特集 ソフト及びハード磁性材料の新展開

アモルファス粉末成形磁心とその応用

Compressed amorphous powder cores and their application

八木 正昭 (崇城大学(旧名 熊本工業大学)) Masaaki YAGI

Fe-based amorphous powder cores with glass binders were produced by cold-pressing and sintering methods. The amorphous powders with good magnetic softness and a low level of O_2 content were prepared utilizing our new atomization process; spinning water atomization process (SWAP). The cores exhibited low core losses, relatively low effective permeability and high flux density, which are superior properties when applied to choking coil or flyback transformers operating in high frequency range. The density of the core obtained was about 80-85%. 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 $\mathbb{C} \times 20$ min in air, the initial permeability in the frequency range up to 1 MHz for Hm = 5 mOe was about 100, and the core loss at 100 kHz for Bm = 0.1 T was 500 kW/m³. Compared with a commercial Sendust powder core widely used for the applications mentioned above, the former was approximately equal and the latter was 30% lower. In this paper, the fabrications and magnetic properties of amorphous powders and consolidated cores are described. Furthermore, a study of application to a fly-back converter is introduced.

Key Words: amorphous powder, cold-pressing, sintering, high-frequency core, relatively low permeability, low core loss, choking coil, fly-back converter.

1 まえがき

アモルファス磁性合金は優れた軟磁性をもつ磁性 材料として開発され、薄帯、細線および薄膜は 80 年 代後半には工業的製法が確立され、薄帯は電力用トラ ンス鉄心や高周波用磁心に、細線は主にセンサにそれ ぞれ広く実用化され、また薄膜は磁気ヘッドに一部用 いられている.

他方,粉末粒子状のアモルファス合金には,任意 形状に成形・バルク化することによって薄帯と異なる 応用が期待され,種々のアトマイズ法ならびに成形法 の研究が行われた.しかしながら,工業化可能な粉末 の製造法および成形法は共に得られず,アモルファス 粉末成形磁心も実用化されないまま今日に至っている.

すなわち,従来,高い急冷速度と量産性を合わせ持ち,成形に適した球状粒子が得られるアトマイズ法が 見い出されなかった.また一方,固化成形に関する研 究も盛んに行われたが,その多くは高密度成形に重点 が置かれた粉末冶金的立場からの試作で,具体的な高 周波磁心を目的にした研究は数少なく [1]-[3],それら も実用可能な水準の磁気特性を得ることができなかっ た.さらに,最近では Fe 基金属ガラス薄帯の粉砕粉 を用いた固化成形磁心の試作報告もあるが [4],これ も工業的な量産が課題と思われる.

そこで筆者らは実用可能な高周波用アモルファス 粉末磁心を開発するために,新しいアトマイズ法 SWAP法 (spinning water atomization process; 高速回転水流法) によるアモルファス粉末の製造と熱 間および常温成形によるアモルファス粉末磁心の作製 を検討してきた.その結果,工業的な量産が可能なア モルファス粉末の製造と商用のセンダスト磁心を超え る磁気特性を有するアモルファス粉末成形磁心の作製 に最近成功した [5],[7],[9].

本研究は、筆者と クボタ・開発センター(尼崎市) と共同して行ったもので、本論文では、アモルファス



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

粉末ならびに成形磁心の作製法と磁気特性 [5],[7]-[9] および DC-DC コンバータに適用した場合の試験結果 [6],[8] について取りまとめて述べる.

2 SWAP 法によるアモルファス粉末 [5]

2.1 作製方法

Fig. 1 に本研究で用いた新しいアトマイズ法— SWAP法 (Spinning Water Atomization Process; 高速回転水流法)の装置を示した.本装置は真空熔解 炉,ガスアトマイズジェット,高速回転水流槽で構成さ れている.熔融合金は、るつぼの下部のノズルを通っ て、高圧のアルゴンガスで細かく分断され、高速回転 水流中に射出され急冷凝固される.

本方法は、従来の水アトマイズ法と異なり、熔滴が 水中で凝固する時に粒子周りに発生する水蒸気膜を高 速回転水流の遠心力によって強制的に急速剥離し、蒸 気膜による熱伝導の低下を抑制し、10⁵K/sec以上の高 い急冷速度を達成している点が大きな特徴である。回 転水流は高圧ポンプで水槽の上部から連続的に供給し、 急冷凝固粉末は水と共に水流槽の下部から回収した後、 水と分離される. 熔融合金と水流を連続的に供給すれ ば、原理的に粉末を連続大量生産することができる. ま た、回転水流槽の内径は約 110 mm で、アトマイズ装 置としては極めて小形である点も本方法の特徴である.

