

表面被膜付きパーメンジュールの開発

Development of Permendur with Surface Coating

矢ヶ部 秀隆*
Hidetaka Yakabe

藤原 義行*
Yoshiyuki Fujihara

竹原 隆司*
Ryuji Takehara

上坂 修治郎*
Shujiroh Uesaka

藤井 和也*
Kazuya Fujii

モーターコアに使用するMgO膜付きパーメンジュール帯材を製造するための塗工液、被膜形成条件を検討するとともに、被膜形成材の電氣的絶縁性、磁性焼鈍時の耐固着性および、軟磁気特性を評価した。塗工液にはMg(OH)₂粉末を分散したスラリーを使用でき、450°Cの熱分解反応によりMgO膜を形成できる。また、被膜形成材は高い表面抵抗率と耐固着性を有する。さらに、Roll to Rollプロセスで試作した被膜形成材(幅245 mm、板厚0.1 mmコイル材)は、パーメンジュールの優れた軟磁気特性が維持されることを確認した。

The effects of the coating fluid and conditions used to form a MgO film on Permendur alloy on the electrical insulation, adhesion resistance following magnetic annealing, and the soft magnetic properties of the coated specimen were investigated. The coating fluid was a slurry containing Mg(OH)₂ powder, and MgO films were produced by heating and dehydrating at 450 °C. The coated films were found to exhibit high surface resistivity and adhesion resistance. Using a roll-to-roll process, a Permendur plate with a width of 245 mm and a thickness of 0.1 mm was coated with a MgO film, and it was confirmed that the soft magnetic properties of the original alloy did not deteriorate.

*
株式会社プロテリアル
特殊鋼事業部
Specialty Steel Business Unit,
Proterial, Ltd.

■ Key Words : MgO, 電氣的絶縁性, 耐固着性
■ Production Code : YEP[®]-2V

■ R&D Stage : Prototype

1. 緒言

1.1 背景

2015年の気候変動枠組条約締約国会議(COP21)では気候変動抑制に関する多国間の国際的な協定として、人為的な温室効果ガスの排出と吸収源による除去の均衡を達成するネットゼロ(カーボンニュートラル)が採択され、2030年に温室効果ガス排出量を半減、2050年にネットゼロを目標としている¹⁾。カーボンニュートラルのための技術開発分野のひとつが電動化であり、例えば、電気を動力源にしたバッテリー電気自動車(BEV: Battery Electric Vehicle)や電動垂直離着陸機(eVTOL: Electric Vertical Take-off and Landing)がある²⁾。BEVやeVTOLの電動モーターには小型化や高出力化が要求されるため、広く普及している電磁鋼板よりも高い飽和磁束密度(B_s)を有する軟磁性材料が注目されている。その材料が組成式Fe-49Co-2V mass%のパーメンジュールであり、当社はYEP[®]-2Vの製品名で磨き帯鋼を製造、販売している。

1.2 開発の目的

図1は電動モーターとモーターコアの概略図である。パーメンジュールはモーターコアに用いられ、帯材を積層した積層コアが主流である。しかし、モーターコアに適用する場合、大きく二つの課題がある。一つ目は、磁性焼鈍による帯材の固着である。パーメンジュールは、冷間圧延により導入される歪みの除去や再結晶化することで軟磁気特性が向上するため、磁性焼鈍を施す必要がある。この際、多数枚の帯材を重ねた状態で

磁性焼鈍されるが、重ねた帯材同士が固着するため固着防止(耐固着性)の対策を行う必要がある。二つ目は、積層コアの鉄損増加である。鉄損はヒステリシス損失と渦電流損失に分離され、渦電流損失は板厚の二乗に比例する。そのため、積層した帯材が導通すると渦電流損失が増加するため、積層した帯材間の電氣的絶縁性を確保し、渦電流損失を抑制する必要がある。これら二つの課題に対する対策として、酸化マグネシウム(MgO)膜を表面に形成したパーメンジュールが提案されている³⁾。軟磁性材料に被膜を形成する方法としては、例えばパーマロイにMgO、MgCO₃、Mg(OH)₂粉末を含有するスラリーを塗布・乾燥し、熱処理によりMgO膜を形成する報告がある⁴⁾。しかし、パーメンジュールにMgO膜を形成する塗工液や熱処理に関する報告は知られていないのが実情である。

