

機関番号：17301

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21760235

研究課題名 (和文) 低応力型新規透磁率制御軟磁性材料の開発とその応用に関する研究

研究課題名 (英文) Development of novel soft magnetic materials with controlled permeability and application of their materials

研究代表者

柳井 武志 (YANAI TAKESHI)

長崎大学・工学部・助教

研究者番号：30404239

研究成果の概要 (和文)：

$\text{Sm}_x\text{Fe}_{73.5-x}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{15.5}\text{B}_7$  ( $x = 0 - 10$ ) 急冷薄帯を単ロール法により作製し、熱処理を施した。その結果、Sm-Fe系化合物の析出が確認できたが、保磁力が大きく、低損失な薄帯を作製することが困難であった。軟磁気特性の改善のため、パルス熱処理を適用した。その結果、 $x = 2$  のSmを含有する試料にて、提案するコアの生産性改善に有効と考えられるSmFe<sub>2</sub>相の析出が確認できた。優れたコアの実現に不可欠である「長尺薄帯の均一な熱処理の実現」が課題となった。

研究成果の概要 (英文)：

$\text{Sm}_x\text{Fe}_{73.5-x}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{15.5}\text{B}_7$  amorphous ribbons ( $x = 0 - 10$ ) were prepared by the single roll method, and then the ribbons were annealed. Although obtained results suggest the existence of Sm-Fe compound phase, we could not obtain the ribbons with good soft magnetic properties. In order to improve the soft magnetic properties of the ribbon, we applied a pulse annealing method to the amorphous ribbons. We confirmed the SmFe<sub>2</sub> phase in the pulse-annealed Sm<sub>2</sub>Fe<sub>71.5</sub>Cu<sub>1</sub>Nb<sub>3</sub>Si<sub>15.5</sub>B<sub>7</sub> ribbons. Homogenizing for the annealed-state of the ribbon is one of the important tasks for the preparation of the core with excellent soft magnetic properties.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,600,000	480,000	2,080,000
2010年度	1,700,000	510,000	2,210,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：磁性材料

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子・電気材料工学

キーワード：磁性材料, 透磁率制御, 応力熱処理

1. 研究開始当初の背景

近年、パソコンや携帯電話に限らず、TV

等の家電製品、自動車等も情報ネットワークに接続された、“ユビキタス・ネットワーク社会”が形成されつつある。そのような環境下ではネットワーク接続に関連する情報通信機器は常に稼動状態となることに加え、機器の高機能化も伴って、今後、それら全体の消費電力は等比級数的に増加すると考えられる。H14年経済産業省エネルギー技術戦略報告書によると、情報通信に関連する消費電力は、H22年度には、3,300億kWhに達すると予想されている。すなわち、機器の1%の電力効率の改善は、年間数～数十億kWhの省電力となり、情報通信に関連するデバイスの高効率化は軽視できない課題である。

以上のような状況の下、申請者らのグループは電源回路出力部で交流ノイズ抑制のために用いられるチョークコイル用磁気コアやエネルギー蓄積インダクタ用磁気コアに利用される新規な小電力用透磁率制御軟磁性材料の研究開発に着目した。これらの磁気コアは、例えばパソコンのCPU駆動用DC-DCコンバータで用いられ、情報通信電子機器に組み込まれる必要不可欠な磁気デバイスである。CPU駆動用DC-DCコンバータ用のチョークコイルには、“小型、低背、大電流に対応可”等の特性が所望され、従来は形状異方性を利用したフェライトコアが広く用いられてきた。しかしながら近年では、コンバータの設計方針である低消費電力化の観点から“低電圧・大出力電流駆動”の傾向になってきたことから、チョークコイルには“更なる小型・大電流化”が所望されるようになり、より飽和磁化の高いコア材料を用いることが、不可欠となりつつある。加えて、コンバータ自身の小型化を鑑みた“更なる駆動周波数の増加”が予想され、高周波特性が良好なデバイスの開発が期待されている。

研究対象のデバイスは、直流重畳磁界によるインダクタンスの低下を抑制するために、比透磁率を数百程度に制御する必要がある。一般に、透磁率制御と低損失の両立は困難であるといわれており、本デバイスにて更なる高性能化を達成するためには、そのトレード・オフの関係を克服しなければならない。また、機器内に組み込まれている磁気デバイスは、他のデバイスと比較すると依然大きな体積を有しており、小型化のボトルネックとなっている。すなわち、更なる小型・軽量化も課題の一つとなっている。