主な作製条件は次のとおりである。熔融合金供給のノ ズル径;2 mm. 分断ガス圧;1.5~7 MPa, 回転水 流の周速;50~70 m/sec, 水膜厚;20 mm,合金組成; $Fe_{73}Si_{15}B_{10}C_2$, $(Fe_{0.97}Cr_{0.03})_{76}(Si_{0.5}B_{0.5})_{22}C_2$.



Fig. 2: Shape of Fe-Si-B amorphous powder.



Fig. 3: Typical particle distribution.

2.2 アモルファス粉末の作製結果

Fig. 2 は作製した急冷凝固粉末の走査型電子顕微 鏡 (SEM) による観察例である.粉末粒子形状は粒径 が小さい場合は真球に近い球状を示し,粒径が大きく なると回転水流の遠心力のためにやや扁平な球状を呈 している.このような球形の粉体は一般に良好な成形 性を有しており,SWAP 法で得られる粉末は成形磁 心の原料粉として適していると言える.

Fig. 3 には累積重量比で表した粒度分布を示した. 平均粒径は熔湯の分断ガス圧の増加に従って低下し, ここでは, 7 MPa で平均粒径が約 30 μ m になって いる.

Fig. 4 には急冷凝固粉末の粒径ごとに分級した粒 子の X 線回折結果を示した. 粒径 297 μ m の粗粒 に至るまでアモルファス単相を示すブロードなピーク が認められる. Fig. 3 の粒度分布とこれら X 線回折 結果から,本 SWAP 法では作製条件を選べば微細粒 から約 300 μ m の粗粒まで 100 %アモルファス合金 粉末が得られることが分かる. これは本方法が極めて 高い急冷速度を有していることを示すもので,アルミ



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



Fig. 5: Coercive force Hc and annealing temperature Ta of the powder.

合金の急冷凝固粉末を用いた急冷速度の算定法による と、SWAP 法の急冷速度はロール超急冷法と同等の 10⁵ K/sec 以上になっている.

2.3 アモルファス粉末の磁気特性

Fig. 5 には Fe-Cr-Si-B-C 系アモルファス粉末の 保磁力 Hc と熱処理温度 Ta の関係を示した. 測定に は振動試料型磁力計 (VSM)を用いた. Hc の最小値 は Ta=793 K で 0.28 Oe であった.

Table 1 には Fe-Si-B-C と Fe-Cr-Si-B-C アモル ファス粉末の磁化特性と酸素含有量を示した.水を冷 却媒体としているにもかかわらず,軟磁性を損なう酸 素含有量が 100-200 ppm の極めて低いレベルの値を 示している点が特徴である. 微細粉末では酸素含有量 が高いが,保磁力が小さくなる傾向がみられる. これ は粒径が小さくなると相対的な表面積が大きくなり, 冷却速度が高くなるためと考えられる. その結果,こ Table 1: Magnetic properties and O_2 content of the amorphous powders.

	Particle Size (μ m)				
	150-212*	75-106*	≦45*	≦150**	
H _c (Oe)	0.46	0.40	0.35	0.28	
Ms (emu/g)	166	165	162	150	
O ₂ (ppm)	106	138	223	169	

*: $Fe_{73}Si_{10}B_{15}C_2(at\%)$, * *: $(Fe_{0.97}Cr_{0.03})_{76}(Si_{0.5}B_{0.5})_{22}C_2$

れらアモルファス粉末は広い粒度範囲で良好な軟磁性 を実現している.また、大気中で1カ年間長期に保存 した粉末も作製当初と同様の軟磁性と酸素含有量を維 持していることを実験で確認しており、本研究で作製 したアモルファス粉末の特性は極めて安定であると言 える.

3 アモルファス粉末成形磁心 [9]

高周波用のアモルファス粉末成形磁心を作製する ためには,(1)優れた軟磁性を保持するための結晶化 温度以下の加工・処理,(2)渦電流損を抑制・低減す るための成形体内部の粉末粒子間の絶縁層の形成,(3) 一定以上の透磁率を得るために必要な高い成形密度の 三つの条件を満たす作製方法が必要である.

そこで、筆者らは低軟化点ガラスをバインダーとし て、最初結晶化温度以下の比較的高温でのホットプレ ス法による加圧成形法を検討し、次いで量産性の高い 常温成形法によるアモルファス粉末磁心の作製を行っ た.その結果、これらの磁心は共に商用のセンダスト 粉体成形磁心を超える高周波特性を達成することがで きた.ここでは、以下、工業的な量産が十分期待でき る常温成形によるアモルファス粉末成形磁心を中心に 述べる.

