

ガスアトマイズ法による高 B_s ナノ結晶粉末の開発

High- B_s Nanocrystalline Powder Fabricated by Atomization

太田 元基*
Motoki Ohta

千綿 伸彦**
Nobuhiko Chiwata

* 日立金属株式会社
特殊鋼カンパニー冶金研究所
Metallurgical Research Laboratory,
Specialty Steel Company,
Hitachi Metals, Ltd.

** 日立金属株式会社
特殊鋼カンパニー
Specialty Steel Company,
Hitachi Metals, Ltd.

本報では、ガスアトマイズ法および2次冷却で高速水流を用いて製造した高飽和磁束密度 (B_s) ナノ結晶合金粉末の製造状態および熱処理後の組織と軟磁気特性について述べる。製造した粒径 $20 \mu\text{m}$ 以下の Fe-Cu-Cr-Si-B-Sn 合金粉末では、熱処理後に平均結晶粒径が 20 nm 以下の組織が得られ、 1.5 T 以上の B_s が見出された。この粉末は Fe 基アモルファス合金対比で初透磁率 μ_i が同等の 17、ロスが 90% となる。また、ロスが $5,000 \text{ kW/m}^3$ 以下の低ロス仕様のコアでも、 μ_i が 14 となり、高レベルで高 B_s と低ロスが両立される。

The present study examined the microstructure and soft magnetic properties of high magnetic flux density (B_s) nanocrystalline alloy powder fabricated by gas atomization. Powder particles of Fe-Cu-Cr-Si-B-Sn smaller than $20 \mu\text{m}$ exhibited a fine nanostructure with an average grain size of less than 20 nm and a B_s higher than 1.5 T . The initial permeability μ_i for this powder was 17, which is comparable to that for Fe-based amorphous alloy powder, and the core loss was 90% of that for the amorphous powder. Moreover, the core loss could be reduced while maintaining a high B_s by trading off the high μ_i .

● Key Word : Atomization, High B_s nanocrystalline powder, Low loss
● Production Code : なし

● R&D Stage : Prototype

1. 緒言

主に電力変換に用いられるパワー半導体の材料として、2020年頃までに SiC, GaN 等が本格的に実用化される見込みであり、パワーエレクトロニクス分野は大きな変革期を迎えつつある。こうした新材料を用いたパワー半導体は熱に強く、Si などの従来材以上に高周波数・大電流を許容できるようになる。これを背景にスマートフォン等の携帯型端末における高パワー密度化の競争はますます激化しており、各社では差別化を図るために小型化、長時間駆動化などの基本性能に関する追求がなされている^{1), 2)}。携帯型端末はサイズも駆動時間も電源に依存しているため、電池を含めた電源デバイスには常に進化が期待されている。さらに今後成長する電気自動車 (Electric Vehicle) の分野では電源回路の大出力化と省スペース化すなわち高パワー密度化が要求されている。

これら電源回路の中で、電圧変換に用いられるインダクターは高効率化、小型化に直接的に寄与するデバイスであり、高性能化が求められている。数百 kHz 以上の

AC/DC コンバーター向けインダクターコアの従来材であるソフトフェライトは、圧倒的なロスの低さから選ばれてきた材料である。しかしながら、前述のパワー半導体の台頭により、デバイス設計上、ある程度の発熱が許容されるようになり、材料に求められる資質が低ロス一辺倒ではなくなりつつある。具体的には、小型化への寄与率が高い高飽和磁束密度 (B_s) 化が求められるようになり、材料としての B_s が高いメタルパウダー (MP: Metal Powder) への注目度が増している。一層のインダクターの小型化のために、小型化への寄与率が高いスイッチング周波数 f の高周波化も進んでおり、数百 kHz ~ 数 MHz で使用する機会が増えてきている。 f および印加できる交流磁束密度の波高値 B_m はコアロス、すなわち発熱量との兼ね合いで決定される。コアロス P は、ヒステリシスロス P_h 、古典渦電流ロス P_e の和から成り、それぞれ f および B_m に対して、

