

SWAP 法による Fe 基アモルファス磁性粉末の 作製とその成形磁心の磁気特性

Fabrication of Fe-Based Amorphous Powders by the Spinning Water Atomization Process, and the Magnetic Properties of Their Compressed Powder Cores

大塚 勇・遠藤 功・越本秀生・山本裕史, 奥野良誠・吉野正規*・深見寿孝**・八木正昭**

(株)クボタ技術開発研究所, 兵庫県尼崎市浜 1-1-1 (〒661)

*(株)クボタ恩加島工場, 大阪市大正区南恩加島 7-1-22 (〒551)

**熊本工業大学エネルギーエレクトロニクス研究所, 熊本県熊本市池田 4-22-1 (〒860)

I. Otsuka, I. Endo, H. Koshimoto, H. Yamamoto, R. Okuno, M. Yoshino,*
H. Fukami,** and M. Yagi**

Technology Development Lab., Kubota Co., 1-1-1 Hama, Amagasaki, Hyogo 661

*Okajima Plant, Kubota Co., 7-1-22 Minamiokajima, Taisyō, Osaka 551

**Energy Electronics Lab., Kumamoto Institute of Technology, 4-2-1 Ikeda, Kumamoto 860

Amorphous $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{12.5}\text{B}_{12.5}$ powders were fabricated by spinning water atomization process (SWAP). The powders obtained exhibited good soft-magnetic properties up to particle size of about 200–300 μm . These amorphous particles were insulated by glass powder and pressed into toroidal and E shape cores by hot-pressing techniques at relatively high temperature conditions below crystallization temperature. The densities of the pressed cores were about 80–85%. The magnetic properties of toroidal samples 20 mm in diameter were measured after annealing. For the core pressed at 1.5 GPa, 465°C, the core loss at 100 kHz was $13 \text{ J/m}^3 (= 1.3 \text{ W/cc})$ for $B_m = 0.1 \text{ T}$ and the initial permeability was about 100 in the frequency range up to 1 MHz for $H_m = 5 \text{ mOe}$, which were comparable to those of commercial Sendust compressed core and Fe-based gapped amorphous ribbon cores for application to fly-back transformers or choking coils operating at frequencies above 100 kHz.

Key words: amorphous, Fe-Si-B alloy, soft-magnetic powder, hot pressing, high-frequency core

1. はじめに

アモルファス軟磁性粉末が工業的に量産され、アモルファスの磁氣的優位性を生かして成形ができれば、トロイダルまたは積層磁心に限られるアモルファス薄帯とは異なり、任意形状の加工も可能な磁心材料として新しい応用が期待できる。

このような観点から、徒来からアモルファス磁性粉末の製造法の研究は多く行われているが、十分高い急冷速度と高い生産性および量産性を共に満足する工業的製法は確立されていないようである¹⁾。また、軟磁性アモルファス粉末のバルク化に関しては、薄帯の粉碎材や急冷凝固粉のホットプレス(HP)などの静的な高圧成形^{2)~4)}、火薬などによる動的高圧成形⁵⁾、押出し加工などの塑性加工⁶⁾による成形など多くの研究がなされており、さらに、アモルファス薄帯の粉碎材をナノ結晶・バルク化させた最近の報告もある^{7), 8)}。しかしながら粉末成形体では、アモルファス、ナノ結晶共に高密度化の報告例は多いが、薄帯

に匹敵する軟磁性は得られていないようで、特に、実用化可能な高周波磁気特性は達成されていない。

本研究では、高周波用アモルファス粉末成形磁心を得るために、従来のドラムを用いた回転液アトマイズとは異なり、筆者らのひとり吉野らが最近開発した連続大量生産が可能な新しいアトマイズ法—SWAP 法 (Spinning Water Atomization Process)⁹⁾—を用いて Fe 基アモルファス粉末粒子を作製し、さらに、これら粉末に少量のガラス粉末を添加・混合し、ホットプレス法を用いてアモルファス粉末成形磁心を作製した。