3.1 アモルファス粉末磁心の作製法

Fig. 6 に常温成形法による磁心の作製過程を示した.まず,SWAP 法で作製したアモルファス粉末の表面にバインダーガラスの皮膜を機械的複合化処理法で施す.これは焼成後の磁心内部の粉末粒子間の一様な接着と絶縁を確保するためである.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粉末に対して約1 wt%である.次いで,極く少量の有機バインダーと潤滑剤を添加・混合し,室温で2 GPa で加

圧成形した. 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 ℃, 20 min. で焼成した. 焼成の昇温過程で, 有機バインダーと潤滑剤はガス分 解し, これら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 層を形成し, 室温に戻る過程で磁心の固化が完了する. ここでは. 粒径 150 µ m 以下(平均粒径 50 µ m) の粉末を使用した.

以上述べた常温成形・焼成法は、ホットプレス法 に比べ成形密度は数%低いが、短時間に大量に成形で きる長所があり、金型の寿命が長く、工業的により安 価に量産が可能な方法である.



Fig. 6: Flow chart of the experimental procedure.



E-shape cores

Fig. 7: Outer morphology of consolidated amorphous cores.

3.2 磁心の作製結果

Fig. 7 にアモルファス粉末成形磁心の外観を示した. 粉末成形によって,フェライトやセンダスト粉体磁心と同様,リング状以外の任意形状のアモルファス磁心の作製も可能である.

Fig. 8 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 る境界層がガラス層で、粗粒の間に微細粒が入り込ん だ石垣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す る絶縁の機能を同時に果たしている。Fig. 9 は四端子 法で測定した成形体の電気抵抗率である。アモルファ ス粉末磁心の抵抗率は 1 kHz 1MHz の周波数範囲で、 センダストに比べやや劣るが、約 0.3 (Ω・m)の高い 値を有しており、1 MHz 以上ではフェライトと同等 であり、後述する優れた高周波特性の実現に寄与して 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. 10 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,これは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,後述するように成形磁心は良 好な軟磁性を示しており (Fig. 10),この程度のわず かな結晶相の生成は軟磁性に影響がないと考えられる.

3.3 アモルファス粉末成形磁心の磁気特性

これまでの研究で、筆者らの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磁心に最も 適した磁気特性を有していることが分かっているので、 ここでは、これら応用に広く用いられている低損失の



Fig. 8: Cross-sectional view of a consolidated amorphous core.



Fig. 9: Electrical resistivity of the cores.



Fig. 10: XRD patterns of an amorphous powder core.

商用のセンダスト系粉体磁心と比較し、アモルファス 粉末磁心の特徴を述べる.

Fig. 11 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 Hm = 300 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 Hc 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 Bm はホットプレ ス磁心に比べ約6%低いが,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 Bm 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. 12 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 Hm = 5 mOe)を示した. 測定にはインピーダンスアナライザ (HP 4194A)を 用いた.アモルファス粉末磁心の透磁率は、常温成形, 熱間成形共に、MHz までほぽ一定の約 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



Fig. 11: DC B-H curves cold- and hot-pressed amorphous cores compared with those of a Sendust core.



Fig. 12: Frequency dependence of the initial permeability the amorphous powder cores compared with that of a Sendust core.

日本AEM学会誌 Vol. 10, No. 3 (2002)



Fig. 13: Permeability μ 'versus DC bias field Hdc.

べやや優れた特性が得られている.

100 前後の比較的低い透磁率は、チョークコイル やフライバックトランスなどの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. 13 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が、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. 14 は, 直流重畳磁界の増加に対する透磁率 μ'の減少を重畳磁界0のときのμ'の値で正規化し 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μ'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 までの低 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. 15 は,最大磁束密度 Bm= 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/m³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.

4 フライバックコンバータへの応用 [8]

前節で述べたように、筆者ら新開発のアモルファ ス粉末成形磁心は優れた直流重畳特性をもち、チョー クコアやフライバックトランスコアに適した磁気特性 を有していることが分かったので、アモルファス磁心 と商用磁心の特性比較を行うために実回路試験を行っ た. 実験に用いた回路は Fig. 16 に示したフライバッ ク形の DC-DC コンバータである.動作周波数は 100 kHz とした. 試料はアモルファス粉末成形磁心, 商用 のギャップ付きフェライトおよびセンダスト系磁心で、 Table 1 に示したように、ほぼ同様の透磁率、巻線数、 インダクタンスをもつ大体同寸法のトロイダル磁心で ある.フェライトの場合は、アモルファス粉末磁心 とほぼ同等の透磁率になるように、商用のリング状の Mn-Zn フェライト磁心の一部を切断し、エアーギャッ プの加工を施した. アモルファス粉末磁心はホットプ レス法で作製したものである.