先述したように小電力用透磁率制御型軟磁性コアは、近年のDC-DCコンバータの大電流化に対応するため、フェライトコアよりも飽和磁化の高い圧粉コアが主流となりつつある。圧粉コアは、磁性粉の形状の不均一に起因する、①ヒステリシス損失の増加や②インダクタンスの非線形性による回路設計の煩雑化を招いている。ヒステリシス損失は

駆動周波数に比例するため、駆動周波数の増加により著しく損失が増加することになる。また、インダクタンスの非線形性は、直流重畳磁界（動作点の磁界に対応）がCPUの負荷状態により大きく変動するため、回路設計および実使用時に不利な要素となっている。

申請者らは、透磁率制御と低損失を両立することで、既存材料の特性を凌駕し、更にデバイスサイズを半分以下に低減可能な新規高性能材料の開発を目的とし、これまで研究を行ってきた。その中で、比較的高い飽和磁化を有する非晶質Fe-Cu-Nb-Si-B金属薄帯に、応力下で熱処理を施すことで、試料内にナノ結晶構造の構築と一軸異方性を形成し、それをトロイダル成形した磁気コアを提案した。このコアは、ギャップ付きフェライトコアと比較しコアサイズを1/3程度に減少しつつ、透磁率制御と低損失を同時に実現した。その損失値は理論限界の低損失を示し、300℃程度の高温下まで一定の透磁率を示すことから、動作温度に依存しない回路設計も可能であることを明らかとした（文献[1-4]）。

以上のように、申請者らの提案したコアは小型化を達成し、更に優れた磁気特性を示したが、①工業的に不利な大きな張力（数百MPa）の利用、②結晶化時の試料の脆化性によるコアの大量生産の困難性、等の実用面での課題を有していたため、これら欠点の克服が強く望まれていた。

## 2. 研究の目的

背景で述べたように、申請者らの提案したコアの作製には、非晶質Fe-Cu-Nb-Si-B金属薄帯に応力下で熱処理を施し、試料内にナノ結晶構造の構築と一軸異方性を形成する必要がある。コアの透磁率は、誘導異方性の大きさに依存し、誘導異方性の大きさは熱処理時の印加応力の大きさに依存する。応力熱処理により誘起される異方性は、応力熱処理により固着化されたFe-Si結晶の格子歪みとFe-Si結晶の持つ負の磁歪の作用によってうまく説明できる（文献[5,6]）。すなわち、応力熱処理により固着化される結晶歪みの大きさが同じであれば結晶相の磁歪が大きいほど、大きな異方性が期待できると考えられる。たとえば、結晶相Fe-Si（約-2 ppm）を約800倍の磁歪を有するSmFe<sub>2</sub>に（約-1600 ppm）置換できれば、単純計算で1/800に熱処理時の応力を低減できると予測される。

トロイダルコアへの応用の際は、コア成形時に曲げ歪みが生じるため、磁気弾性効果による磁気特性劣化の観点から、熱処理後の試料の実効的な磁歪は0が理想である（文献[3]）。磁歪の大きなSmFe<sub>2</sub>を析出させた場合、コア成形時に軟磁気特性が劣化することが予測される。これに対しては、結晶粒の微細化が有効と考えた。軟磁気特性Terfenol-Dのような

磁歪の大きな材料でも、結晶粒径をナノスケールに微細化すれば、粒子間に交換結合が強く働き、劇的に保磁力が低減する(文献[7])ことを考慮すれば、超磁歪ナノ結晶を構築することで軟磁性の劣化は抑制できると予想される。また、正の磁歪を有する非晶質相(約+20 ppm)を多く残存させる(結晶化割合を制御する)ことで、結晶相の負の磁歪と相殺させ実効的な磁歪を小さくできると考えられる。非晶質を多く残存させることは、試料の脆化抑制にも効果的であり、低応力化と脆弱性の克服が同時に期待できると考えた。