表面被膜付きパーメンジュールとして必要な特性は上述の通り、電氣的絶縁性、磁性焼鈍時の耐固着性に加えて、被膜形成してもパーメンジュールの優れた軟磁気特性が維持されることである。当社プロテリアルは、これらの要求を満足できるMgO膜付きパーメンジュールを開発中であり、本稿ではMgO膜を形成するための塗工液、被膜形成条件の検討結果および、試作したMgO膜付きパーメンジュールの電氣的絶縁性、耐固着性および、軟磁気特性について報告する。

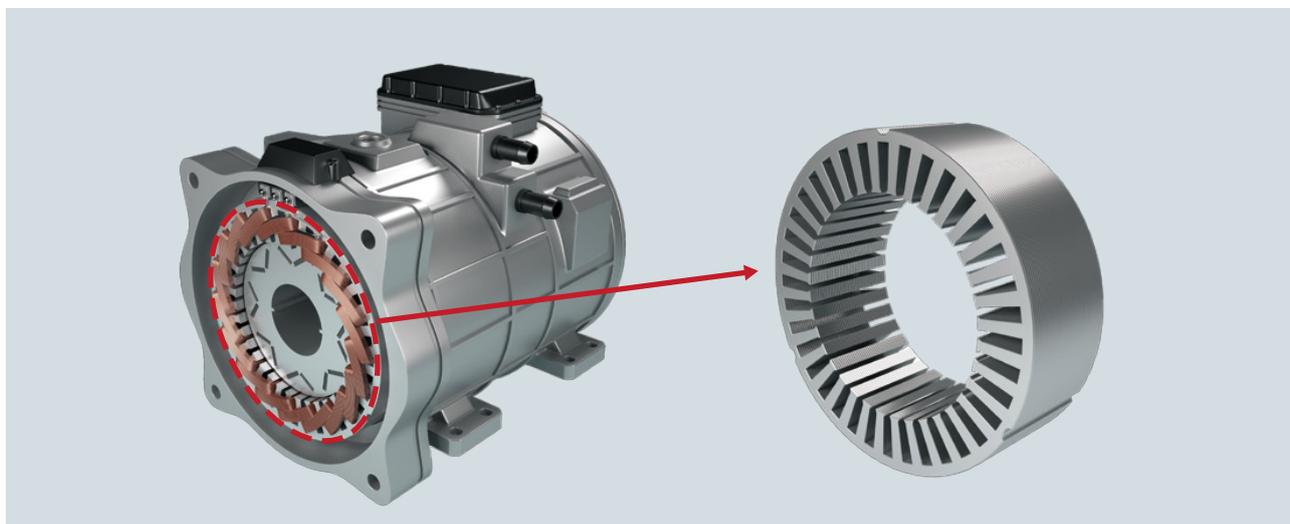


図1 電動モーターとモーターコアの概略図

Fig.1 Schematic diagram of electric motor and motor core

2. 実験方法

被膜形成方法は、ドライプロセスとウェットプロセスに大別される。前者は塗工対象物(基材)に真空中で膜付けする方法であり、大型化や連続生産性に制限がある場合が多い。後者は、大気圧環境下で塗工、乾燥することで膜付けが可能のため、設備の大型化や基材の供給を連続的に行うRoll to Rollプロセスが可能で量産性に優れる⁵⁾。本検討では、最終的にRoll to Rollプロセスを想定しているためウェットコーティングを選定することとした。検討の流れは、まず実験室スケールの枚葉コーティングにより塗工液や被膜特性の基礎検討を行った後、Roll to Rollプロセスで被膜付きコイルを試作し軟磁気特性を評価した。

2.1 被膜形成

塗工液の検討は、固形分であるMgO粉末および、MgO膜の前駆体となるMgCO₃、Mg(OH)₂粉末の粒径を測定した。次に固形分を水溶媒に分散したスラリーを作製した後、目視により固形分の分散状態を観察し塗工液への適用可否を判定した。MgO膜の形成は基材準備、塗工、乾燥、焼付けの順に行った。ここで、焼付けとは前駆体からMgOを生成するための熱処理を指す。まず、板厚0.1 mmのYEP-2Vを脱脂洗浄し塗工用基材とした。次に、Dipコーティングにより塗工液を基材両面に塗布・乾燥した後、窒素雰囲気中で焼付け処理を行うことでMgO膜を形成した。なお、膜厚の調整は、塗工液に浸漬した基材を引き上げる際の引上げ速度の調整により行った。焼付け温度は、塗工液に用いる固形分粉末の示差熱-熱重量同時測定(TG-DSC; Thermogravimetry-Differential