Fig. 17 は試料磁心の 100 kHz における透磁率の 直流重畳特性である. 図に示したように, アモルファ ス粉末成形磁心はセンダストやフェライトに比べ優れ た特性を示している. アモルファスとセンダストの透 磁率は直流重畳磁界 Hdc の増加に従って同様の減少 傾向をしているが, センダストの値は, 測定した全範 囲で 25~30 %低い. 一方, フェライトの透磁率は



Fig. 14: Ratio of μ (Hdc) $\angle \mu$ (Hdc) versus DC bias field.



Fig. 15: Core loss as a function of frequency at maximum flux density Bm = 0.1 T.



Fig. 16: Experimental circuit of fly-back converter.

	Amorphous Powder Core	Gapped Ferrite Core	Sendust Powder Core
Core Size (mm)	ф30.3×ф19.8 ×10.0	ф31.2×ф20.5 ×10.1	¢27.4×¢14.3 ×7.3
Bs (T)	1.2	0.5	0.8
Magnetic Path (mm)	78.6	81.2	65.5
Cross Section (mm ²)	52.6	54.3	48.0
Air Gap Length (mm)	-	1.5	-
Permeability*	125	124	102
Number of Windings, N1/N2	50/50	50/50	50/50
Inductance* (µH)	267	264	268

Table 2: Specification of cores.

* measured at 100 kHz.



Fig. 17: Permeability μ 'vs. DC bias field Hdc of the cores.



Fig. 18: Conversion efficiency versus the output power.

Hdc=0 ではアモルファスとほぼ等しい値を示してい るが,Hdc=2500 A/m以上では急激に減少している. この急激な減少はフェライトの場合飽和磁束密度 Bs が大幅に低いためである.

Fig. 18 には動作周波数 100 kHz のときのコン バータの変換効率を示した.アモルファス磁心を適用 した場合,フェライトやセンダストを使用した場合に 比べ,より高い変換効率が得られている.この効率の 優位性は上述した直流重畳特性 (Fig. 17) および磁心 損失 (Fig. 15) などのアモルファス磁心の磁気特性の 優位性が反映したものと考えられる.さらに,140 W 以上の高出力側でフェライトを用いたコンバータの効 率の急激な低下は直流重畳特性の急激な低下と密接に 関係していると考えられる.

以上の結果,アモルファス粉末成形磁心は高周波・ 高出力動作のフライバック形の DC-DC コンバータに おいて高い変換効率が得られることが分かった.

5 むすび

本論文で述べた SWAP 法によるアモルファス粉 末と常温成形法による成形磁心は共に工業的な量産が 可能な方法であり,得られた成形磁心はチョークコイ ルやフライバックトランス用として広く用いられてい る商用のセンダスト系磁心を超える優れた磁気特性を 有している.

アモルファス粉末とその成形体の実用化は,アモ ルファス・ナノ分野の長年の研究課題であった.現在, 筆者らの成果を基に,いくつかの磁心メーカーによる 具体的なアモルファス粉末磁心の試作研究も始められ ているようである.粉末成形によって薄帯では従来困 難であった任意形状の小形・薄形の磁心の製造も可能 であり、早期に実用段階に入ることを期待している.

参考文献

- R. Hasegawa, R. E. Hathaway and C. F. Chang, J. Appl. Phys., 57, (1985), p. 3566.
- [2] S. Minakawa and T. Masumoto, *IEEE Trans.* Magn., 23, (1987), p. 3245.
- [3] T.Sato, J. Jpn. Soc. Powder Powder Metall., 37, (1990), p. 532.
- [4] S. Yoshida, T. Mizushima, T. Hatani and A. Inoue, *IEEE Trans. Magn.*, 36, (2000), p. 3424.
- [5] I. Endo, I. Otsuka, R. Okuno, A. Shintani, M. Yoshino and M. Yagi, *IEEE Trans. Magn.*, 35, (1999), p. 3385.
- [6] K.Murata, H.Harada, M.Yagi, I.Endo and T.Kida, J. Magn. Soc. Jpn., 23, (1999), p. 1505.
- [7] M. Yagi, I. Endo, I. Otsuka, H. Yamamoto, R. Okuno, H. Koshimoto and A. Shintani, Journal of M.M.M., 284, (2000), pp. 215-216.
- [8] I. Endo, H. Tatsumi, I. Otsuka, H. Yamamoto, A. Shintani, H. Koshimoto, M. Yagi and K. Murata, *IEEE Trans. Magn.*, 36, (2000), p. 3421.
- [9] M. Yagi, H. Nakanishi, I. Otsuka, H. Yamamoto, H. Satake and A. Shintani, J. Magn. Soc. Jpn., 26, (2002), p. 513.

(18)