

# 常温成形法を用いたFe基アモルファス粉末成形磁心の磁気特性

## Magnetic Properties of Fe-Based Amorphous Powder Cores Produced by the Cold-Pressing Method

八木正昭, 中西宏之, 大塚勇\*, 山本裕史\*, 佐武秀機\*, 新谷京宣\*

崇城大学 (旧名 熊本工業大学) エネルギーエレクトロニクス研究所, 熊本市池田 4-22-1 (〒860-0082)

\* (株) クボタ・技術開発本部・開発センター, 尼崎市浜 1-1-1 (〒661-8567)

M. Yagi, H. Nakanishi, I. Otsuka\*, H. Yamamoto\*, H. Satake\* and A. Shintani\*

Energy Electronics Lab., Sojo Univ., 4-22-1 Ikeda, Kumamoto 860-0082

\*Research & Development Center, Kubota Co., 1-1-1 Hama, Amagasaki 661-8567

Amorphous Fe-Cr-Si-B-C powder cores with glass binders were produced by cold-pressing and sintering at relatively high temperatures below crystallization temperature. The density of the core obtained was about 80%. The magnetic properties of toroidal samples 30 mm in diameter were measured. For the core pressed at 2 GPa, room temperature and sintered at 460°C × 20 min in air, the initial permeability in the frequency range up to 1 MHz for  $H_m = 5$  mOe was about 100, and the core loss at 100 kHz for  $B_m = 0.1$  T was 500 kW/m<sup>3</sup>. These values were comparable with those of hot-pressed amorphous powder cores, which had been previously reported. Compared with a commercial Sendust powder core widely used for choking coils and fly-back transformers, the initial permeability was approximately equal and the core loss was 30% lower. Furthermore, the domain patterns of the amorphous core were observed and their relation to the magnetic properties was discussed.

**Key words:** amorphous powder, cold-pressing, sintering, high-frequency core, low core loss, choking coil

### 1. まえがき

アモルファス合金粉体の固化成形に関する研究は多く行われてきたが, 具体的な高周波用磁心を目的とした報告例は数少なく<sup>1)~3)</sup>, それらも実用可能な水準の磁気特性を得るに至っていない。また, 最近, Fe基ガラス金属のロール急冷薄帯の粉碎粉を用いた固化成形磁心の報告もなされているが<sup>4)</sup>, 工業的な量産性などは今後の課題と思われる。

筆者らはこれまで, 工業生産が可能なSWAP法 (Spinning Water Atomization Process) を用いたアモルファス軟磁性粉末の製造と, ホットプレス法を用いたアモルファス粉末成形磁心の作製を報告し, 低軟化点ガラスをバインダーに用いて加圧成形したアモルファス粉末磁心が, チョークコアやフライバックトランスとして広く用いられている商用のセンダスト系粉体磁心などを上回る優れた磁気特性を達成したことを明らかにしてきた<sup>5)~8)</sup>。

しかしながら, ホットプレスによる成形法は量産性に問題がありコストの点でも実用化には大きな難点がある。そこで, 工業的な量産が十分期待できる常温におけるアモルファス粉末の成形法を種々検討してきた。その結果, 室温

における加圧成形と結晶化温度以下の比較的高い温度における焼成を行うことによって, 先に報告したホットプレス法による磁心<sup>7)</sup>に匹敵する高周波磁気特性をもつ常温成形アモルファス粉末磁心が得られたので報告する。

### 2. 磁心の作製方法

Fig. 1に磁心の作製過程を示した。まず, SWAP法<sup>5)</sup>で作製したFe基アモルファス粉末の表面に, 焼成後の磁心内部の粉末粒子間の接着と絶縁を同時に確保するために, バインダーガラスの皮膜をメカノフュージョンと呼ばれている機械的複合化処理法を用いて施した。用いたガラスはリン酸塩系の低軟化点ガラスでアモルファス合金粉末に対して1 wt%である。次いで, これらガラス皮膜を施した合金粉末に常温成形用の有機バインダーと加圧時の粉末粒子の金型内での流動を促進するための潤滑剤を極く少量ずつ添加・混合し, 室温で2 GPaの圧力 (保持時間0) で成形した。最後に, 成形体を大気中で結晶化温度以下の比較的高い温度の460°C, 20 min. で焼成した。焼成の昇温過程の200°C前後で, 有機バインダーと潤滑剤はガス分解し, 有機バインダーに代わってガラス皮膜が軟化してアモルファス粒子間に接着と絶縁の両方の機能を持つガラス層として形

