

令和 6 年 6 月 5 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04165

研究課題名(和文) 10-100MHz 領域で使用される新規希土類-鉄-窒素高周波材料の開発

研究課題名(英文) Development of novel RE-Fe-N soft magnetic materials for high frequency (10-100 MHz)

研究代表者

昆 竜矢 (Kon, Tatsuya)

九州大学・工学研究院・助教

研究者番号：00780199

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、高周波デバイスでの利用が可能な軟磁性材料の合成およびそのメカニズムについて調査を行った。これは電子デバイスの高周波化が進んでおり、それらのデバイスに利用可能な軟磁性材料が存在しないことが背景として挙げられる。10 - 100 MHzでも利用可能な材料が実用化されれば、デバイスの小型化、高性能化に大きく貢献することができる。この課題の解決のため、希土類-鉄-窒素材料の合成と磁気特性の評価を行いました。アーク溶解法による合金インゴットの作製、粉砕後の窒化処理により複数の材料を合成し、高周波での磁気特性を評価しました。新たな材料において10 MHzで10以上の透磁率を実現した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は高周波で使用可能な軟磁性材料の開発を目指したものである。電子デバイスに用いられる軟磁性材料はコイルなどの部品に用いられる。現在10-100MHz領域で使用できる磁性材料が存在しないため、プラスチックを芯として用いている。プラスチックは透磁率1であり、もし透磁率が10の材料ができた場合、コイルの大きさを10分1にできる。本研究では、10MHzにおいて透磁率10を超える材料の開発に成功し、また新たなメカニズムの高周波軟磁性材料の可能性を示した。

研究成果の概要(英文)：In this study, novel soft magnetic materials can be used in high-frequency device were investigated the synthesis of materials and their mechanisms. This is due to the fact that electronic devices are becoming more frequencies, and there are no soft magnetic materials available for high frequency. If materials that can be used at 10 to 100 MHz are put into practical use, they will be able to make a significant contribution to the miniaturization and performance of devices. In order to solve this problem, RE-Fe-N soft magnetic materials were synthesized and evaluated their magnetic properties. These were fabricated alloy ingots by arc melting method, synthesized multiple materials by nitriding after pulverization, and evaluated their magnetic properties at high frequencies. The new material achieves a magnetic permeability of 10 or more at 10 MHz.

研究分野：冶金学

キーワード：軟磁性材料 Mhz帯高周波材料 希土類-鉄-窒素

1. 研究開始当初の背景

GaN 電子デバイスは高周波・高出力の無線用やパワーエレクトロニクス用デバイスとして今後大きく市場が伸長すると予測されている。GaN 回路の高周波化には GaN デバイスのみならず、併せて受動部品の高周波化が必要になる。例えば、GaN 非接触給電では扱う周波数が 10MHz を超えてくるため、高周波に追従できる磁心材料を用いたコイルが必要であるが、現状では高周波特性に優れた磁心材料が無いために、空芯コイルを使用せざるを得ず、折角 GaN を適用し高周波化してデバイスを小型化することができても、全体の回路サイズが増大するという問題点があった。そこで、10GHz 以上の超高周波吸収材料として、Nd₂Fe₁₇N₃ 材料 (=希土類・鉄・窒素材料) が知られている(今岡ら、特許第 5669389 号)が、この材料を磁心材料としたコイルと GaN 回路とを組み合わせ、10MHz 領域で使用しようとする試みが産業技術総合研究所(以下「産総研」)の窒化物半導体先進デバイスオープンイノベーションラボラトリおよび磁性粉末冶金研究センターの共同でなされた。本材料は、13.56MHz における透磁率実数項(μ' ; 以下、単に透磁率ということがある)は 3 程度であるものの、損失(透磁率虚数項 $\mu'' = 0.02$) が極めて小さいことが回路からの出力や発熱などで確認され (Ide, Imaoka et al, 2019, IEEE Trans. Mag)、10MHz 以上で使用できることが明らかになった。よって 10MHz 以上でより高い透磁率を持つ軟磁性材料を開発することができれば、高周波デバイスの高効率化および小型化をたっせいすることが可能である。

2. 研究の目的

本研究は、この成果をもとに良い材料が存在しない 10-100MHz 領域でも使用可能な Nd₂Fe₁₇N₃ 高周波増幅材料の透磁率を向上させ、広い用途に適用させようとするものであり、以下について研究に取り組む。

- ① 透磁率実数項が 5 を超える高透磁率材料とするために、窒素量、粉体の粒径とその分布の調整、確実な粉体同士の電気的絶縁処理を行う。
- ② 透磁率実数項が 10 以上を目標として、新規材料探索を行う。