$$P = P_h + P_e \quad \text{Eq. 1 (a)}$$

$$P_h = aB_m f \quad (\text{W/m}^3) \quad \text{Eq. 1 (b)}$$

$$P_e = bB_m^2 f^{1.5} \quad (\text{W/m}^3) \quad \text{Eq. 1 (c)}$$

の関係性を有する。 a, b は係数である。特に高周波化に伴い大きな割合を占めるのが P_e であり、係数 b は次式で表される。

$$b = \frac{\pi^{1.5}}{2\sqrt{\mu\rho}} d \quad \text{Eq. 2}$$

ここで、 μ は物質の透磁率（組成とミクロ構造に由来した透磁率で、エアーギャップを含むコアの透磁率とは異なる）、 ρ は電気抵抗率、 d は粒径である。MP の特徴として、フェライトと比べて、透磁率 μ が高く、 ρ が低い特徴を有し、表皮効果により表面近傍しか磁化過程に寄与せず、渦電流ロス P_e は $f^{1.5}$ および $(\mu\rho)^{-0.5}$ 、 d の関数となる²⁾。他方、フェライトでは P_e は f^2 および ρ^{-1} 、 d^2 の関数になる。MP では、 ρ だけでなく材料自体の μ が高いほど渦電流ロスが抑制される傾向にある。他方、MP を用いたコアの初透磁率 μ_i は、材料自体の μ だけでは決まらず、粉末間のギャップ、すなわち粉末の充填度によるところが大きく、粒径 d がある程度大きいほうが、 μ_i は増加しやすいことが知られている。したがって、コアロスを下げるには小粒径が良く、 μ_i を高めるには、大粒径が有利となり、粉末の粒径としては相反する要求となるが、例えば小粒径であっても、充填率を上げやすい球形に近い形状であれば低コアロスと高 μ_i の両立が図られる可能性がある。

MP の現行材料では、ガスアトマイズと旋回流による強制冷却を組み合わせた粉末製造方法により製造された Fe 基アモルファス合金粉末が実用化されており、著者らの開発のベンチマークとなっている³⁾。表 1 に本研究の開発目標、開発材、Fe 基アモルファス合金粉末、およびナノ結晶軟磁性材料ファインメット[®] タイプ合金粉末の諸データを示す。Fe 基アモルファス合金粉末の $f = 2$ MHz および $B_m = 30$ mT のコアロス $P_{0.3/2M}$ が約 10,000

表 1 目標と開発粉, Fe 基アモルファス粉, ファインメットタイプ粉で作製したコアの飽和磁束密度 B_s , コアの初透磁率 μ_i , および 30 mT, 2 MHz のコアロス

Table 1 Saturation magnetic flux density B_s , permeability of core μ_i , and core loss at 30 mT at 2 MHz, P , for developed alloy core, Fe-based amorphous alloy core, and Finemet type alloy core

	Magnetic flux B_s (T)	Permeability μ_i	Core loss (30 mT, 2 MHz) P (kW/m ³)
Target	≥ 1.5	≥ 15	$\leq 6,000$
Developed powder	Core A	1.55	17
	Core B	1.55	15.5
	Core C	1.55	14
Fe-based amorphous	1.3	16	10,000
Finemet type	1.1	16	4,200

kW/m³, μ_i が 16 程度であり、 $B_s = 1.3$ T を有する。これまでの著者らのアトマイズ粉の研究では、主に低コアロス達成の目的でファインメットタイプ合金粉末を開発した。この粉末作製したコアの $P_{0.3/2M}$ は約 5,000 kW/m³ 以下と良好であるが、 B_s が 1.1 T と Fe 基アモルファス合金粉末よりも劣る。

そこで、本研究では次世代のディファクトスタンダードとなりうる軟磁性材料の提供を目的とするため、リボン用に開発してきた高 B_s ナノ結晶合金組成と新規アトマイズ技術を組み合わせ^{4), 5)}, $B_s \geq 1.5$ T となるような仕様を軸に、高 μ_i と低コアロスの実現を可能とする MP コア用粉末の製造を開発目標とした。

2. 実験方法

2.1 粉末製造

今回検討した主な成分系は、Fe-Cu-Cr-Si-B 系および Fe-Cu-Cr-Si-B-Sn 系である。

粉末製造には、ガスアトマイズ装置を用いた。通常の高周波アトマイズ法と同様に、溶湯を液滴状に滴下し強いガス流を液滴に吹き付けて粉砕する。その後、粉砕された高温の液滴へ冷却水を噴霧し急冷する。通常の高周波アトマイズよりも高い速度のガス流を吹き付ける粉砕のため、粉末粒径が小さく平均粒径 30 μ m 以下までになる。