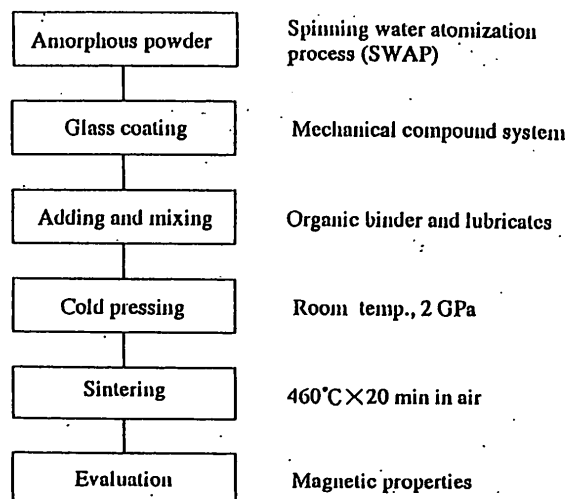


Fig. 1 Flow chart of the experimental procedure.

成され、室温に戻る過程で固化が完了する。

以上述べた常温成形・焼成法は、ホットプレス法に比べ成形体の密度は現在のところ数%低い、短時間に大量に成形できる長所があり、加熱による金型の劣化がなく寿命が長く、工業的に安価に量産が可能な方法である。

アモルファス合金の組成は $(\text{Fe}_{0.97}\text{Cr}_{0.03})_{76}(\text{Si}_{0.5}\text{B}_{0.5})_{22}\text{C}_2$ で、成形には粒径 $150\text{ }\mu\text{m}$ 以下（平均粒径 $50\text{ }\mu\text{m}$ ）の粉末を使用した。磁心は $30\phi\times 20\phi\times 6\text{mm}$ のリング状である。

### 3. 磁心の作製結果

Fig. 2に常温成形のアモルファス粉末成形磁心の外観を示す。すでに報告したホットプレスによる磁心と外見上大きな差異のないものが得られている。

Fig. 3は、磁心内部の研磨断面である。研磨の過程で微細粒の一部が脱落しているが、図中、白っぽい粒形状の部分がアモルファス合金粉末で、黒っぽく見える境界層がガラス

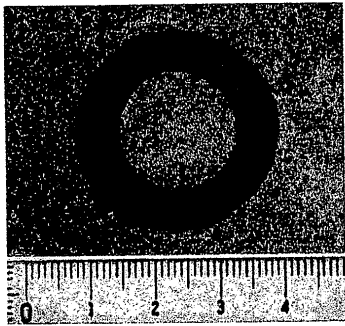


Fig. 2 Outer morphology of a consolidated amorphous powder core formed by a cold-pressing and sintering technique.

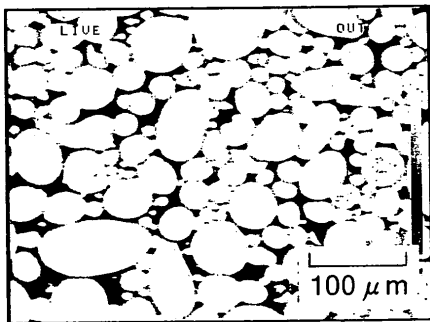


Fig. 3 Cross-sectional view of a consolidated amorphous powder core.

