

令和 3 年 5 月 25 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2020

課題番号：19K21952

研究課題名（和文）配列化したサブミクロンアモルファス金属磁性微粒子における静的・動的磁気挙動の解明

研究課題名（英文）Study on the static and dynamic magnetic properties of arrayed amorphous metal magnetic particles with the submicron sizes

研究代表者

遠藤 恭（ENDO, Yasushi）

東北大学・工学研究科・准教授

研究者番号：50335379

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究課題では、次世代電源用磁心材料の創製を向けて、サブミクロンアモルファス軟磁性微粒子材を合成し、それらの静的・動的磁気挙動を検討することと、合成した微粒子の配列化を試み、その形状と静的・動的磁気挙動を検討した。合成した微粒子は比較的良好な軟磁気特性および高周波磁気特性を有していることがわかった。また、配列化させると、透磁率の向上と共鳴周波数の高周波化が可能であることを明確にした。これらの成果から、合成したサブミクロンFe-B微粒子が次世代電源用磁心材料の有力な候補の一つであり、鎖状・配列化によりノイズ抑制体などの高周波磁気デバイスへの応用が期待できることを示唆している。

研究成果の学術的意義や社会的意義

学術的意義に関しては、粒度分布の狭いサブミクロンアモルファス軟磁性微粒子の合成に成功し、配列化することにより一方向に形状異方性が誘導されて透磁率が向上することにより、良好な高周波磁気特性を示すことを明確にしたことである。また、社会的意義に関しては、合成した微粒子が電源用デバイス次世代磁心材料の有力な候補となりうることと、それらの微粒子を鎖状・配列化することによりノイズ抑制体などの高周波磁気デバイスへの応用が期待できることである。

研究成果の概要（英文）：In order to create magnetic core materials for the next-generation power supply, this study focuses on static and dynamic magnetic properties of amorphous soft magnetic particles with submicron sizes synthesized by chemical preparation in aqueous solutions, and reports the synthesis of these particle chains and their magnetic properties. These submicron particles possess both the good magnetic softness with the low hysteresis loss and good high-frequency magnetic properties. Also, as these particle chains are synthesized, the demagnetization field associated with isolated particle can be reduced, resulting in improvement of high permeability performance. These results demonstrate that these amorphous magnetic particles with submicron sizes are one of the candidates as magnetic core materials for next-generation power supply. These results suggest that the particle chains have a high potential for high-frequency applications such as inductor cores and electromagnetic noise absorbers.

研究分野：高周波磁性材料・高周波磁気計測工学

キーワード：アモルファス金属磁性微粒子 電源用磁心材料 サブミクロンサイズ 高周波磁気特性 鎖状粒子

### 1. 研究開始当初の背景

近年、インバータやスイッチング電源などの各種電子機器の高エネルギー密度化および高周波化にともない、トランスやチョークコイルなどの部品に用いられる軟磁性材料に対して、これらの部品の小型化による高飽和磁化と、高周波領域における損失の低減が要求されている。しかしながら、従来幅広く用いられてきたフェライト(Fe系酸化物)材では、飽和磁化が低く、高エネルギー密度への対応が困難である。一方で、既存の結晶質金属ダスト材料では、高周波領域での損失の低減を実現することができない。したがって、これらの問題を解決して電源効率の向上と動作周波数の高周波化へ対応するためには、新たな金属磁性微粒子材の開発が望まれている。

我々は、これまでに MHz 帯領域における電源用マイクロインダクタの創製に向け、高飽和磁化、絶縁性、生産性といった優位性を有するアモルファス金属磁性微粒子材を選択し、高透磁率を有する扁平形状の金属磁性微粒子材の開発や、軟磁気特性を有する球形金属微粒子の開発を行ってきた。扁平形状の金属磁性微粒子材に関しては、微粒子材本来の高透磁率を実現するため、面内方向への扁平微粒子の配列が鍵を握っていることを明確にした。また、球形金属微粒子材に関しては、軟磁気特性とマイクロ波帯での高周波特性を得るため、形状の均一化とマイクロ波領域での渦電流損失抑制のためのサイズの低減が必須となることを明確化した。これらの知見を元に本研究の構想に至った。