Scanning Calorimetry)の測定結果から決定した。被膜の定性分析は、X線源にCo-K α を用いたXRD(X-Ray Diffraction)の2 θ 法により行い、膜厚は走査型透過型電子顕微鏡(STEM; Scanning Transmission Electron Microscope)を用いた断面観察から求めた。

2.2 電氣的絶縁性

抵抗率計を用いて四探針法で表面抵抗率を測定した。プローブはJIS K 7194対応品を用いた。

2.3 耐固着性

耐固着性は図2に示す手順で行った。①50 mm×50 mmと40 mm×50 mmのサイズが異なる被膜有り、被膜無しの帯材を1セットずつ準備する。②アルミナプレート上にそれぞれを重ねてセットし、その上に重りとしてアルミナプレートを配置する。③磁性焼鈍(水素雰囲気中で850°C、3時間保持、炉冷)を施す。④取り出した試験片の片方をクリップで挟んで持ち上げ、もう片方が落下する場合を固着無し、落下しない場合を固着すると判定した。なお、③で重りを設置する目的は、量産工程を想定すると、多数枚の帯材を重ねて磁性焼鈍するため、帯材には自重による荷重が負荷されることを模擬するためである。また、本試験では炉体サイズの制約上、使用できる重りの枚数が制限されるため、負荷可能な最大面圧の1,000 Paで評価した。

2.4 磁気特性評価

2.4.1 評価材の作製

評価材は、Roll to Rollプロセスで作製したコイル材から採取した。コイル試作は、基材に板厚0.1 mm、幅245 mmの冷間圧延コイルを用いた。塗工および乾燥

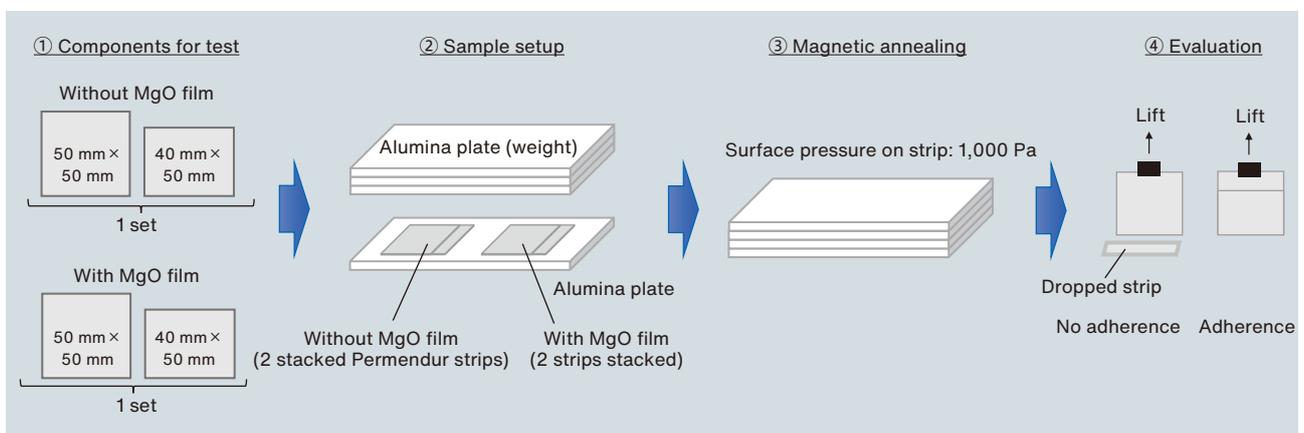


図2 耐固着性の評価手順

Fig.2 Procedure for evaluating adhesion resistance

はグラビア方式を用い、基材の両面に片面ずつ塗工、乾燥した。続いて、焼付け処理を行うことでMgO膜を形成した。形成したMgO膜の膜厚は0.75 μm である。

2.4.2 直流磁気測定

飽和磁束密度 B_s の測定は、単板試料を用いたヨーク法で行った。保磁力 H_c および最大比透磁率 μ_m の測定は、MgO膜による反磁界の影響を排除するためトロイダルコアを作製し評価に供した。単板試料は、得られたコイル材から幅25 mm、長さ110 mmの試験片を採取し、磁性焼鈍（水素雰囲気中で850 $^{\circ}\text{C}$ 、3時間保持、炉冷）を施した後、最大外部磁場10,000 A/mを印加し飽和磁束密度 B_s を測定した。トロイダルコアは45 mm、内径33 mmのリング試験片を10枚採取し、上記と同じ条件で磁性焼鈍を施した。その後、試験片をプラスチックケースに重ねて収め、1次50回と2次100回の巻き線を施し、800 A/mの最大外部磁場を印加した。なお、磁気特性評価の比較材は被膜無し材としており、重ねたリング試験片には層間絶縁紙を挟んでいる（被膜有り材の場合は、層間絶縁紙を使用していない）。