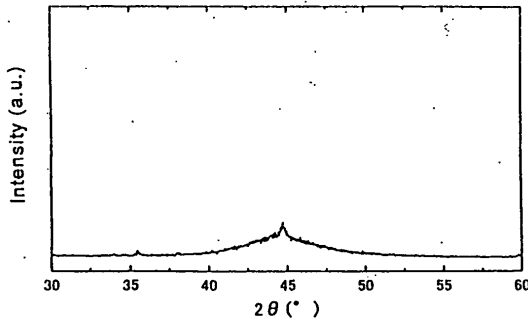


Fig. 4 XRD pattern of an amorphous powder core.

層で、粗粒の間に微細粒が入り込んだ石垣状の構造を形成している。石垣の目地に相当するガラス層が粒子間の接着と粒子間を渡る渦電流を抑制・阻止する絶縁の機能を同時に果たしており、後述する優れた高周波特性を実現している。ガラスを除いたアモルファス合金の相対密度は約80%である。Fig. 4は成形体の焼成後のX線回折結果である。ブロードな回折線の中心に極く小さなピークが見られるが、原料としたSWAP法による粉末は粗粒までアモルファス単相であるので<sup>5)</sup>、焼成の過程で結晶相が一部生成したものと考えられる。しかし、後述のFig. 5のように成形磁心は良好な軟磁性を示しており、全体にはアモルファス相が大体維持されており、この程度のわずかな結晶相の生成は影響がないと考えられる。

### 4. 磁気特性

本研究の常温成形アモルファス粉末磁心の磁気特性について、先に報告した筆者らのホットプレス法のアモルファス磁心<sup>7)</sup>、およびチョークコイルやフライバックトランス磁心として広く用いられている低損失の商用のセンダスト系粉体磁心と比較し、その特徴を以下に述べる。

Fig. 5は常温成形アモルファス粉末磁心とホットプレスのアモルファス粉末磁心および商用のセンダスト系粉体磁心の測定最大磁界 $H_m = 300\text{ Oe}$ の場合のB-H曲線である。常温成形のアモルファス磁心は良好な軟磁性を示しており、保磁力 $H_c$ はホットプレス磁心より30%程度低く、センダスト磁心の約1/3の値である。一方、最大磁束密度 $B_m$ はホットプレス磁心に比べ約6%低い、センダスト磁心に対しては25%以上高い値を示している。ホットプレス磁心の $B_m$ に比べて低いのは、成形体の相対密度が数%低いことが反映しているものと考えられる。また、B-H曲線の立ち上がりが緩やかな点も同様の理由によるものと思われる。

Fig. 6には、上述した三つの磁心の初透磁率の周波数特性（測定最大磁界 $H_m = 5\text{ mOe}$ ）を示した。測定にはインピー

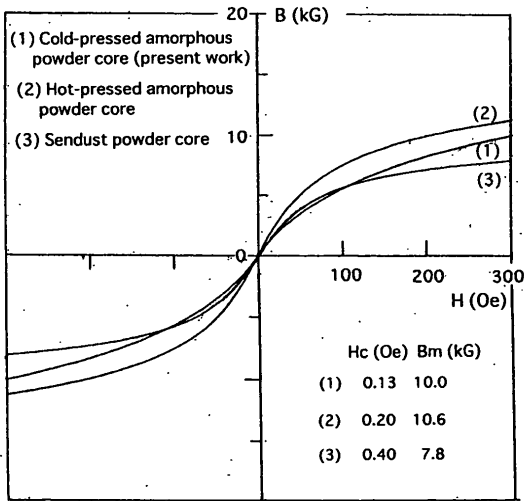


Fig. 5 DC B-H curves of cold- and hot-pressed amorphous powder cores compared with those of a Sendust core.

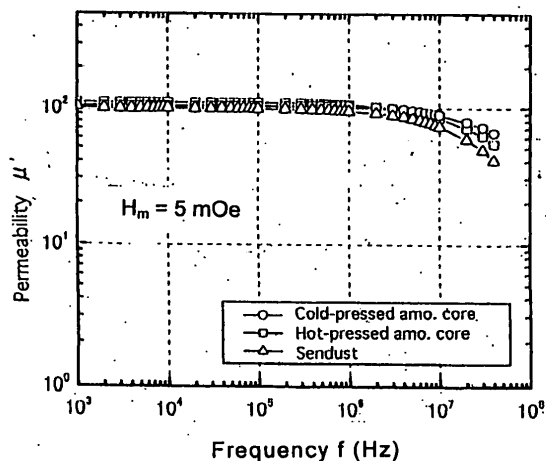


Fig. 6 Frequency dependence of the initial permeability of the amorphous powder cores compared with that of a Sendust core.