### 2. 研究の目的

本研究では、次世代電源用磁心材料の創製を目指して、新規微粒子材としてサブミクロンサイズのアモルファス金属磁性微粒子材を選択し、これまで行われていない配列合成法を創出することを目的とした。配列化は、この微粒子材の特長である高飽和磁化、低保磁力、絶縁性、生産性に加えて、高い周波帯域(数十 MHz から GHz 帯まで)で大電流駆動可能かつ低磁気損失特性の実現が期待できるからである。具体的には、サブミクロンサイズのアモルファス金属磁性微粒子材の合成法・配列法の確立を行い、それらの静的・動的磁気挙動について検討する。

### 3. 研究の方法

【微粒子合成法】サブミクロン Fe-B 微粒子の合成に関しては、微粒子合成装置(図1)を利用して無電解めっき法に類似した水溶液還元反応法により以下の手順で行った。Fe イオンを含んだ先駆体溶液(硫化鉄、塩化アンモニウム、クエン酸ナトリウム)を、塩基系水溶液(水酸化ナトリウム)を少しずつ加えて水素イオン濃度指数(pH)を10となるようにビーカー内で合成した。合成後、ビーカーを超音波洗浄機内に設置し、超音波を加えながら攪拌装置によりビーカー内の溶液を一定の速度で攪拌させた。この状態で、溶液に還元溶液(水素化ホウ素ナトリウム)を、適量送液ポンプを介して一定の速度で滴下させた。滴下直後から Fe イオンの還元反応が開始されて還元雰囲気が進んで Fe-B 微粒子が析出した。反応終了後、析出した微粒子と溶液の入ったビーカーを永久磁石の上に置いて微粒子のみを回収し、酢酸、水、エタノールの順で複数回洗浄した。その後、合成した微粒子をエタノール中に保存した。なお、微粒子の平均粒径を制御するために、合成条件(攪拌速度、還元溶液の滴下速度、超音波洗浄機内の水温など)の調整を行った。

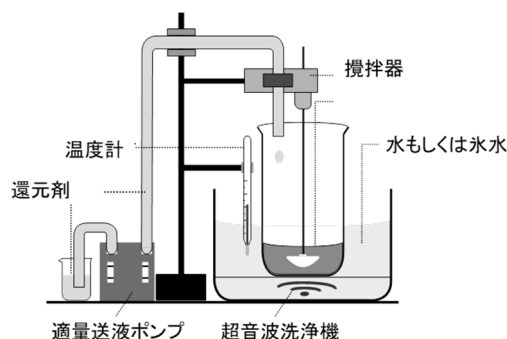


図1 水溶液還元法による微粒子合成装置

【配列化】微粒子の配列化として、以下の二つの方法を試みた。(1)分散合成した微粒子と樹脂を混合したコンポジット材をポリミド基板上でペースト化し、その後数 kOe の DC 磁界を発生させた電磁石の磁極内に設置して配列化させ、その後オープンで固化させた。(2)還元液をすべて滴下後、還元反応が終了しないうちに溶液の入ったビーカーを超音波洗浄機から取り出して永久磁石の上に設置し、配列化を試みた。

【評価方法】合成した微粒子の形状に関しては走査型電子顕微鏡(SEM)を用いて評価した。結晶構造に関しては、X線回折装置(XRD)と透過型電子顕微鏡(TEM)を用いて評価した。静的磁気挙動に関しては、振動試料型磁力計(VSM)を用いて評価した。また、動的磁気挙動に関しては、短絡型MSL治具とベクトルネットワークアナライザからなる複素透磁率測定装置を用いてSパラメータの周波数特性評価を行い、得られた結果を専用ソフトにより解析してコン複素透磁率の周波数特性を評価した。なお、静的・動的磁気挙動評価では、主に合成した微粒子とエポキシ樹脂からなるコンポジット材を用いた。

#### 4. 研究成果

##### (1) サブミクロン Fe-B 微粒子における形状・結晶構造と静的・動的磁気挙動

合成した微粒子の形状はすべて球状であり、ある程度分散したことを確認した(図2)。また、それらのメディアン径は合成条件(還元剤の滴下量およびめっき浴の温度)を変化させることにより約250 nmから800 nmまでサブミクロン領域で可変させることができた。粒径分布に関しては、いずれの場合もアトマイズ法や粉碎によって合成した微粒子に比べて比較的狭くなった。一方、結晶構造に関しては、いずれの平均粒径においても結晶相に由来するXRD回折ピークは観測されなかった。また、TEMによる電子線回折パターンからも、結晶相に由来する明瞭な回折スポットや回折リングは観測されず、ハローパターンのみ観測された。このことから、合成した微粒子は、いずれの粒径においてもアモルファス状態となっていることがわかった。