2.4.3 交流磁気測定

上記のトロイダルコアを用いて鉄損 W を評価した。条件は、磁束正弦波にて励磁周波数 f が50~1,000 Hz、動作磁束密度 B_m は2.0 Tで測定した。

3. 結果

3.1 被膜形成

積層コアでは占積率が高いことが望まれるためMgO膜を薄くする必要がある。一方、薄すぎると塗工の難易度が上がるため本検討では膜厚下限の目標を0.1 μm とし、これを達成可能な塗工液を検討した。表1に固形分粉末としてMgO、MgCO₃、Mg(OH)₂を用いた塗工液の試作結果を示す。固形分にMgO粉末を用いた場合、粉末が水和しゲル状になるため塗工液への適用は

不可と判断した。また、MgCO₃粉末の場合は、MgCO₃の結晶性の高さから粒径が約0.5 μm の粗大粒しか得られず、そのような固形分からは0.1 μm の薄膜は形成できないため塗工液への適用は不可と判断した。一方、Mg(OH)₂を用いた場合は、粒径0.1 μm 以下で水溶媒に安定分散した塗工液が得られたことから、被膜形成の検討に用いることとした。

図3はMg(OH)₂粉末のTG-DSC測定結果である。432 $^{\circ}\text{C}$ に吸熱ピークと重量減少が確認され、これらはMg(OH)₂→MgO+H₂Oの熱分解反応の吸熱および、副生成物であるH₂Oの放出によるものである⁶⁾。この結果から、焼付け温度を450 $^{\circ}\text{C}$ とすることでMgO膜を形成可能である。続いて、実際に帯材にスラリーを塗工し、MgO膜の形成に必要な焼付け時間を調べた。図4はXRDスペクトルであり、図中の●、◆、■はそれぞれ基材(bcc FeCo)、固形分のMg(OH)₂、MgOに起因する回折ピークである。測定には被膜厚さが0.75 μm のサンプルを用いており、被膜が薄いため基材のピークも観測されている。焼付け時間が0分（焼付け無し）および1分では六方晶系のMg(OH)₂に特徴的な回折パターンを示し、熱分解反応が不十分で未反応のMg(OH)₂が残っている。一方、焼付け時間5、10、20分で

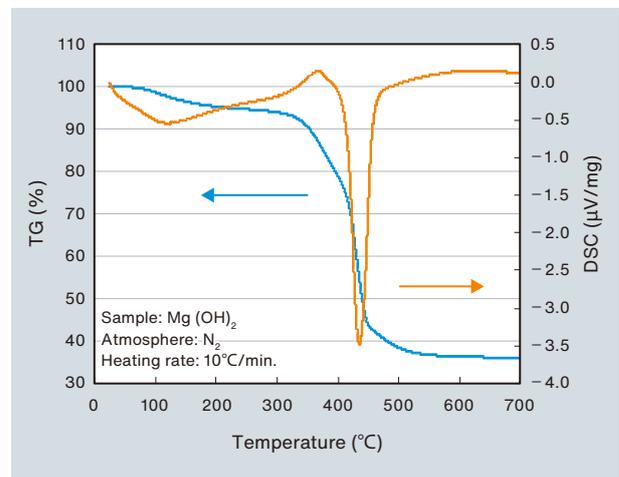


図3 Mg(OH)₂粉末のTG-DSC測定結果

Fig.3 TG-DSC measurement results for Mg(OH)₂ powder

表1 塗工液の試作結果

Table 1 Preliminary results for powder used in coating fluid

Solid powder	Results for coating fluid
MgO	Since MgO powder becomes hydrated and gelled, it cannot be used in a coating fluid
MgCO ₃	Since the MgCO ₃ particle size is coarse (about 0.5 μm), it cannot be used to form a MgO film with a thickness of 0.1 μm .
Mg(OH) ₂	Produces a stable dispersion of fine particles with a size of 0.1 μm or less in water.