2. アモルファス軟磁性粉末の作製

2.1 作製方法

粉末作製に用いた SWAP 法は、Fig. 1 に示したように高速回転水流を冷却媒体としている。本方法は、従来の水アトマイズ法と異なり、高速回転水流の遠心力で水凝固時に粒子周りに発生する水蒸気膜を急速に剥離し、蒸気膜による熱伝導の低下を抑制し高い冷却速度を可能にしている。吉野らの Al 合金凝固粉の組織観察結果を基にした推定では、粒径数 100 μm の

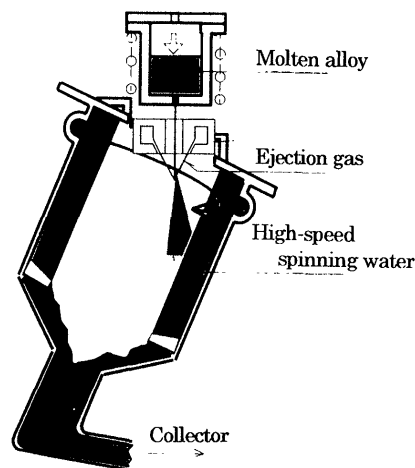


Fig. 1 Schematic of the spinning water atomization process (SWAP).

粗粒まで 10^5 K/s 以上の急冷速度が得られている⁷⁾。

本研究では、溶融合金を窒素ガスを用いて細かく分断し（ガス圧 3 MPa, ノズル径 $\phi 3$ mm）、50～60 m/s の高速回転水流で急冷凝固させた。試料粉末の組成は $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{12.5}\text{B}_{12.5}$ (at%) である。

2.2 作製結果

Fe-Si-B 急凝固粉の SEM による観察例を Fig. 2 に示した。粒子形状は、微細粒の場合は球形に近く、大きくなるに従ってやや細長・扁平になる傾向が見られ、粒径 $200\text{ }\mu\text{m}$ 以上の粗粒では涙滴状のものも観察された。

Fig. 3 は累積重量比率で表した試作粉末の粒度分布である。平均粒子径が約 $100\text{ }\mu\text{m}$ の対数正規分布を示している。Fig. 4 は粒子径別の X 線回折結果で、 $44\text{ }\mu\text{m}$ 以下の微細粒から $297\text{ }\mu\text{m}$ の粗粒に至る広い粒度でアモルファス状態が確認される。また DSC で求めた結晶化開始温度は 530°C (昇温速度 $10^\circ\text{C}/\text{min}$) であった。

Fig. 5 は、歪み取り熱処理後の粉末を、VSM で測定した (測定最大磁界 10 kOe) 粒度別の保磁力 H_c である。 H_c は粒径の増大に従い若干増加の傾向があるが、微細粒から粗粒に至るまで $0.1\sim 0.5\text{ Oe}$ を示しており良好な軟磁性が得られている。

以上、SWAP 法はアモルファス軟磁性粉末の製法として十分な急冷速度と高い生産性を有していることがわかった。

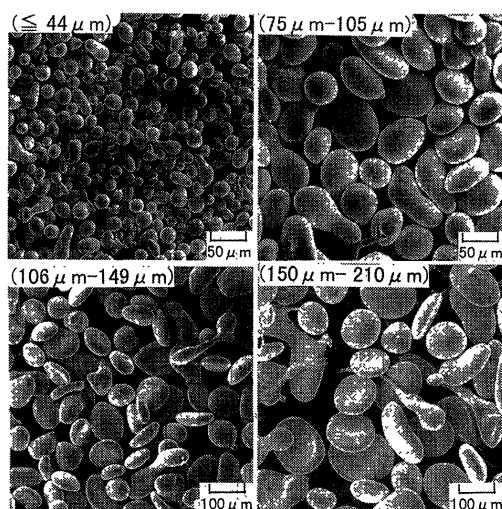


Fig. 2 Shape of Fe-Si-B amorphous powder particles produced by SWAP.