さらに冷却速度の向上を狙って、粉砕された高温の粉末を直接水流に投入する冷却機構を組み合わせることに成功した。

2.2 ミクロ組織観察および磁気特性評価

TEM (Transmission Electron Microscope: 透過型電子顕微鏡) の観察用の試料は、20 μ m 程度の粉末を選出し、FIB (Focused Ion Beam: 集束イオンビーム) 加工を施し、準備された。JEOL 社の JEM 2800 にて加速電圧 200 kV で TEM 観察を行った。

磁気特性は、(株)リガク社の VSM (Vibrating Sample Magnetometer: 振動試料型磁力計) を用いて測定された。約 2.5 g の試料を秤量し、専用カプセルにつめて、飽和磁化 M_s ($M_s = B_s - \mu_0 H$ の関係) は 1 T (10,000 Oe) まで磁場を印加したフルループより求めた。また、保磁力 H_c の測定には、VSM の時係数 M_{cal} を測定後に測定スイープ速度を変えて複数回測定し、各スイープ速度から得られる平均値より H_c を決定した。交流磁気測定には分級後の粉末重量 100 に対してシリコン系樹脂 5 を加えて混練し、成型圧約 10 ~ 40 MPa で成型し、 ϕ 13.5 mm \times ϕ 7.7 mm \times 2.5 mm のリング状に固めたメタルコンポ

ジットコア（以下コア）を得た。同様の作製方法で前述の Fe 基アモルファス合金粉末およびファインメットタイプ合金粉末からコアを作製した。各コアに 1 次/2 次巻線とともに 18 巻のコイルを巻いて、岩崎通信機（株）社の B-H ANALYZER SY-8218 を用いて各周波数のコアロス P を求めた。直流重畳特性は、同様に作製したリングコアに、30 巻の巻き線を施し、Agilent Technologies 社の Precision LCR Meter 4284A を用いて、交流磁気測定と 1 V、100 kHz の励磁により測定した。

3. 結果と考察

3.1 Fe-Cu-Cr-Si-B 系の初期検討

粉末製造の初期のトライアルでは、まずリボン製造で実績のある高 B_s ナノ結晶合金組成 Fe-Cu-Si-B を候補とした^{4), 5)}。しかし、この組成は表面酸化しやすく水で冷却するガスアトマイズ法では表面酸化によりその後の特性評価に支障をきたすため、防錆効果を期待して最小限の Cr を Fe と置換した Fe-Cu-Cr-Si-B 組成合金粉末を製造した。得られたアトマイズ粉の SEM (Scanning Electron Microscope: 走査型電子顕微鏡) による外観写真を図 1 に示す。このアトマイズ法で得られた粉末は全体的に粒径が小さく、 d_{50} が 10 ~ 20 μm 程度になる。また、真円に近い球状粉の割合が高く、流動性が高いこと、サテライト（大径粉末に付着する小径粉末）が少なく、粉どろしの凝集も少ないなどの特徴を有している。得られた粉末を 25 μm のふるいでオーバーカットした小粒径の粉でコアを作製し、軟磁気特性を調査した。

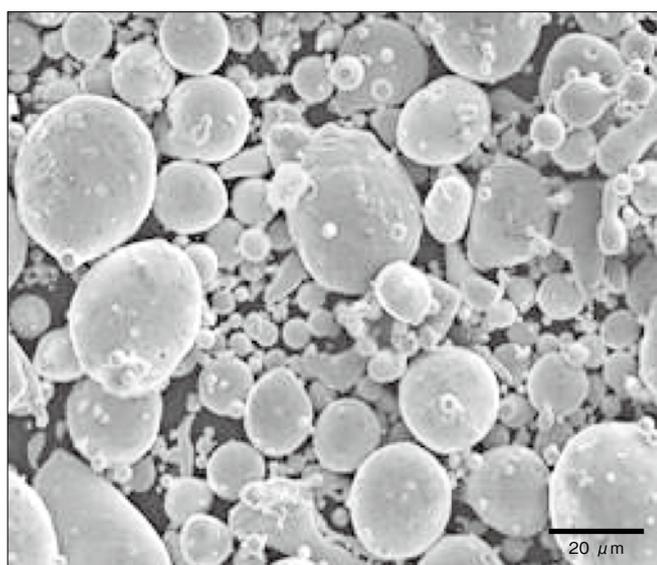


図 1 ガスアトマイズ法で作製した Fe-Cu-Cr-Si-B 合金粉末の SEM 外観写真

Fig.1 SEM image of Fe-Cu-Cr-Si-B alloy powder fabricated by developed gas atomization method