はMg(OH)₂のピークが消失しMgOのピークが現れている。以上から、焼付け時間を5分以上とすることでMgO膜を形成可能であることが分かる。本結果から5分でMgOが生成するが、十分な熱分解反応の時間を確保するため、以後の実験は焼付け時間10分で検討を進めることとした。

3.2 電気的絶縁性

図5はMgOの膜厚と表面抵抗率の関係である。膜厚が0.08 μmの場合は、基材自体の表面抵抗率(図中、MgO膜の膜厚0.0 μmのプロット)に対してわずかな増加に留まるが、0.43 μm以上の膜厚では測定装置の測定限界(>9×10⁶ Ω)の表面抵抗率が得られる。次に、得られたMgO膜の断面観察を行った。図6は代表例と

して表面抵抗率が低い膜厚0.08 μmおよび、表面抵抗率が高い0.75 μmの断面STEM像と元素マッピングを示す。膜厚0.08 μmにおいては、基材とMgO膜の界面は比較的明瞭であり、表面抵抗率の低下に関するような拡散層は観察されていない。一方、MgO膜の内部には矢印で示すようなMgとOが存在しない領域、つまり空隙が多数存在している。また、空隙部分においては実質的な膜厚が非常に薄くなっていることから、空隙部分で絶縁破壊していると考えられる。これに対し、膜厚0.75 μmの場合も同様な空隙が見られるものの、MgO膜が厚いため絶縁性を確保できると考えられる。

モーターコアで必要とされる電気的絶縁性は、積層した帯材間の絶縁性、つまり層間絶縁性であるが、本評

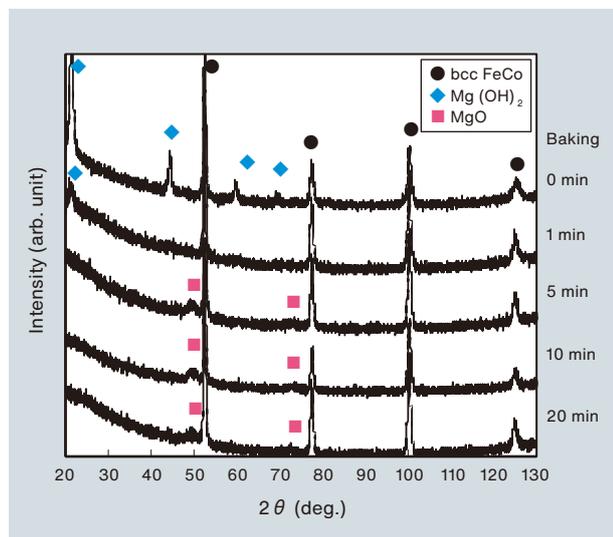


図4 被膜のXRD スペクトル(膜厚 0.75 μm)

Fig.4 XRD spectrum of coating film (thickness 0.75 μm) on Permendur

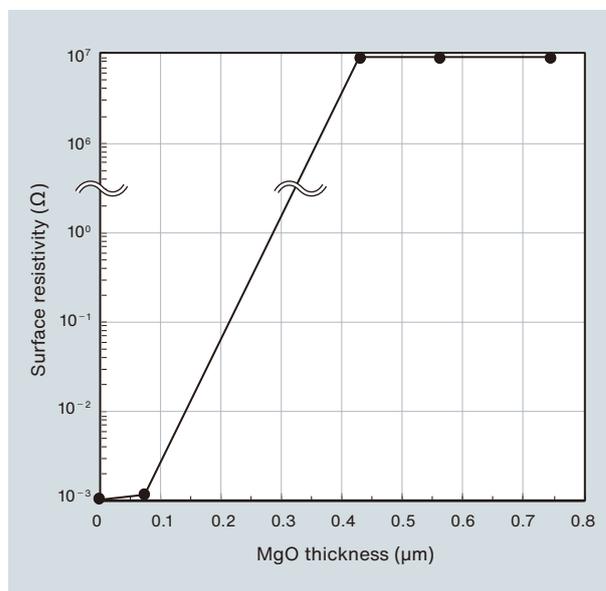


図5 MgO 膜の膜厚と表面抵抗率の関係

Fig.5 Relationship between surface resistivity and film thickness (up to 0.75 μm)

