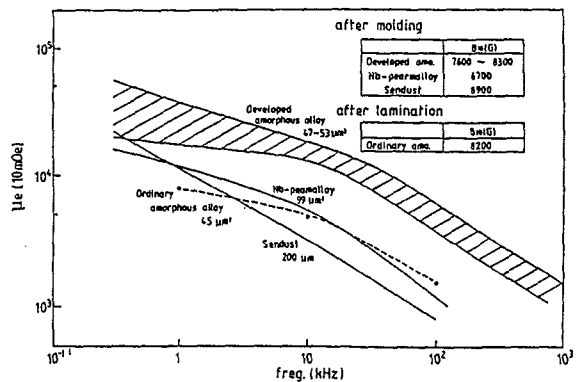


図10 種々の組成の非晶質合金における積層・樹脂モールド後の透磁率( $\mu_o$ : 10mOe)の周波数特性および従来の磁気ヘッド材との比較

## 第5章 Co-Fe-Si-B系非晶質合金の音声磁気ヘッドへの応用

本章では、4章にて見いだされた音声磁気ヘッド用  $\text{Co}_{69.16}\text{Fe}_{4.34}\text{Cr}_{0.5}\text{Ru}_3\text{Si}_{14.74}\text{B}_{8.26}$  非晶質合金を用い、液体急冷法における種々の因子とリボンの厚さおよび表面粗さとの関係を詳細に調べ、製造条件の最適化を図り、更にリボン表面の粗さを改善するため、リボン表面の研磨法について検討した。次いで、音声磁気ヘッドを試作し、本研究において見いだされたCo-Fe-Si-B-Cr-Ru非晶質合金とその製造法が磁気ヘッド材料として最適であることを従来の磁気ヘッド材料を用いた磁気ヘッド性能比較を行ない、検証した。

図11は噴出中ロール回転数を一定とした場合(Ordinary method)とロール回転数を最適条件で減少させた場合(New method)のリボン厚さのリボン長さ方向の変化を示す。液体急冷条件を最適化することにより200m以上の長さのリボンが $\pm 5 \mu\text{m}$ の厚さ精度で製作可能となった。

表面粗さはロールとノズル間のギャップおよびロール表面粗さに依存し、これらを最適に選択することにより改善できることが見いだされたが、更にリボンの連続表面研磨装置を開発することにより $1 \mu\text{m}$ 台の表面粗さ( $R_z$ )を実現した。

上述した製造方法にて作製された非晶質合金を用い、試作した音声磁気ヘッドの電磁変換特性を表1に示す。本結果から、本非晶質合金ヘッドは従来のセンダストおよび高硬度パーマロイを用いた磁気ヘッドと比較し、再

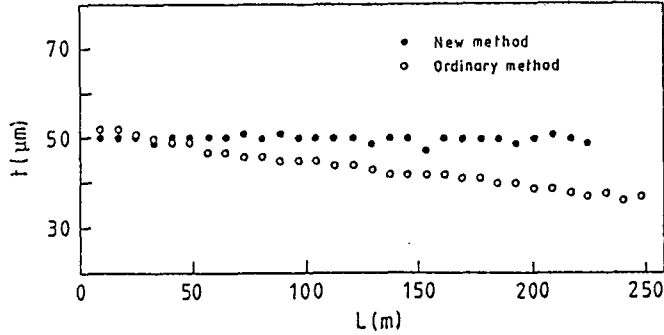


図11 非晶質合金リボン厚さ (t) の長さ方向における変化

表1 本研究において見いだされた非晶質合金、センダスト、高硬度パーマロイを用いた試作ヘッドの電磁変換特性

	非晶質合金ヘッド	高硬度パーマロイヘッド	センダストヘッド
再生感度 (315Hz, 250nwb/m)	-71.0dBV	-71.5dBV	-71.0dBV
再生F特 (14K/315Hz)	+13.5dB	+12.5dB	+12.0dB
録音F特 (14K/1kHz)	-11.0dB	-11.5dB	-12.5dB
MML 315Hz	+4.0dB	+3.5dB	+4.0dB
MOL 10kHz	+2.5dB	+1.5dB	+2.0dB
ひずみ K3/250	1.0%	1.0%	1.0%
ハイパス電流	400 $\mu\text{A}$	800 $\mu\text{A}$	850 $\mu\text{A}$
音圧電流	40 $\mu\text{A}$	40 $\mu\text{A}$	40 $\mu\text{A}$