B_s は 1.55 T と目標値を達成でき、 $f = 2$ MHz および $B_m = 30$ mT のコアロス $P_{0.3/2M}$ は約 9,100 kW/m³、 μ_i が 12 程度であった。最重要課題である高 B_s 化の達成は実現されたが、コアロスおよび μ_i に改善の余地が残る。そこでロスの要因を調べたところ、ヒステリシスロスが、コアロス全体の 60 ~ 70% を占めていることが確認された。ヒステリシスロスの要因は、ナノ結晶粒の組織の粗大化と結晶磁気異方性が高い Fe₂B の析出に由来していると考えられる。実際に X 線では、Fe₂B が観測されている。アトマイズ粉では、粉末粒径の違いにより、それぞれの粉末の冷却速度が異なり、As-Q（熱処理なし）の粉の組織に粉末径に依存した幅広いバリエーションが存在することが予想される。Fe₂B は冷却が不足した場合に析出する組織であり、冷却速度が相対的に低い粉末径の大きい粉で現れる。他方、結晶粒の粗大化は、冷却速度が高すぎる場合に現れると考えられる。相対的に冷却速度の高い小粉末径のコアでは、冷却速度が高すぎて、初期微結晶が不足し、平均結晶粒径が大きくなる。小粉末径の粉で最適な初期微結晶の数密度が得られる冷却条件で製造すれば、大きい粒径の粉の冷却速度が不足して、軟磁気特性を大きく悪化させる Fe₂B 化合物が析出する。大きな粉末径分布を有する合金において、一様な冷却速度を得ることは極めて困難であるため、相対的に冷却速度を高めて、Fe₂B が析出し始める粉末径の上限を増加させることが歩留まり向上に寄与すると考えられる。

ガスアトマイズ法で粉碎された高温の粉末を直接水流へ投入することで、さらに強制的な冷却が可能である。そこで、2 次冷却過程の冷却速度を増加させたアトマイズ装置で高 B_s ナノ結晶合金組成の粉末製造を行うことにした。しかしながら、相対的に冷却速度が高い小粒径の粉末では、過剰な冷却により、ナノ結晶相の出現に不可欠な初期微結晶を十分な数密度で得られなくなる。これに対する施策にはリボン研究を通じて得られた知見を活用することができた⁶⁾。

3.2 改良組成 Fe-Cu-Cr-Si-B-Sn 系の検討

3.2.1 粉末製造およびミクロ構造観察

熱処理時に Cu クラスターリングが進行しやすい 350°C 以上の温度域に試料が達する前に、Cu の移動をピン止めし、Cu クラスターリングの進行を遅れさせる効果がある元素の添加を検討した。添加元素の性質として、低温で比較的容易に移動でき、Cu と安定な化合物を形成することで Cu 原子の凝集を抑制する効果が期待される Sn に着目し、組成的観点から組織制御を行う方法を検討した⁷⁾。炉の冷却能力を考慮に入れ、第 2 結晶化温度、すなわち

Fe_2B 析出温度 T_{x2} が $510^\circ C$ 程度となる Fe-Cu-Cr-Si-B-Sn 合金組成の製造を行った。

図 2 (a) および (b) は改良したアトマイズ装置で製造した粉末径が $6 \mu m$ 程度の Fe-Cu-Cr-Si-B-Sn 合金粉末の作製状態 (熱処理前) と、窒素雰囲気中で $400^\circ C$ -30 分間熱処理した後の断面 TEM 写真である。図 2 (a) に見られるように、作製状態の粉では電子回折パターンハローで示されるように、主にアモルファス相になっている。わずかに、数 nm の初期微結晶が析出している。他方、図 2 (b) の熱処理後の組織は、 $10 \sim 20 \text{ nm}$ の結晶粒が高い数密度で析出している。熱処理前の初期微結晶の数密度、熱処理後のナノ結晶の数密度は高く、熱処理過程で、上述したような、Cu クラスターが均一に分散していることが推測される。この組織は、ファインメットや高 B_s ナノ結晶合金リボンで得られる組織と類似しており^{4)~6)},