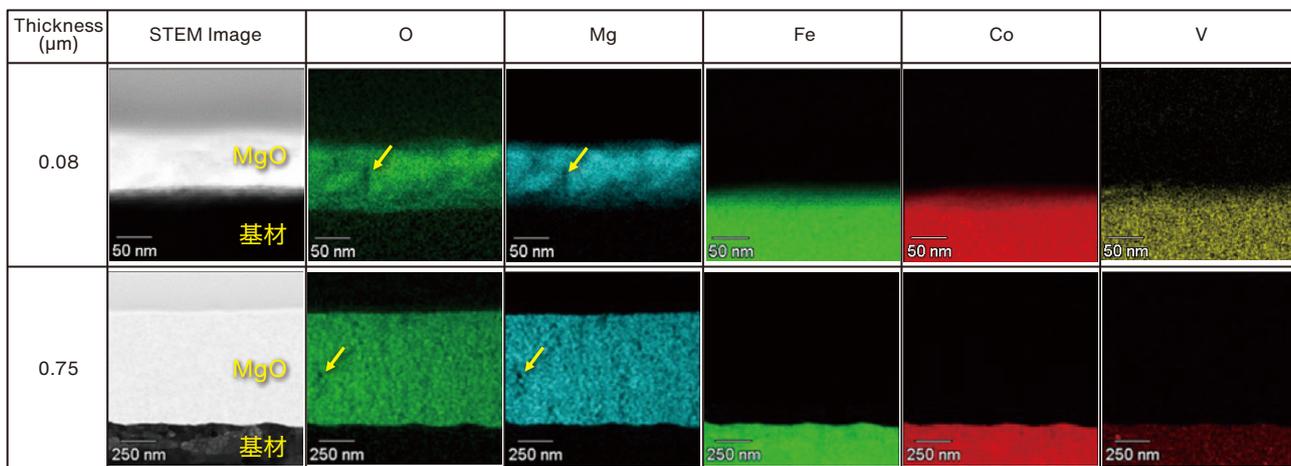


図6 MgO 膜の断面 STEM 像

Fig.6 Cross-sectional STEM images of MgO films with different thicknesses

価では表面抵抗率の測定により簡易的に評価したものである。この評価方法は、JIS 2550-4で規定される層間絶縁性の評価方法とは異なるが、本評価から膜厚を0.43 μm以上とすることで高い電気的絶縁性を有することができると思われ。

3.3 耐固着性

図7はMgO膜有り、無しの基材について、磁性焼鈍後の固着有無を確認した外観写真である。なお、MgOの膜厚は0.75 μmである。MgO膜有りの場合は、片方の基材を持ち上げると、他方の基材は落下することから、磁性焼鈍によって固着しないと判断できる。一方で、MgO膜無しの場合は、片方の基材を持ち上げても他方の基材は脱落しないことから固着している。これより、MgO膜の膜厚を0.75 μmとすることで、電気的絶縁性と耐固着性を満足することが分かる。ここで、MgO膜によって固着を防止できる理由を考察する。固着は、基材を重ね置きすることで自重による圧力が加わった状態で加熱されるため熱間接合と考えることができる。熱間接合のしやすさには、接合材の構成原子の拡散が影響する。そこで、アレニウス式(式(1))と拡散距離(式(2))を用い、磁性焼鈍条件(保持時間, 温度)における原子の拡散距離を比較する。

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (1)$$

$$d = \sqrt{2Dt} \quad (2)$$

ここで、 D : 拡散係数、 D_0 : 拡散振動因子、 Q : 活性化エネルギー、 R : 気体定数(8.314 J/mol)であり、 T : 温度、 t : 時間である。また、パーメンジュールの場合はbcc Fe中のCo, MgO膜の場合はMgO中のMgの拡

散距離を比較し、計算にはbcc Fe中のCoが $D_0 = 2.80 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$, $Q = 251 \times 10^3 \text{ J/mol}$, MgO中のMgが $D_0 = 2.49 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$, $Q = 331 \times 10^3 \text{ J/mol}$ ^{7),8)}, T および t は磁性焼鈍条件の $T = 1,123 \text{ K}$, $t = 10,800 \text{ sec}$. とした。計算の結果、 $d_{\text{Co}} = 3.6 \times 10^3 \text{ nm}$ に対し $d_{\text{Mg}} = 15 \text{ nm}$ で、MgO中のMgは極めて拡散し難いと考えられる。このことから、磁性焼鈍時にFeCo同士が接すると拡散により固着するが、MgO同士が接していれば拡散が生じ難いため固着を抑制できると考えられる。

3.4 軟磁気特性

図8はMgO膜有り、無しにおけるパーメンジュールの $B-H$ 曲線である。MgO膜有り、無しのいずれも、小さい外部磁場 H で急峻に磁束密度 B が増加することが分かる。表2は図8から得られた保磁力 H_c , 最大比透磁率 μ_m であり、合わせて単板の $B-H$ 曲線(図示しない)から