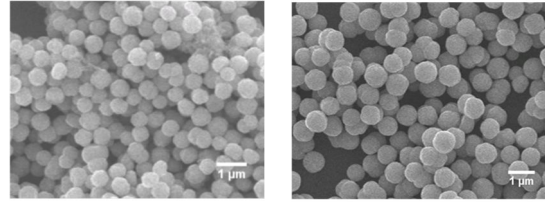


図2 合成した Fe-B 微粒子の形状像  
(左図: メディアン径約 400 nm,  
右図: メディアン径約 800 nm)

このような形状・結晶構造を有するサブミクロン Fe-B 微粒子の静的磁気挙動を評価するために、磁化曲線測定および解析を行い、得られた保磁力( $H_c$ )および残留磁化比( $\sigma_r/\sigma_s$ )を、メディアン径を関数としてまとめた(図3)。 $H_c$ は、500 nm以上のメディアン径では粒径に対する傾向が観測されず、 $H_c$ 値は20~30 Oe程度であった。一方、500 nmより小さなメディアン径の領域では、メディアン径の減少にともない急激に増加した。この挙動はメディアン径の減少にともない磁区構造が多磁区から単磁区へ遷移したことによるものと考えられる。一方、 $\sigma_r/\sigma_s$ は500 nm以上のメディアン径ではほぼ一定となり、それらの値は0.015程度であった。一方、500 nm以下の場合にはおよそ0.07と若干増加した。これらの結果は、合成したサブミクロン Fe-B 微粒子が比較的良好な軟磁気特性を有していることを示唆している。

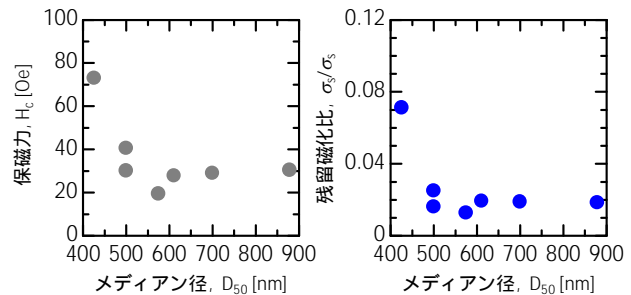


図3 保磁力および残留磁化比とメディアン径の関係

また、サブミクロン合成した Fe-B 微粒子の動的磁気挙動(高周波磁気挙動)を理解するために、樹脂と混合したコンポジット材における透磁率の周波数特性を評価し、FMR周波数と500 MHzでの透磁率を、メディアン径を関数としてまとめた。FMR周波数は、メディアン径の減少にともないやや減少した後、増加した。それらの値はおよそ3.0-3.6 GHzとなった。また、 $\mu'$ はメディアン径の減少にともない増加し、それらの値は1.8-2.4と低かった。

これらに加えて、Fe系反応液とB系還元液におけるFe/Bモル比を可変させた状態で水溶液還元法により300-500 nm程度のメディアン径を有するサブミクロン Fe-B 微粒子を合成し、それらの静的・動的磁気特性を検討した。合成した微粒子の飽和磁化はFe/Bモル比においてBリッチになるにつれてやや減少した。この結果は、Fe/Bモル比の制御により微粒子のB組成を可変できることを意味している。その一方で、Fe/Bモル比においてFeリッチになると、反応が促進せず微粒子がわずかしか合成できなかった。また、動的磁気挙動に関しては(図4)、磁気損失にあたる比透磁率の虚部がGHz以下ではほぼゼロとなり、GHz帯域から上昇し始め4-7 GHz付近で最大となった。この最大となる部分は外部磁界の印加により高周波側へ移動し、それらの値は減少した。これらの結果から、低周波帯側での渦電流による損失が抑制され、GHz帯でFMRによる磁気損失が発生していることを示唆している。