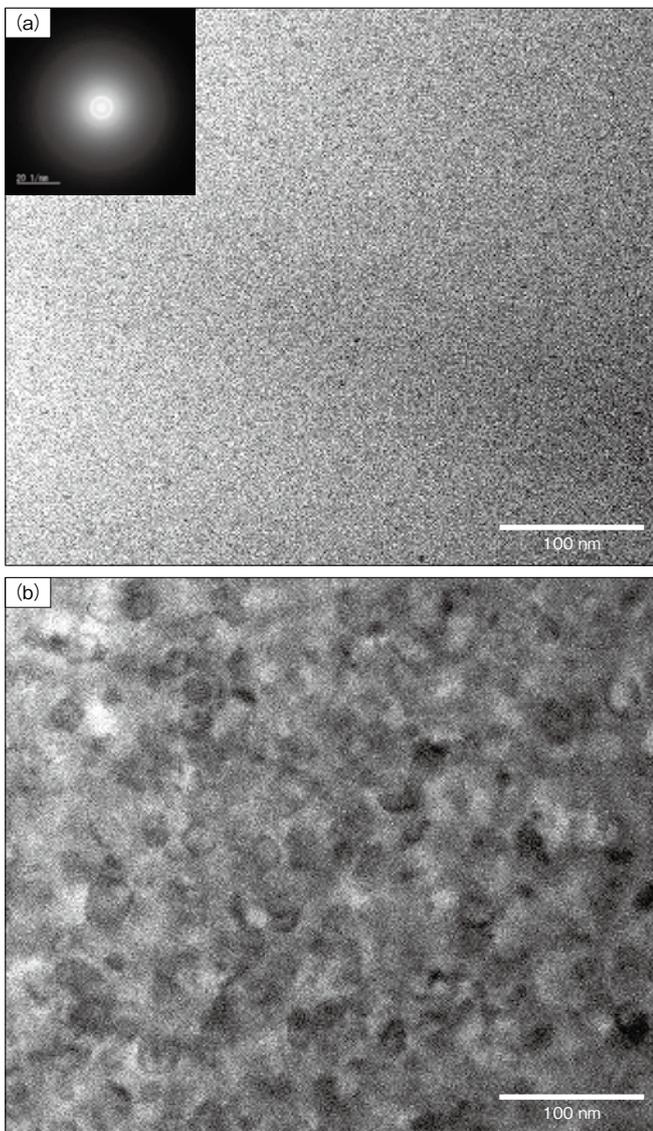


図 2 Fe-Cu-Cr-Si-B-Sn 合金粉末の断面 TEM 写真
(a) 作製状態 (熱処理前) (b) $400^\circ C$ -30 分の熱処理後

Fig. 2 Cross-section TEM image of Fe-Cu-Cr-Si-B-Sn alloy powder
(a) as-fabricated (b) annealed under $400^\circ C$ -30 minutes

マイクロ構造起因の物質として、高い透磁率を有していることが示唆される。

3.2.2 コアによる特性評価

表 1 に改良したアトマイズ装置で製造した Fe-Cu-Cr-Si-B-Sn 合金粉末 (開発材) を $400^\circ C$ -30 分間、窒素雰囲気中で熱処理し、その粉を用いて異なる条件で作製した 3 つのコア A, B, C の B_s およびコアの初透磁率 μ_i , $P_{0.3/2M}$ を示す。表には d_{50} が約 $25 \mu m$ の Fe 基アモルファス合金粉末およびファインメットタイプ合金粉末で作製したコアのデータも示す。開発材で作製したコア A は充填率を増加させるため、 $d_{90} \cong 20 \mu m$ となるように大きめの粉末の配合比を高め、 $d_{50} \cong 8 \mu m$ の粉末群でコアを作製した。他方、コア B, C は $d_{50} \cong 6 \mu m$ の微粉を用いて作製し、コア B は約 40 MPa 、コア C は約 10 MPa で成型されている。コア A は大きめの粉末径を含んでいることもあり、コアロス Fe 基アモルファス合金粉末コアの約 90% と高めだが、 B_s および μ_i が高い次元で両立されており、ポスト・Fe 基アモルファス合金粉末コアの資質を有している。他方、コア B では各要素の特性のバランスが良く、コア C は低コアロスに特化した仕様となる。コア C のコアロスは、ファインメットタイプコアに近い値となるが、この要因としては、粉末径が小さいことに起因した渦電流損失の減少によるところが大きいと考えられる。粉末径が小さいことのデメリットとして、コアの μ_i が低くなる傾向が挙げられる。コアの μ_i は粉末間のギャップに左右され、トータルギャップが大きくなりやすい平均粉末径が小さい場合に低くなる傾向にある。この観点から考察すると、高成型圧で作製したコア B では、コアロスの増加を最小限に抑えつつ、 μ_i の目標が達成されている。このアトマイズ粉の高い流動性に起因して、高圧充填によりトータルギャップが減少していると予想される。図 3 に今回開発した Fe-Cu-Cr-Si-B-Sn 合金粉末、Fe 基アモルファス合金粉末、ファインメットタイプ合金粉末の B_s およびコアの初透磁率 μ_i 、コアロスの逆数 $1/P$ の特性のレーダーチャートを示す。高 B_s 化は高パワー密度化への寄与が大きく、高透磁率化は駆動用の磁場を低く抑えられることから銅線の短尺化、すなわち銅損の低減に有効であり、低コアロスは、発熱を低く抑えられることから、高周波化に有効である。デバイスの設計により求められる特性は変化するが、上述のように、今回開発した高 B_s ナノ結晶合金粉末は、高 B_s を有しながら、 μ_i とコアロスのトレードオフにより、特性を調整することができ、現行の MP よりもデバイスの小型・高効率化を実現できる可能性を有している。