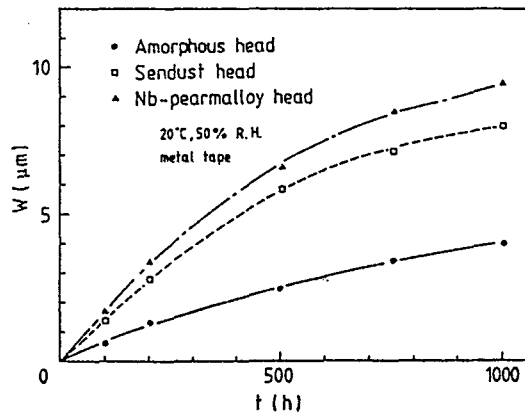


図12 本研究にて見いだされた非晶質合金、センダスト、高硬度パーマロイを用いた試作ヘッドのメタルテープによる摩耗量 (W)

生感度，再生周波数特性，録音周波数特性などいずれにおいても優れており，またバイアス電流も小さく省電力化が可能であることが判る。

図12に示す様に市販のメタルテープに対する耐摩耗性は，本非晶質合金磁気ヘッドがセンダストおよび高硬度パーマロイ磁気ヘッドよりも優れていることが判明した。

本非晶質合金ヘッドの1000h 走行後における電磁変換特性の変化は，耐摩耗性が良好であるためほとんど認められず，また耐湿および時効後の電磁変換特性の変化も観察されないことから，本非晶質合金磁気ヘッドの実用化性能は優れていることが確認された。

本研究成果により，従来ない優れた性能をもつ非晶質合金音声磁気ヘッドが実用化された。

## 第 6 章 総 括

本研究で得られた結果を総括し，要約を記述した。



## 審 査 結 果 の 要 旨

音声磁気ヘッドは磁気記録における重要な中枢部品であり、その高性能化が望まれている。この磁気ヘッドに使用されている材料としては、現在硬質パーマロイ、センダストが主流であるが、これらの性能には一長一短があり、必ずしも満足する材料ではない。本論文はこの音声磁気ヘッドに使用される高性能磁性材料として非晶質合金を適用し、その開発を行った結果をまとめたもので、全編6章よりなる。

第1章は序論であり、本研究の意義と目的について述べている。

第2章では、本研究において用いた試料作製法および主な実験方法について述べている。

第3章では、磁わい零組成のCo-Fe-Si-B系非晶質合金における熱安定性、基本的磁気特性の組成依存性および熱処理依存性を詳細に調べている。その結果、最適熱処理条件、高飽和磁化と高透磁率を同時に満足する半金属量を見出し、この磁気特性が現用磁気ヘッド材料よりも優れていることを明らかにしている。

第4章では、前章で見出した非晶質合金を磁気ヘッドに適用するために必要な材料特性、すなわち耐摩耗性、耐環境性、打抜加工性、延性-脆性挙動などを検討し、CrおよびRuの微量複合添加が最適であることを見出している。さらに、この材料のモールド後の磁気特性とその経時変化を調べ、現用材料と比較した結果、本研究で見出した新しい非晶質合金はモールド処理後も高透磁率を保ち、経時変化もほとんど無い材料であることを示している。

第5章では、上記非晶質合金を実際の音声磁気ヘッドとして使用するための基本的製造工程で必要な諸条件とその適性化を検討し、このヘッドを組込んだ時の実用上の機器特性を調べて、現用音声磁気ヘッドを用いたものより優れていることを実証している。

第6章は総括である。

以上要するに、本論文は、音声磁気ヘッド材料として非晶質合金の適用を試み、現用材料と較べて高性能な磁気特性を有する最適組成を見出し、さらにこの合金を用いた磁気ヘッドの特性試験を行い、現用ヘッドと較べて最高級の性能を有することを見出し、製品化することに成功したもので、材料物性学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。