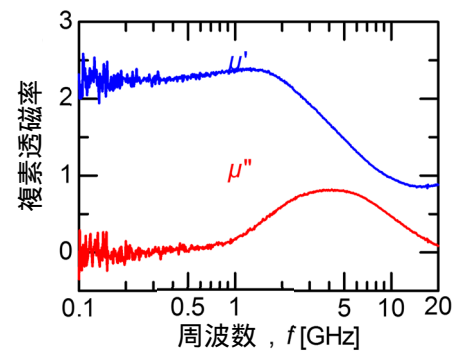


図4 合成した微粒子の複素透磁率

##### (2) 配列化したサブミクロン Fe-B 微粒子コンポジット材における形状と磁気特性

分散合成した微粒子と樹脂を混合したコンポジット材をポリミド基板上でペースト化し、その後数kOeのDC磁界を発生させた電磁石の磁極内に設置して配列化させ、その後オープンで固化させた。この時の合成したコンポジット材の配列形状に関しては、SEMによる断面形状観察を行ったところ、一部を除いておおむね数珠上に一方向に配列できていることを確認した。この一方向の配列は、隣接微粒子間に静磁氣的相互作用が働いたことによるものと考えられる。このように配列化したコンポジット材の静的磁気挙動に関しては(図5)、DC磁界の印加方向によって磁化の飽和のし易さが異なった。これは、配列化により磁化容易軸・困難軸が現れたことによると考えられる。また、動的磁気挙動に関しては、磁化困難軸方向に交流磁界を励起す

ると、その比透磁率が配列化していない場合に比べて若干高くなった。この結果は、粒径の小さいサブミクロン Fe-B 微粒子を配列化させることにより、その微粒子の透磁率を向上させることができることを意味している。

一方で、還元液をすべて滴下後、還元反応が終了しないうちに溶液の入ったビーカーを超音波洗浄機から取り出して永久磁石の上に設置し、微粒子の鎖状・配列化を試みた。この時の合成した微粒子の形状に関しては、500 - 1000 nm 程度の球形粒子が一方方向に鎖状となりつながったものの、一方方向配列はできずかつ永久磁石の磁界強度により配列方向の長さが異なった(図 6)。その静的磁気挙動に関しては、保磁力は 10 Oe 以下と低くなったものの、磁化の方向はランダムとなった。また、動的磁気挙動に関しては、比透磁率の虚部が数および 10 GHz 付近で極大をとった。これは、鎖状となった微粒子のサイズ分散もしくは、サイズの違いによる磁気特性の変化によるものと考えられる。

本研究課題により得られた成果は、粒度分布の狭いサブミクロンアモルファス軟磁性微粒子の合成を確立することに成功したことと、配列化することにより良好な高周波磁気挙動を示すことを明確にしたことであり、学術的に大変意義のある成果である。これらの成果は、合成したサブミクロン Fe-B 微粒子が次世代電源用磁心材料の有力な候補の一つであることと、鎖状・配列化することにより Fe-B 微粒子の高周波磁気デバイス応用が期待できることを表している。また、これらの成果は、国内外において“空白地帯”となっているサブミクロン領域の軟磁性微粒子に関する基礎研究およびデバイス応用開発に対して先駆的かつ新たな研究成果であり、今後の進展が大いに期待されるものである。

#### 引用文献

- (1) 方冰川、宮崎孝道、青木英恵、増本博、遠藤恭、高周波軟磁性 Fe-B 微粒子の構造と磁気特性、電気学会マグネティクス研究会資料 MAG-19-079 ~ 091、7-11 (2019)
- (2) Yasushi Endo, Bingchuan Fang, Takamichi Miyazaki, Hanae Aoki, Hiroshi Masumoto, Study on structure and magnetic properties of sub-micron Fe-B particles, IEEJ Transactions on Fundamentals and Materials, 141, 306-310 (2021)
- (3) 村田啓太、宮崎孝道、増本博、遠藤恭、アモルファス Fe-B 軟磁性微粒子の静的・動的磁気特性、日本磁気学会論文特集号、5、1-5 (2021)