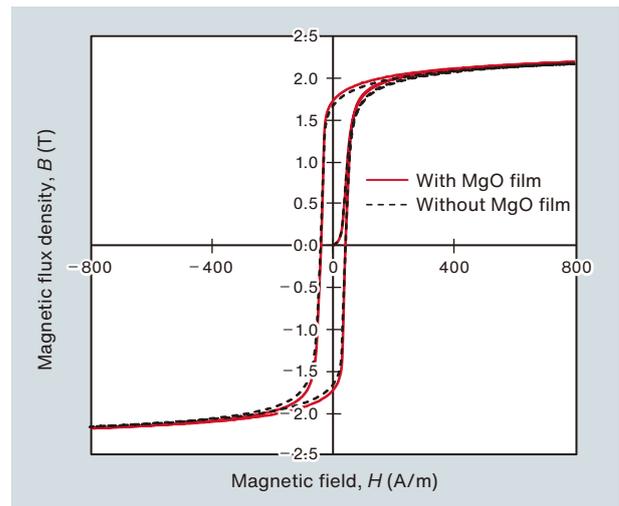


図8 MgO 膜有り, MgO 膜無しパーメンジュールの $B-H$ 曲線
Fig.8 $B-H$ curve for Permendur with and without MgO film (film thickness 0.75 μm)

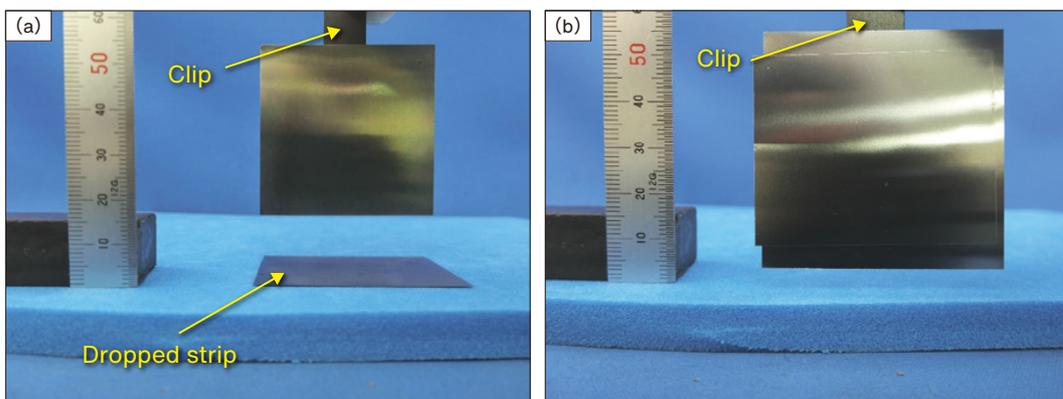


図7 耐固着性試験の外観写真 (a) MgO 膜有り (膜厚 0.75 μm), (b) MgO 膜無し

Fig.7 Photograph of adherence resistance test (a) with MgO film (thickness 0.75 μm), (b) without MgO film

得られた飽和磁束密度 B_s も示す。MgO膜有り、無しで比較すると H_c , μ_m , B_s とも差はわずかであり、MgO膜の形成により軟磁気特性は劣化しないと言える。

表3は動作磁束密度 $B_m = 2.0$ Tにおける周波数 f と鉄損 W である。 $W_{20/1000}$ の表記は $B_m = 2.0$ T, $f = 1,000$ Hzの鉄損を意味する。ここで、比較材であるMgO膜無しのトロイダルコアは、10枚のリング試料に対し層間絶縁紙を介して重ねており、層間絶縁性が確保されている。従って、本評価は積層体の鉄損 W を評価しているのではなく、リング単体の W であることに注意されたい。結果はMgO膜有り、無しで大きな差は見られておらず、MgO膜の被覆により W が劣化しないことを確認した。むしろ、MgO膜有りでは W が小さい傾向にある。これは、ヒステリシス損失や渦電流損失の減少に起因し、基材の結晶粒径の粗大化や歪みの減少、基材の電気伝導率の減少が有り得るが詳細は定かではない。

最後に、試作コイルを巻き出した際の外観写真を図9に示す。膜厚 $0.75 \mu\text{m}$ のMgO被覆により表面は茶褐色を呈している。また、コイル材でも表面抵抗率 $> 9 \times 10^6 \Omega$ の電氣的絶縁性、耐固着性を有することを確認済みである。以上から、電氣的絶縁性、耐固着性を有し、軟磁気特性に優れたパーメンジュールのコイル材を作製可能なことを実証できた。