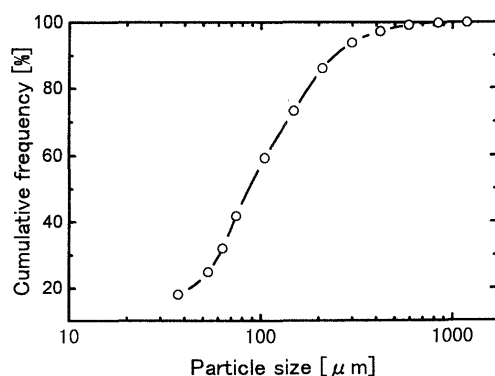


Fig. 3 Particle size distribution of Fe-Si-B powder.

3. アモルファス粉末成形磁心の作製

3.1 作製方法

高周波磁心を得るための成形バルク化には、(1) 低ヒステリシス損を得るためのアモルファスの軟磁性の保持、(2) 渦電流抑制のための粒子間の絶縁、(3) 粉体の反磁界を低減し透磁率を上げるための高密度成形の三条件を同時に満足する必要がある。相反する関係もあるが、次の方法を用いた。

試作 Fe 基アモルファス粉末に 10 vol% のホウ珪酸ガラス粉末 (平均粒径 $10\text{ }\mu\text{m}$) をボールミルで混合し、ホットプレス (HP) 法で結晶化温度以下の比較的高い温度で熱間加圧成形を行った。成形条件は、大気中、成形温度 $400\sim 500^\circ\text{C}$ 、成形圧力 $1.5\text{ GPa}\times 600\text{ s}$ である。使用したアモルファス合金は $250\text{ }\mu\text{m}$ 以下の粉末 (平均粒径 $125\text{ }\mu\text{m}$) で、ガラス粉末にバインダーと粒子間絶縁の両方の機能をもたせた。

計測した試料は、成形した円板 (直径 $20\times$ 高さ 5 mm) を成形後に内径 ($10\sim 12\text{ mm}$) を機械加工し、歪み取り熱処理したリング磁心である。また金型のみで E 形磁心を成形した。

3.2 作製結果

HP 成形加工したリング状と E 形のアモルファス粉末磁心を Fig. 6 に示した。E 形磁心は商用の EE-28 フェライトと同寸法で、フェライト並みの任意形状のアモルファス磁心の作製が可能なることを示している。また、成形体は施盤による機械加工もできる強度を有しているが、これは機械的に脆弱な焼結体のフェライトにはない特徴である。

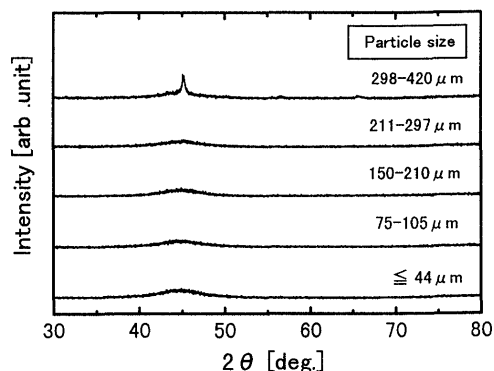


Fig. 4 X-ray diffraction patterns of Fe-Si-B powders.

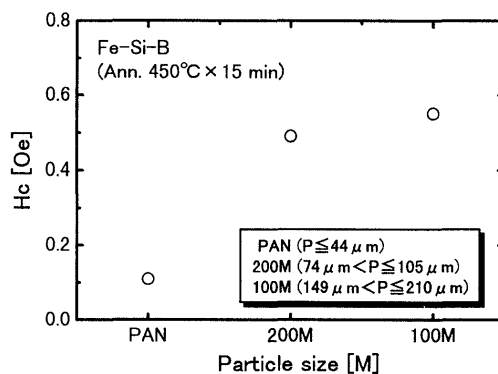


Fig. 5 Coercive force H_c of Fe-Si-B amorphous powders after annealing.