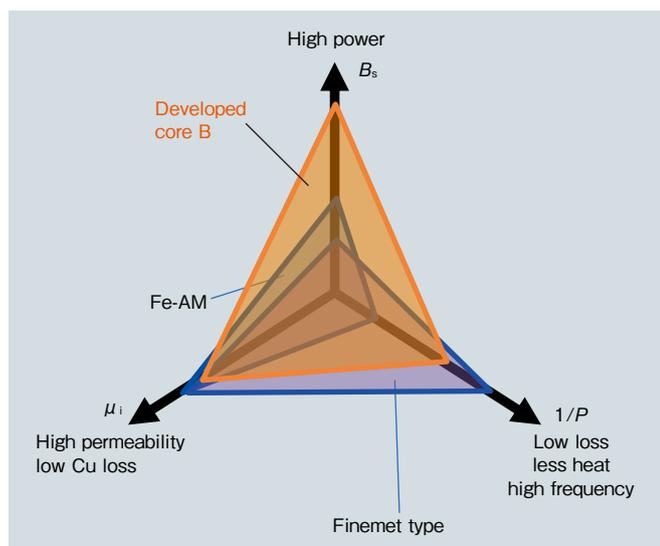


図3 メタルパウダー材の出力、透磁率、ロス特性のレーダーチャート
 Fig.3 Radar chart of power, permeability, loss performance of metal powders

4. 結言

ガスアトマイズ法とその手法を活用できる合金組成開発を行った。高 B_s を満たすために、合金リボンで実績がある Fe-Cu-Si-B 系を出発点として、新規アトマイズ法の高い冷却能力下でもナノ結晶組織が実現される Fe-Cu-Cr-Si-B-Sn 系合金を開発した。この合金粉末を用いたコアでは、1.5 T 以上の高 B_s が実現されるとともに、既存材である Fe 基アモルファス合金粉末と同等の高いコアの初透磁率 μ_i と低コアロスが高次元でバランスがとれることが見出された。

引用文献

- 1) 武本聡, 斉藤貴:電気製鋼, 技術論文, 81 (2010) p.117-122.
- 2) 佐藤敏郎 (研究代表者), 2017-2021, JST 未来社会創造事業「ゲームチェンジングテクノロジー」による低炭素社会の実現, 2017 年度報告書; 100 MHz スイッチング電源用磁心材料開発.
- 3) Isamu Otsuka, IEEE Trans. Magn. 44, (2008) p.3891-3894.
- 4) M. Ohta and Y. Yoshizawa: Jpn. J. Appl. Phys. 46 (2007) L477-479.
- 5) M. Ohta and Y. Yoshizawa: Appl. Phys. Lett. 91 (2007). 062517-1-3.
- 6) Yoshizawa, Y., Oguma, S. and Yamauchi, K. Journal of Applied Physics, 64 (1988) p.6044.
- 7) 特許第 6191908 号公報



太田 元基

Motoki Ohta
日立金属株式会社
特殊鋼カンパニー冶金研究所
博士 (工学)



千綿 伸彦

Nobuhiko Chiwata
日立金属株式会社
特殊鋼カンパニー
博士 (工学)