ダンスアナライザ(HP 4194A)を用いた。本研究の常温成形のアモルファス粉末磁心の透磁率は、ホットプレスによる磁心とほぼ同等の特性を示しており、MHzまではほぼ一定の約100の値が得られており、MHz帯以上ではセンダスト系磁心に比べやや優れた特性が得られている。

これら100前後の比較的低い透磁率の値は、チョークコイルやフライバックトランスなどエネルギー蓄積型の磁気素子に要求される値であるが、これらの応用でさらに重要な特性は直流重畳特性で、重畳される大きな直流磁界に対して透磁率の低下が小さいことが必要である。

Fig. 7は、直流重畳磁界を12,000 A/mまで変化させた場合のアモルファス粉体磁心と商用のセンダスト系磁心の直流重畳特性の比較である。常温成形アモルファス磁心は、ホットプレスのアモルファス磁心に比べると透磁率の減少は大きい、センダスト磁心に対しては測定した全範囲に亘って大幅に優れた特性を示している。

Fig. 8は、直流重畳磁界の増加に対する透磁率 $\mu'$ の減少を重畳磁界0のときの $\mu'$ の値で正規化し、その比で表したものである。図に見られるように、常温成形アモルファス

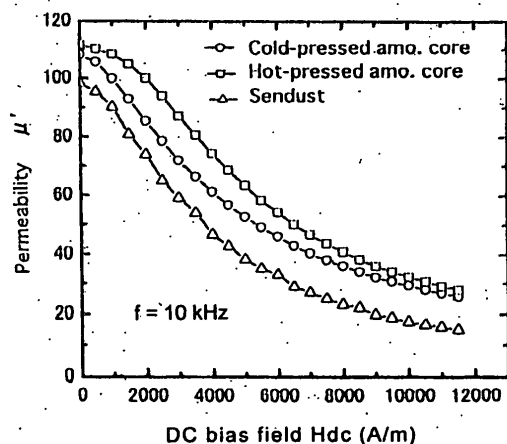


Fig. 7 Permeability  $\mu'$  versus dc bias field  $H_{dc}$ .

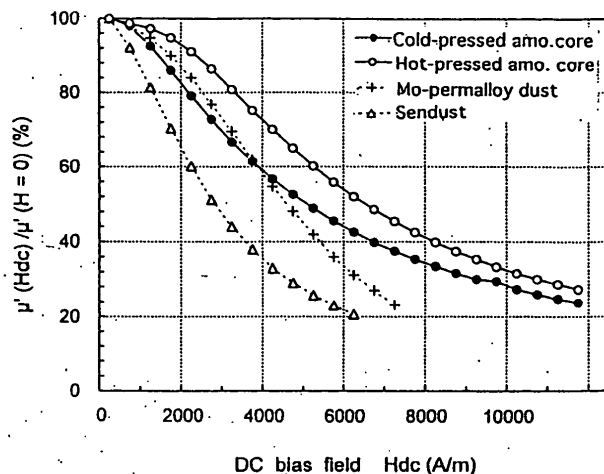


Fig. 8 Ratio of  $\mu' (H_{dc})/\mu' (H=0)$  versus the dc bias field.