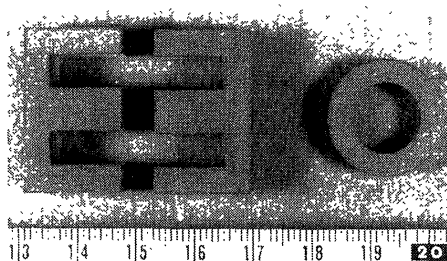


Fig. 6 Amorphous magnetic powder cores produced by the hot-pressing technique.

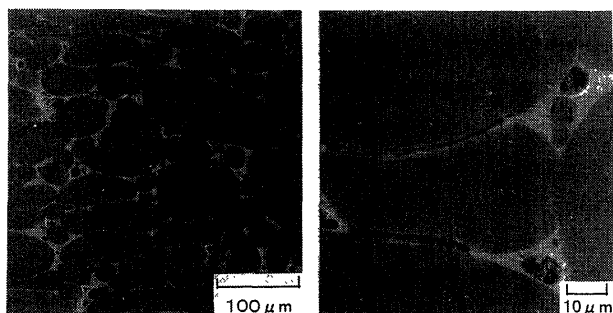


Fig. 7 Micrograph of the cross-section of amorphous powder core pressed at 465°C under 1.5 GPa.

Fig. 7 は成形磁心の研磨断面のSEMによる観察結果である。研磨の過程で微細粒の一部が脱落しているので実際とは多少異なるが、微細粒が粗粒の間に入り込み、粗粒同士が押し合って潰れ、粒子間には添加したガラス（白い部分）が観察され、石垣状組織を呈していることがわかる。成形条件によって異なるが、成形体からガラス体積部を除いた磁性粉の相対密度は80～85%であった。

Fig. 8 は成形磁心のX線回折結果で、成形温度の上昇に従って回折パターンブロードな山がやや高くなる傾向が見られるが、結晶化温度以下の成形では、明確な結晶化の回折は認められず、HP成形後もアモルファス状態が確認された。

Fig. 9 は、成形体の一部を矩形棒状に切りだした試料について、4端子法で求めた抵抗率 ρ の周波数特性である。 ρ は450°C成形の場合 $2 \times 10^{-3} [\Omega \cdot \text{m}]$ でアモルファス合金自体の約1500倍の値を示しているが、485°Cではその約1/3に低下している。この電気抵抗の低下の原因は、部分的に粒子間絶縁の不完全さが生じたためと考えられるが、詳しくは検討中である。図中、 ρ の値が1 MHz以上の高周波側で増加の傾向が見られるのは、内部インダクタンスの影響と思われる。

4. アモルファス粉末成形磁心の磁気特性

4.1 直流磁化特性

425, 485°Cで加圧成形した後、475°C×15 min 歪み取り熱処理を施したリング状磁心のB-H曲線をFig. 10に示した。加圧成形によって実効的な反磁界の低減が認められ、一般に、成形温度を上げるとB-H曲線は立ち上がり、最大磁束密度 B_m が増加し、保磁力 H_c が増大する傾向が見られた。

4.2 透磁率の周波数特性

Fig. 11 は、インピーダンスアナライザ(YHP4194A)を用いて測定した成形磁心の透磁率 μ' の周波数特性である。 μ' は

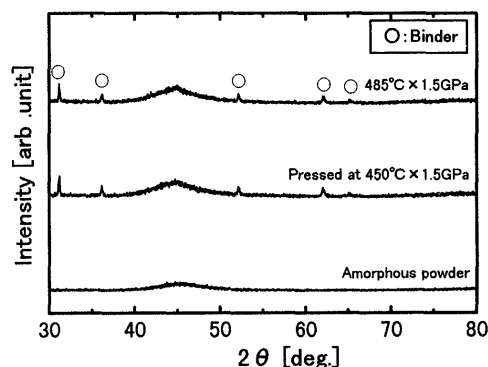


Fig. 8 X-ray diffraction patterns of hot-pressed amorphous powder cores.