表2 MgO膜有り、MgO膜無しパーメンジュールの直流磁気特性

Table 2 DC magnetic properties for permendur with and without MgO film

	H_c (A/m)	μ_m	B_s (T)
With MgO film	40.2	19,000	2.28
Without MgO film	41.3	18,000	2.27

表3 MgO膜有り、MgO膜無しパーメンジュールの鉄損 W の代表値

Table 3 Representative iron loss for Permendur with and without MgO film (film thickness $0.75 \mu\text{m}$)

	$W_{20/50}$ (W/kg)	$W_{20/400}$ (W/kg)	$W_{20/1000}$ (W/kg)
With MgO film	2.3	23.1	74.0
Without MgO film	2.4	24.6	79.4

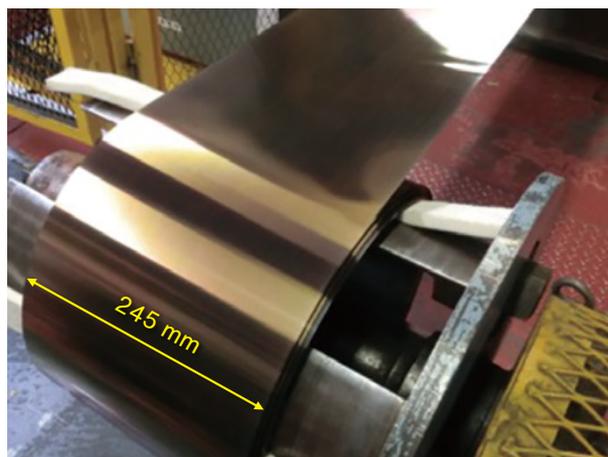


図9 試作コイルの外観写真

Fig.9 Photograph of prototype coil (film thickness $0.75 \mu\text{m}$)

4. 結言

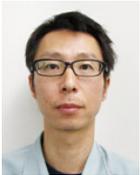
モーターコアに使用するMgO膜付きパーメンジュールを製造するための塗工液、被膜形成条件を検討するとともに電氣的絶縁性、磁性焼鈍時の耐固着性および、軟磁気特性を評価し、以下の結論を得た。

- (1) 塗工液には $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 粉末を水溶媒に分散したスラリーを使用でき、 450°C の熱分解反応によりMgO膜を形成できる。
- (2) MgO膜の膜厚を $0.75 \mu\text{m}$ 以上とすることで高い表面抵抗率、耐固着性を付与できる。
- (3) 電氣的絶縁性と耐固着性を有し、軟磁気特性に優れたパーメンジュールのコイル材を製造できる目途を得た。

※YEPは株式会社プロテリアル登録商標または商標です。

引用文献

- 1) 阿由葉: グリーン社会の実現に向けた競争政策研究会資料, 資料6-2, 2022年7月, p.7-19.
- 2) 経済産業省, 「次世代航空機に向けた研究開発・社会実装の方向性」, 資料6, 2021年5月, p.19.
- 3) VACUUMSCHMELZE社, 軟磁性材料コバルト鉄合金カタログ, 2016年11月, p.17.
- 4) Sato: J. Japan Inst. Metals, Vol.53 (1989), p.232-236.
- 5) Omori: J. Surf. Finish. Soc. Jpn., Vol.60, No.7, (2009), p.17-22.
- 6) K. Hamano: J. Chem. Assoc. Japan 74, 5, (1996), p.144-152.
- 7) 井口他: 金属データブック, 日本金属学会編, 改訂4版, 丸善株式会社, (2004), p.21.
- 8) サムソフ他: 最新酸化物便覧, モスクワ冶金研究所, (1978), p.135.



矢ヶ部 秀隆
Hidetaka Yakabe
株式会社プロテリアル
特殊鋼事業部
安来工場 冶金研究所



藤原 義行
Yoshiyuki Fujihara
株式会社プロテリアル
特殊鋼事業部
安来工場 冶金研究所



竹原 隆司
Ryuji Takehara
株式会社プロテリアル
特殊鋼事業部
安来工場



上坂 修治郎
Shujiroh Uesaka
株式会社プロテリアル
特殊鋼事業部
安来工場



藤井 和也
Kazuya Fujii
株式会社プロテリアル
特殊鋼事業部
安来工場