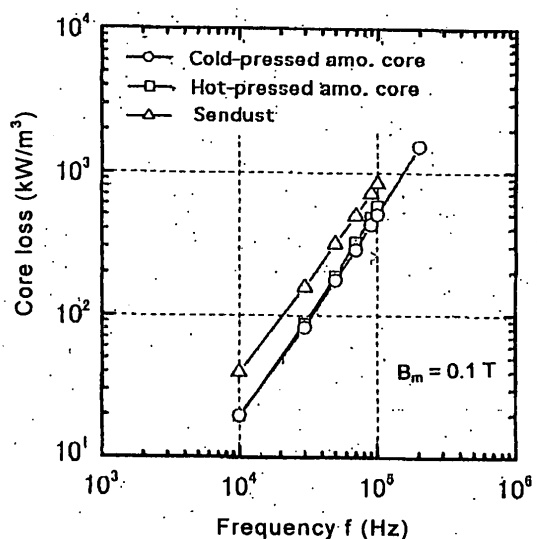


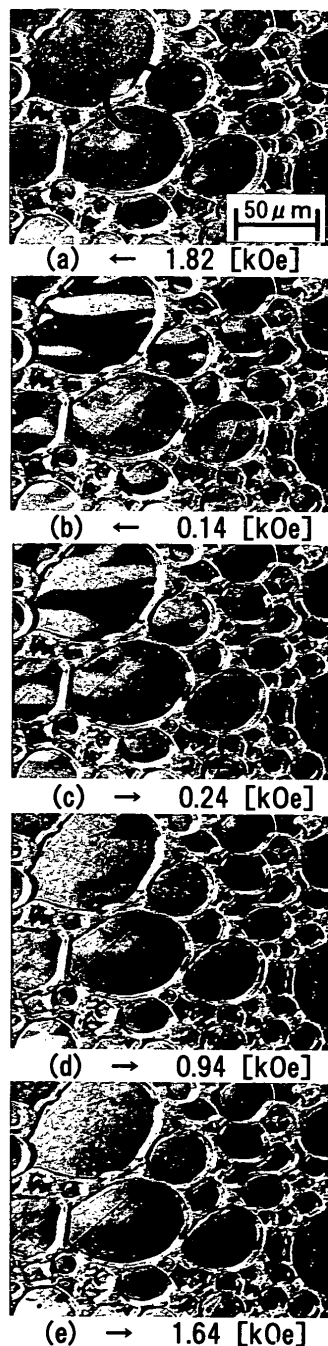
Fig. 9 Core loss as a function of frequency at maximum flux density  $B_m = 0.1$  T.

磁心は、ホットプレスのアモルファス磁心に比べるとまだかなりの差があるが、センダスト磁心に対しては $\mu'$ の減少は大幅に小さく、またモリブデン・パーマロイ粉体磁心と比べると4000 A/m以下の低磁界域では若干劣るものの、6000 A/m以上の高磁界域では逆に優位性を示している。

Fig. 9は、最大磁束密度 $B_m = 0.1$  Tのときの磁心損失の周波数特性である。測定には鉄損計測システム(Iwatsu SY-8617, Ryowa MMS-0375D)を用いた。常温成形アモルファス粉末磁心は、ホットプレスによるアモルファス粉末磁心とほぼ同等の損失特性を示しており、センダスト系商用磁心に対しては測定した全範囲で約30%低く、100 kHzのとき500 kW/m<sup>3</sup>の低損失値を達成している。以上述べたとおり、常温成形アモルファス粉末磁心はチョークコイルやフライバックトランスとして十分実用化できる磁気特性を実現している。

## 5. 磁区模様

磁心内部の磁化反転の様子を調べるために、Kerr効果顕微鏡（縦力一効果）を用いて磁区観察を試みた。試料はリング状磁心の一部を約4 mm角の立方体に切出し、バフ研磨したものである。Fig. 10はプレス方向にほぼ垂直に4.3 kOeの磁界を加え飽和させた後、磁界を減少させ、さらに反転、



**Fig. 10** Domain patterns of a cold-pressed amorphous core.

増加させた場合の観察例である。磁区模様は内部の粒子の形状・寸法・分布などによって異なり複雑であるが、磁化反転の過程で粒子1個あたり数個の磁区の発生・成長・消滅が観察され、単磁区粒子や逆に数の非常に多い微細な多磁区構造は観察されなかった。