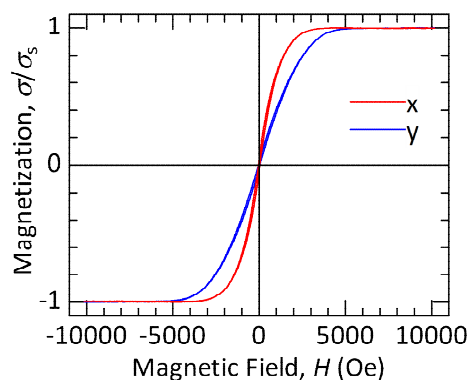


図 5 配列化した微粒子コンポジット材 (微粒子のメディアン径：約 400 nm) の磁化曲線(x と y 方向はコンポジット材面内の任意の DC 磁界印加方向とその直交方向)

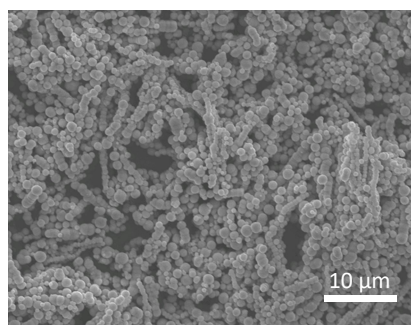


図 6 配列合成法(2)を用いて配列化した微粒子の形状像

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Endo Yasushi, Fang Bingchuan, Miyazaki Takamichi, Aoki Hanae, Masumoto Hiroshi	4. 巻 141
2. 論文標題 Study on Structure and Magnetic Properties of Sub-micron Fe-B Particles	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 IEEJ Transactions on Fundamentals and Materials	6. 最初と最後の頁 306 ~ 310
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1541/ieejfms.141.306	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 村田 啓太、宮崎 孝道、増本 博、遠藤 恭	4. 巻 5
2. 論文標題 アモルファスFe-B軟磁性微粒子の静的・動的磁気特性	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 日本磁気学会論文特集号	6. 最初と最後の頁 1 ~ 5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.20819/msj tmsj .21TR310	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 方冰川、宮崎孝道、青木英恵、増本博、遠藤恭	4. 巻 MAG-19-079 ~ 091
2. 論文標題 高周波軟磁性Fe-B微粒子の構造と磁気特性	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 マグネティックス研究会資料	6. 最初と最後の頁 7 - 11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 村田 啓太、宮崎 孝道、増本 博、遠藤 恭
2. 発表標題 アモルファスFe-B サブミクロン微粒子における静的・動的磁気特性
3. 学会等名 日本金属学会2020年秋期（第167回）講演大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 遠藤 恭
2. 発表標題 高周波ソフト磁性微粒子の開発
3. 学会等名 第1回ソフト磁性研究会「ソフト磁性材料研究の課題と展望」(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 遠藤 恭、島田 寛、森 修、佐藤 茂行、内海 良一
2. 発表標題 新規磁性薄帯用磁気ひずみ評価法の開発
3. 学会等名 第44回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 村田 啓太、宮崎 孝道、増本 博、遠藤 恭
2. 発表標題 アモルファスFe-B軟磁性微粒子の磁気特性
3. 学会等名 第44回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 遠藤 恭、梅津 理恵、宮崎 孝道、三上 慎太郎、平城 智博
2. 発表標題 高純度鉄薄帯における構造と磁気特性の熱処理温度依存性
3. 学会等名 日本金属学会2021年春季(第168回)講演大会
4. 発表年 2021年



1. 発表者名 方冰川、宮崎孝道、青木英恵、増本博、遠藤恭
2. 発表標題 高周波軟磁性Fe-B微粒子の構造と磁気特性
3. 学会等名 マグネティックス研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 遠藤恭、島田寛、森修、佐藤茂行、内海良一
2. 発表標題 磁性合金薄帯用磁気ひずみ計測技術に関する検討
3. 学会等名 日本金属学会2019年秋期（第165回）講演大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 方冰川、宮崎孝道、青木英恵、増本博、遠藤恭
2. 発表標題 サブミクロンFeB粒子からなるSMCの動的磁気特性
3. 学会等名 第43回 日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 村田啓太、宮崎孝道、増本博、遠藤恭
2. 発表標題 Fe-Bサブミクロンアモルファス微粒子における磁気特性のサイズ依存性
3. 学会等名 日本金属学会2020年春期（第166回）講演大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担 者	宮崎 孝道  (MIYAZAKI Takamichi)  (20422090)	東北大学・工学研究科・技術専門職員   (11301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------