

高 B_s Fe 基ナノ結晶軟磁性合金の開発

太田元基¹⁾ 吉沢克仁²⁾

1. 緒言

近年、地球環境の保全、限られた資源の有効活用が重要視されるようになり、省エネルギー・省スペース化が極めて重要な課題となっている。トランスやインダクタ(チョークコイル)などのコイル部品に対しても、エネルギー損失低減・小型化などの要求が強く、これらのコイル部品の磁心(コア)に使用されている軟磁性材料の高飽和磁束密度(高 B_s)、低磁心損失化などさらなる高性能化が望まれている。現在、軟磁性材料の主流である電磁鋼板は高 B_s であるため⁽¹⁾、変圧器、チョークコイル、リアクトル、モーター等に広く用いられており、優れた鉄芯用材料として認知されているが、鉄損が Fe 基アモルファス合金や Fe 基ナノ結晶合金の 3~10 倍と大きく、改善が求められている。一方、Fe 基アモルファス合金や Fe 基ナノ結晶合金の B_s は 1.7 T 以下であり⁽²⁾⁻⁽⁵⁾、高 B_s 低損失を満たすような Fe 基軟磁性合金の開発が望まれてきた。本報告では、1.8 T 以上の B_s と低損失を実現した Fe 基ナノ結晶軟磁性合金を紹介する。

2. 開発コンセプト

Fe とメタロイド元素の組み合わせで得られる従来の Fe 基アモルファス合金では、配位数や平均最隣接原子間距離の兼ね合いにより B_s の上限は 1.7 T に及ばないことが結論付けられている⁽²⁾。よってアモルファス合金の B_s の増大には、電子密度が増加するように置換原子を選択する必要がある。この観点からは Fe を Co で部分置換することが有効であり⁽²⁾、1.8 T の B_s が得られているが、Co は高価であるた

めコストを考慮すると Co フリーの Fe 基材料の開発が望まれている。そこで、 B_s が高い高 Fe 濃度結晶合金の軟磁気特性の改善を検討した。Fe 基ナノ結晶合金は実効的な結晶磁気異方性が低減されるため、低 H_c 、高透磁率、低鉄損が得られることが知られている⁽⁴⁾⁻⁽⁶⁾。しかし、これら従来の Fe 基ナノ結晶では結晶粒成長を抑制してナノ結晶化を実現するために Nb, Zr 等を多く含むため、 B_s は 1.7 T 以下となる⁽⁴⁾⁽⁵⁾。そこで、新規の高 B_s 軟磁性材料の開発にあたって、磁性の担い手である Fe の含有量が高く、かつ、ナノ結晶相の軟磁気特性を活かした合金の開発を目指した。

図 1 には従来のナノ結晶合金、アモルファス合金の熱処理による結晶化過程と開発材のナノ結晶化過程の模式図を示す。

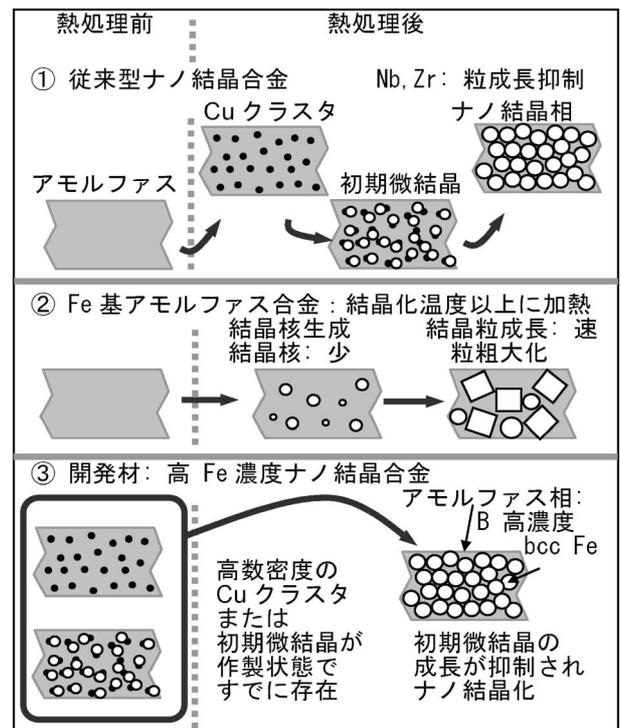


図 1 熱処理による結晶化過程の模式図。

* 日立金属株式会社
 先端エレクトロニクス研究所: 1) 研究員 2) 主管研究員
 Development of High B_s Fe Based Nanocrystalline Soft Magnetic Alloys; Motoki Ohta, Yoshihito Yoshizawa (Hitachi Metals, Ltd.)
 2008年11月4日受理