以上のような考えのもと、本課題では、提案してきたコアの生産性の改善のため、長尺薄帯熱処理時の印加応力を低減すべく、超磁歪相を活用した新規透磁率制御材料を開発することを目的とした。

### 3. 研究の方法

チョークコイルへの応用を鑑みると、低透磁率と低磁気損失を両立する必要がある、励磁方向に対して垂直な方向に異方性を付与する必要がある。そのためには、結晶相は負の磁歪、残存非晶質相は正の磁歪を有する必要がある(文献[5,6])。そこで、負の大磁歪を有する $\text{SmFe}_2$ 相を析出させることを鑑み、従来の研究で用いてきた $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{15.5}\text{B}_7$ にSmを添加した試料を作製することにした。従来の研究で、異方性は非晶質からナノ結晶化する際に大きく誘導されることがわかっている(文献[1,8])。本点を踏まえ、単ロール法にてSm-Fe-Cu-Nb-Si-B非晶質薄帯を作製し、熱処理によってナノ結晶化させる手法を採用することにした。

$\text{Sm}_x\text{Fe}_{73.5-x}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{15.5}\text{B}_7$ にて、 $x=0\sim 10$ までSm組成を変化させた急冷薄帯を単ロール法にて作製した。ロール速度は30～50 m/sまで変化させた。作製した薄帯に、真空中熱処理、ガス雰囲気中熱処理、パルス熱処理、応力下パルス熱処理を施した。各熱処理に関しては、研究成果の部分であらためて記載する。熱処理には、定格出力8 kWの赤外線加熱炉を用いた。

As-castおよび熱処理後の試料の磁気特性の評価は、B-H ループトレーサ、VSM(振動試料型磁力計)を用いた。結晶化温度は、示差走査熱量計ならびに熱磁気特性から判断した。結晶構造ならびに析出相は、XRDならびに熱磁気特性から評価した。組成の評価には、SEM-EDXを用いた。

### 4. 研究成果

従来の研究より、異方性は非晶質からナノ結晶化する際に大きく誘導されることがわかっている(文献[1,8])。すなわち、低応力で大きな異方性を得るには、As-castの状態ですべてに非晶質状態である必要がある。As-cast試

料の状態は、ロール速度(急冷速度)に強く依存するため、まずは、様々なロール速度で薄帯を作製し、その結晶化状態を評価した。その結果、Sm置換量にもよるが、 $x=0\sim 10$ の範囲ではロール速度が45 m/s以上で完全に非晶質状態が得られることを確認した。示差走査熱量計や熱磁気特性による結晶化温度解析の結果、 $x=0\sim 10$ の置換範囲では、450～550 °C付近が結晶化温度であることがわかった。この結果ならびに希土類元素であるSmが非常に酸化しやすいことを踏まえ、まずは、450～650 °Cの範囲で熱処理温度を変化させ、30分昇温で30分保持する計1時間の真空熱処理を施し、X線解析および熱磁気特性から析出相を評価することにした。その結果、熱処理温度が500 °C以下では、十分な結晶化は確認できなかった。また、650 °Cの熱処理では大きな保磁力が観測された。550 °C程度の温度で熱処理を施した場合は、 $x=0\sim 4$ の置換範囲ではFe-Si相の析出が、 $x>6$ ではFe-Si相以外の磁性結晶相が析出した。 $x=4\sim 6$ の範囲では、Fe-Si相とFe-Sm系化合物と考えられる磁性相の析出が確認された。以上の検討から、 $\text{Sm}_x\text{Fe}_{73.5-x}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{15.5}\text{B}_7$ において $x=4\sim 6$ 付近で550 °C程度の熱処理を施すことで、Fe-Si相とFe-Sm系化合物相を共析させることができる可能性が判明したが、本課題の目標実現には、試料に応力を印加した状態での熱処理が必要となるため、真空中下での熱処理の適用は更なる生産性の低下を招くことになる。そこで、不活性( $\text{Ar}$ ,  $\text{N}_2$ )ならびに還元性ガス( $\text{H}_2$ )雰囲気下での熱処理が可能な熱処理炉を構築し、熱処理の雰囲気の評価を行った。 $\text{Sm}_x\text{Fe}_{73.5-x}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{15.5}\text{B}_7$ にて、450～650 °C、30分昇温で30分保持の熱処理を施し、X線解析および熱磁気特性から析出相を評価した。550 °C程度の熱処理では、 $x$ が8以上で結晶化が確認できたが、大きな保磁力が観測された。また、 $x$ が2～6の試料では、結晶化には真空中下での熱処理よりも若干高い温度である600 °C程度が必要であった。さらに、雰囲気ガス種に対する大きな依存性は観測されなかった。 $x$ が2～6の結晶化した試料ではSm-Fe系化合物と考えられる析出相が観測されたが、優れた軟磁気特性は得られなかった。これは、試料の酸化抑制が不十分であることや結晶粒の微細化が不十分でありSmとFeの化合物の大きな磁歪が、軟磁気特性を劣化させたためと考えられる。そこで、結晶粒の微細化を鑑み、パルス熱処理を検討することにした。定格出力8 kWの赤外線加熱炉を用い、加熱炉のON時間を0.5～10 sec、出力を40～90%の間で変化させ、無応力下のパルス熱処理を検討した。結果として、 $x=2$ の試料で、赤外線加熱炉出力75%、ON時間5 secで熱処理を施した時、大きな保磁力の増加を観測することなく、印加応力低減に有効