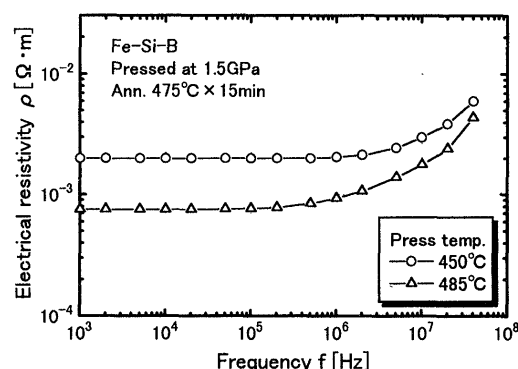


Fig. 9 Frequency dependence of the electrical resistivity of amorphous powder cores.

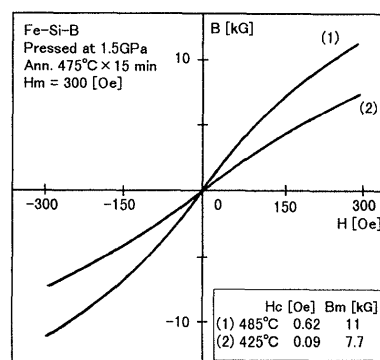


Fig. 10 DC B-H curves of hot-pressed amorphous powder cores.

成形温度を上げると増加する傾向が認められ、450°Cを超えると100前後の値が得られる。これは成形温度の上昇に従って磁性粉の相対密度が高くなる効果と考えられる。

成形温度485°Cの場合、周波数特性が悪くなっているが、これはFig. 9に示したように、電気抵抗が低下したためと考えられる。

透磁率が100前後で数100 kHz～1 MHz周波数特性は、チョークコアやフライバックトランスに要求される特性であるが、試作磁心はこの要求を満たしており、市販のセンダスト磁心やギャップ付きアモルファス薄帯磁心とほぼ同等の特性である^{10), 11)}。したがって、本研究のアモルファス粉末成形磁心は、これら応用の可能性があることがわかった。

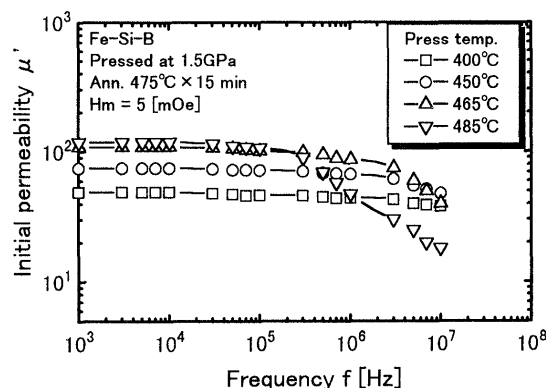


Fig. 11 Frequency dependence of the permeability of hot-pressed amorphous powder cores.

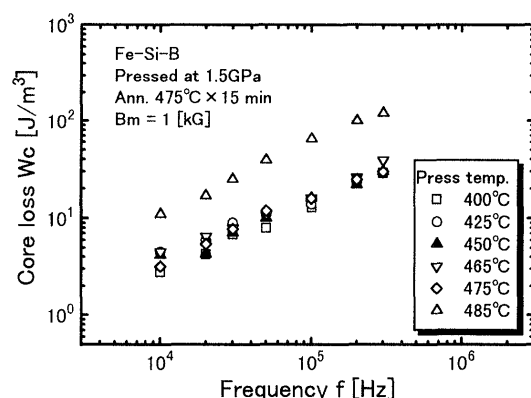


Fig. 12 Core loss per a cycle for $B_m = 1$ kG.