透磁率の実数項が大きい材料を磁心とするコイルを回路に組み込めば、その寸法を小さくでき、より回路の小型化に貢献する。従って損失がない限り、透磁率はできるだけ大きくしたい。窒化物半導体先進デバイスオープンイノベーションラボラトリにおける調査では、非接触給電向けで、透磁率 5 が達成されれば実用可能な用途があるとされている。既に、実用化された希土類・鉄・窒素材料としては、上記 Nd₂Fe₁₇N₃ 材料の希土類の種類が、Nd でなく Sm である永久磁石用 Sm₂Fe₁₇N₃ 材料 (Iriyama & Imaoka et al, 1992, IEEE Trans. Mag.) がある。この材料は 600°C 付近で熱分解するため、今のところ磁性粉体を樹脂に分散して成形するボンド磁石しか実用化されていないが、磁気特性の高さだけでなく、その優れた耐食性や温度特性がユーザに好まれ、1999 年に市場投入されから、現在に至って年間数百億円の市場規模に成長し、未だ生産量を増やし続けている。Sm₂Fe₁₇N₃ 材料と Nd₂Fe₁₇N₃ 材料の根本的な相違は、図 1 に示したように、前者では結晶磁気異方性が一軸であるのに対し、後者ではそれが面内であることである。一軸異方性の場合、磁気モーメントが一方 (c 軸方向) に向くと最も安定になるので、外乱によりどの方向に磁気モーメントの向きを傾けようとしても、磁気異方性エネルギーを増加させるから、磁気モーメントの向きは容易に変化しない。この材料の単結晶粉体を外部から磁場を掛けて (この操作を磁場配向という) 固めると、磁気モーメントの方向と向きが揃った永久磁石となる。一方、面内異方性の材料は、磁場配向して固めても、c 面内であれば磁気モーメントは容易に向きを変えるので、磁極を発生させて外部に静磁ポテンシャルを作り、材料自体が高いエネルギー状態にならないように磁気モーメントが再配列されるため、磁石とはならない。従って、室温で一軸異方性を示すことが知られている Sm₂Fe₁₇N₃ 材料のみが永久磁石として工業的に利用され、他の希土類を含む R₂Fe₁₇N₃ 材料 (R は Y を含む希土類元素) は、顧みられず捨てられていた。今岡らは、面内異方性の磁気モーメントが動きやすいことを逆手に取り、外部から材料に侵入する高周波を磁気モーメントの面内の回転と共鳴させて吸収することをできないかと考えを進め、高周波吸収材料の開発に成功している。

研究課題の核心をなす学術的「問い」は「なぜ、Nd₂Fe₁₇N₃ は MHz 領域で損失が極めて小さいのか」ということである。面内異方性といっても、その面内における異方性は完全にゼロではない。この MHz 領域の材料の設計をするにしても、面内における小さな異方性が損失にどのように反映されるか、理論的な考察と見積が必要になる。本件材料を GHz の吸収材料に適用していた時は、増幅材料で

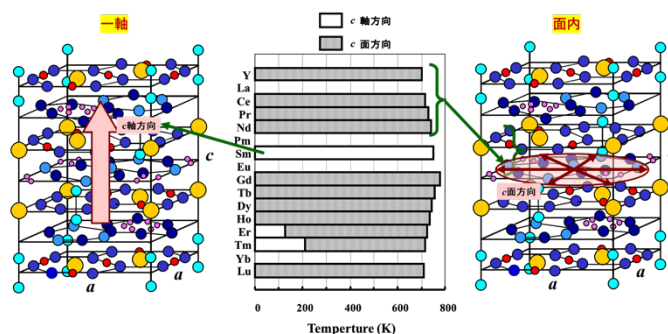


図 1 R₂Fe₁₇N_x 系材料の結晶磁気異方性

問題となる小さな損失については、スプリアスを吸収する能力さえあればいいので格段の注意を払ってこなかった。即ち、もともと増幅材料とするつもりであれば、選択していない系であるともいえる。本件は電気回路と磁性材料という異分野の研究者のシナジーによる産物であり、結果的に常識に囚われない研究テーマが生まれ、新たな学術的な興味に邂逅できたと言える。

3. 研究の方法

まず①の具体的な目的としては、窒素組成、粉碎工程と新たな分級法、粉体表面処理法、樹脂の配合法を最適化して、透磁率5を実現させることである(図2)。この図における100MHz—10GHzにおける損失は、粒径の大きな粉体の混入や粉体同士の接触によって生じる渦電流損失が、最も大きな影響を与えていると考えている。周波数が高い電磁波の増幅材料ほど、粒径の大きな成分は取り除き、粉体の孤立分散を実現しなくてはならない。例えば100MHzの高周波の増幅材料では、10 μ m以下の粉体をマトリックスに綺麗に分散し、確実に個々の粒子を絶縁しなくてはならない。