磁化反転の特徴の概略を述べると、飽和の状態から磁界を減少させると主に粉末粒子の端部に逆磁区の芽が発生し（例えば(a)の図中○で囲んだ部分）、さらに磁界を減らし反転させると、印加磁界に対して比較的小さな角度の磁壁の移動と磁区の成長が徐々に進み（(b)→(c) 図中、白っぽい部分）、磁界を増やすと磁界に対して大きな角度をもつ磁区のゆっくりした成長が認められ（(d)）、さらに磁界を増やすと磁化の反転は主に粒子の端部を残すのみになる（(e)）。Fig. 5に示したB-H曲線の緩やかな立ち上がりはこのような磁区の緩慢な変化が反映したものと考えられる。また、直線的な180度や90度磁壁が見られないのが特徴で、磁壁はさまざまに曲がっている。これは粒子内の局所的な残留歪みの影響や隣接粒子間の静磁気的な結合が場所によって異なるために生じると考えられ、粒子内では三次元的な環流磁区が形成されていると思われるが、詳しくは不明である。

以上示した磁区構造の変化と前章で示した高周波特性の関係を議論するのはまだ困難である。しかし、成形密度が上がれば粒子間の静磁気的結合が高まり、粒子間を渡る磁区形成と磁壁移動によって磁化曲線の立ち上がりが大きくなり、磁気特性がさらに改善されると思われるので、現在作製条件と磁気特性と磁区の挙動の関係を詳しく検討中である。

## 6. まとめ

本研究で明らかになった主な点は次のとおりである。

- (1) 工業的に量産が期待できる室温における加圧成形と結晶化温度以下での焼成で、アモルファス粉末成形磁心を作製することができた。相対密度は約80%であった。
- (2) これら常温成形アモルファス粉末成形磁心は、ホットプレス法によるアモルファス粉末成形磁心に匹敵する高周波磁気特性を達成することができた。
- (3) 透磁率はMHz帯までほぼ一定の約100の値を示し、磁心損失は100 kHz、0.1 Tの励磁条件で、商用のセンダスト粉体磁心に比べ約30%低い500 kW/m<sup>3</sup>であった。
- (4) Kerr効果顕微鏡を用いて、磁化の反転の観察を行った。

以上のとおり、常温成形によるアモルファス粉末磁心は作製方法、磁気特性共にチョークコイル用磁心として十分実用化できるものと考えられる。

本研究の一部は科研費基盤(C)(課題番号:1265039)の補助を受けて行った。

磁区観察法については九州工業大学・山崎二郎教授に多くの助言を頂いた。また磁区観察に用いたKerr効果顕微鏡の製作には、本学・工作センターおよび高島工業株式会社（東大阪市）の協力・支援を頂いた。記して各位に謝意を表す。

## 文 献

- 1) R. Hasegawa, R. E. Hathaway and C. F. Chang: *J. Appl. Phys.*, **57**, 3566, (1985).
- 2) S. Minakawa and T. Masumoto: *IEEE Trans. Magn.*, **23**, 3245 (1987).
- 3) T. Sato: *J. Jpn. Soc. Powder Powder Metall.* **37**, 532 (1990).
- 4) S. Yoshida, T. Mizushima, T. Hatani and A. Inoue: *IEEE Trans. Magn.*, **36**, 3424 (2000).
- 5) I. Endo, I. Otsuka, R. Okuno, A. Shintani, M. Yoshino and M. Yagi: *IEEE Trans. Magn.*, **35**, 3385 (1999).
- 6) K. Murata, H. Harada, M. Yagi, I. Endo and T. Kida: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **23**, 1505 (1999).
- 7) M. Yagi, I. Endo, I. Otsuka, H. Yamamoto, R. Okuno, H. Koshimoto and A. Shintani: *Journal of M.M.M.*, **215-216**, 284 (2000).
- 8) I. Endo, H. Tatsumi, I. Otsuka, H. Yamamoto, A. Shintani, H. Koshimoto, M. Yagi and K. Murata: *IEEE Trans. Magn.*, **36**, 3421 (2000).

2001 年 10 月 9 日受理, 2002 年 1 月 17 日採録