4.3 磁心損失の周波数特性

成形磁心の一周期当たりの磁心損失 W_c の周波数特性を Fig. 12 に示した。磁心損失は、400～475°C の成形温度では温度の上昇によってわずかに増加するが、100 kHz, 1 kG の励磁条件で $13 \sim 15 \text{ J/m}^3$ ($= 1.3 \sim 1.5 \text{ W/cc}$) の値を示している。この値はチョークコア用の商用のギャップ付きアモルファス薄帯磁心およびセンダスト磁心の $10 \sim 12 \text{ J/m}^3$ に比べやや大きい程度である^{10), 11)}。

成形温度 485°C では損失が約 4 倍に急増しているが、X 線回折ではアモルファス状態が確認されているので (Fig. 8), この原因は、Fig. 11 の μ' の周波数特性の劣化と同様、電気抵抗が約 1/3 に低下し、粒子間を流れる渦電流による損失が大幅に増加したためと考えられる。

5. ま と め

本研究で得られた主な成果は、次のとおりである。

(1) SWAP 法を用いて、粒子径約 300 μm までの広い粒度範囲で良好な軟磁性を有する Fe 基アモルファス粉末を、生産性よく作製できることを明らかにした。

(2) ホットプレス法を用いて Fe 基アモルファス粉末成形磁心を作製し、フェライト並みの任意形状の成形加工が可能で、チョークコアやフライバックトランスに要求される 100 前後の透磁率と周波数特性が得られることを明らかにした。

(3) 試作アモルファス粉末磁心の磁心損失は、100 kHz, 1 kG の励磁条件で $13 \sim 15 \text{ J/m}^3$ ($= 1.3 \sim 1.5 \text{ W/cc}$) で、商用のギャップ付きアモルファス薄帯磁心やセンダスト磁心に近い値が得られた。

現在、磁心損失を大幅に下げするために、粉末の平均粒子径の大幅な低減と粒子間絶縁の一様化をさらに検討中である。

謝 辞 本研究の一部は、文部省科研費・基盤 A・試験の補助金で行われた。関係各位に謝意を表する。

文 献

- 1) 大中逸雄:「急冷凝固プロセス」, 西山記念技術講座, p. 223 (日本鉄鋼協会, 東京, 1986).
- 2) R. Hasegawa, R. E. Hathaway, and C. F. Chang: *J. Appl. Phys.*, **57**, 3566 (1985).
- 3) M. Takagi, Y. Kawamura, T. Imura, and H. Saka: *J. Mater. Sci.*, **27**, 956 (1992).
- 4) 小口昌弘, 原川義夫, 清水洋一, 井上明久, 増本 健: 粉末および粉末冶金, **38**, 930 (1991).
- 5) M. Takagi, and Y. Kawamura: *Mater. Sci. Eng.*, **98**, 457 (1988).
- 6) Y. Kawamura, M. Takagi, and M. Akai: *Mater. Sci. Eng.*, **98**, 449 (1988).
- 7) 小島章伸, 堀切秀彦, 河村能人, 牧野彰宏, 井上明久, 増本 健: 日本応用磁気学会誌, **18**, 457 (1994).
- 8) A. Kojima, A. Makino, Y. Kawamura, A. Inoue, and T. Masumoto: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35**, 19 (1996).
- 9) 吉野正規, 青木敏行, 笠井文男, 木挽謙治: Kubota Technical Report, **29**, 7 (1995).
- 10) 八木正昭: 熊本工業大学 EE 研究所報告「高周波用アモルファス粉末成形磁心の開発」, 2(1), 15 (1996).
- 11) 深見寿孝, 八木正昭, 大塚 勇: 平成 8 年電気関係学会九州支部連合大会・講演論文集, p. 502 (1996).

1996 年 10 月 15 日受理, 1997 年 1 月 16 日採録