次に、②では10GHz高周波吸収材料で得られた成果に拘らず、新しい応用を念頭にしたMHz増幅用の材料を、希土類の種類、結晶構造などを1から見直して、材料設計していく。ただし、本研究では、希土類-鉄-窒素材料の枠組みの中で探索を行う予定である。既存の材料はセンダストのような金属とフェライトで代表される酸化物のどちらかに限られている。本テーマの学術的独自性と創造性は、金属より電気抵抗と耐食性が高く、酸化物より透磁率が高い窒化物で、世界初の高性能な高周波材料を創製しようということである。具体的には、Ndに比べコストの安いSmを主体とした正方晶系のR(Fe, M)₁₂Nや、菱面体晶系、六面体晶系であっても、コスト安、原料供給が安定なCe、Laを多く含む材料系を中心に選択していく。

以上を踏まえて、実験方法として試薬の金属試料からアーク溶解を用いて合金インゴットを作製、粉碎することで合金粉末を得る。得られた合金粉末に対してアンモニアガスを用いて窒化処理を行い、希土類-鉄-窒素系粉末を合成する。

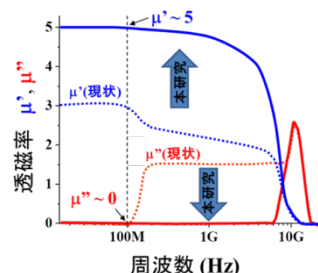


図2 Nd₂Fe₁₇N_x系材料の周波数依存性

4. 研究成果

研究対象とした希土類-鉄-窒素材料の合成およびその磁気特性の評価に取り組んだ。製造プロセスの模式図について図3に示す。アーク溶解法を用いて作製した合金インゴットを粉碎し、100 μ m以下に性s粒子アンモニアガスによる窒化を行った。窒化後の粉体をさらに微粉碎し、成形および分散のための樹脂による表面処理を行い、最終的に磁気特性測定用のリング形状に成形を行なった。この際、用いる希土類元素の種類および結晶構造を制御することで複数の希土類-鉄-窒素材料の合成に成功し、それぞれの材料について結晶構造や粉体形状の分析、高周波での磁気特性について測定を行った。

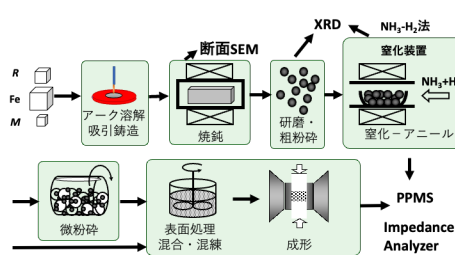


図3 希土類-鉄-窒素材料の合成プロセス

一例として、高い磁気特性を示したCe-Fe-N系の結果について報告する。図4にCe₁Fe₁₂N_x粉末のXRDパターンと、粉体のリング成形体の高周波交流磁場での複素透磁率の測定結果を示す。窒化前の粉体の場合は、明確な結晶構造を示しているのに対して、窒化量の増加につれて、ピーク強度の低下が確認できる。それぞれの粉体について、透磁率測定を行なったところ、窒化前、窒化量小および過窒化アモルファスはそれぞれ、透磁率の実部が10MHzにおいて1.9、5.4および1.3となり、窒化量が増えるにつれ透磁率が増加する傾向を示した。当初想定したメカニズムでは、結晶構造と面内異方性を持つ材料

以上の取り組みにより無配向の状態でも、周波数10-100MHzの範囲で透磁率実数項が10を超える新材料を発見した。

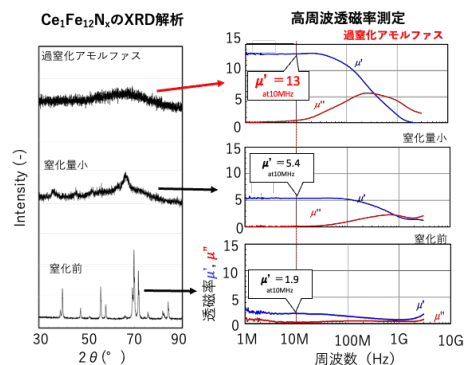


図4 Ce₁Fe₁₂N_xのXRDパターンおよび1MHz～3GHz交流磁場での複素透磁率

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計0件

〔取得〕 計1件

産業財産権の名称 高周波用磁性材料とその製造法	発明者 今岡伸嘉 尾崎公洋 昆竜矢	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、W0/2022/202760	取得年 2023年	国内・外国の別 外国

〔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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------