となるSmFe<sub>2</sub>相を析出させることができた。本結果を受け、長尺試料に応力下熱処理を適用したが、Sm添加による脆性の増加による試料の破断や短時間熱処理による異方性誘導状態の不均一性により、優れた透磁率制御コアの実現に不可欠である「完全な一軸異方性を持った長尺薄帯の実現」が達成困難であり、本点の克服が課題となった。

○参考文献

- (1)T. Yanai, M. Yamasaki, K. Takahashi, M. Nakano, H. Fukunaga and Y. Yoshizawa; "Investigation of Development Process of Creep-Induced Anisotropy in Nanocrystalline Fe73.5Cu1Nb3Si15.5B7 Ribbon for Mass Production.", SMM 16/Special Issue of Conference Proceedings, 2, pp. 737-741 (2004).
- (2)H. Fukunaga, H. Tanaka, T. Yanai, M. Nakano and J. M. Song; "Gapless Fe-based metallic cores with low permeability.", Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 254-255, pp. 519-521 (2003).
- (3)H. Fukunaga, T. Yanai, H. Tanaka, M. Nakano, K. Takahashi, Y. Yoshizawa, K. Ishiyama and K. I. Arai; "Nanostructured Metallic Cores With Extremely Low Loss and Controlled Permeability.", IEEE Transactions on Magnetics, 38, pp. 3138-3140 (2002) .
- (4)H. Fukunaga, H. Tanaka, T. Yanai, M. Nakano, K. Takahashi, Y. Yoshizawa, K. Ishiyama and K. Arai; "High Performance Nanostructured Cores for Choke Coils Prepared by Using Creep Induced Anisotropy.", Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 242-245, pp. 279-281 (2002).
- (5)M. Ohnuma, K. Hono, T. Yanai, M. Nakano, H. Fukunaga and Y. Yoshizawa; "Origin of the magnetic anisotropy induced by stress annealing in Fe-based nanocrystalline alloys.", Applied Physics Letters, 86, pp. 1-3 (2005).
- (6)M. Ohnuma, K. Hono, T. Yanai, H. Fukunaga and Y. Yoshizawa; "Direct evidence for structural origin of stress-induced magnetic anisotropy Fe-Si-B-Nb-Cu nanocrystalline alloys.", Applied Physics Letters, 83, pp. 2859-2861 (2003).
- (7)H. Fukunaga and T. Yamaguchi; "Improvement in soft magnetic properties using magnetostriction", Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 316, Issue 2, 2007.9, pp.e632-e635.
- (8)T. Yanai, H. Tanaka, K. Takahashi, M. Nakano and H. Fukunaga; "Advancement in Fabrication Process of Fe-Cu-Nb-Si-B Thin Sheets with Creep-Induced Anisotropy for Choke Cores.", Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 242-245, pp. 276-278 (2002).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

なし

6. 研究組織

(1)研究代表者

柳井 武志 (YANAI TAKESHI)

長崎大学・工学研究科・助教

研究者番号：30404239

(2)研究分担者

( )

研究者番号：

(3)連携研究者

( )

研究者番号：