①に示すように、従来のナノ結晶材ではアモルファス相をスタートとし、熱処理過程で、Cu クラスタを核生成サイトとして、初期微結晶が析出する。結晶化に伴い残留するアモルファス相のFe濃度は相対的に下がりNbやZr濃度は上がる。そのため、残留アモルファス相が安定化され、結晶粒の成長が抑制され、ナノ結晶相が得られる。しかし、高 B_s 化のためには原子量の大きいNbやZrなどを含まない合金でナノ結晶化を実現する必要がある。②のようにこれらの元素を含まず、Cuも含まないFe高濃度のアモルファス合金を熱処理すると、核が不足し、結晶粒成長が進み、結晶粒は粗大化してしまう。つまり、ナノ結晶化にあたっては、結晶化の前に核が高密度で均一に生成していることと、結晶粒の成長が抑制されることがポイントとなる。そこで、我々は、CuとFeの混合熱が正であることに着目し、一定以上にCuを含有した溶湯を液体急冷製造することにより、冷却過程でアモルファス相中にCuのクラスタリングが起き、③のように製造直後の合金で初期微結晶の核生成サイトが均一・高密度に得られると考えた。さらに、bcc Fe相中にはホウ素(B)はほとんど固溶できないため、初期微結晶が一斉に粒成長することにより、ナノ結晶粒周辺の残留アモルファスマトリックス相のB濃度がナノ結晶相の体積分率の増加とともに高まる。従来材ではNbやZr等が担っていたアモルファス相の安定化の役割を高B濃度の残留アモルファス相が果たし、結晶粒の成長が抑制されて、ナノ結晶組織が得られる。そこで、FeとBの比を考慮し、共晶付近のB濃度としたFe-BおよびFe-Si-Bアモルファス合金系にCuを置換し、液体急冷法により、薄帯合金を製造し、結晶化温度以上で熱処理を施すことによりナノ結晶相を出現させ、高 B_s かつ低保磁力 H_c ・低鉄損のFe基ナノ結晶軟磁性材料の開発を行った⁽⁷⁾⁻⁽⁹⁾。

3. 開発材の磁気特性

(1) 軟磁気特性

図2には開発材の概観を示す。試料の厚さは約22 μm であり、連続した薄帯が得られる。図3に390°Cで熱処理を施した $(\text{Fe}_{0.85}\text{B}_{0.15})_{100-x}\text{Cu}_x$ 合金の保磁力 H_c のCu濃度 x 依存性を示す。 x とともに H_c が減少しており、核の増加と平均結晶粒径の減少が予想される。 x が1.0~1.4%の間で H_c が2桁減少し、 x が1.4%以上で $H_c < 8 \text{ A/m}$ となる。図4には開

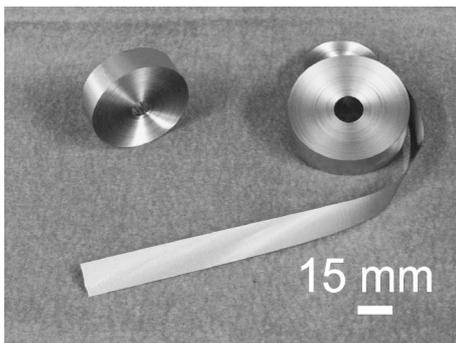


図2 開発材の概観.

発したFe-Cu-Si-B合金の単板試料および方向性電磁鋼板、Fe基アモルファス合金の50 Hzにおける鉄損の磁束密度依存性を示す。また、表1にこれらの合金の飽和磁束密度 B_s 、80 A/mにおける磁束密度 B_{80} 、 H_c 、電気抵抗率 ρ および50 Hz、1.5 Tに置ける鉄損 $P_{15/50}$ を示す。Siを置換したFe-Cu-Si-Bナノ結晶合金は表に示すように、Fe-Cu-Bナノ結晶合金よりも低磁場での軟磁気特性が向上し、高い B_{80} を示す。この合金は、1.7 Tまで、方向性電磁鋼板の約半分の鉄損を示す。Fe基アモルファス合金は B_s が1.6 T程度であり、 B が1.55 Tを超えると鉄損が増加し、それ以上の磁束密度で動作させることはできないが、開発材は B_s が1.85 Tと高いため、設計磁束密度を1.7 T程度まで高くすることができ、Fe基アモルファス合金よりも鉄芯のサイズを小さくできる。

(2) ミクロ構造

表中のFe-Cu-B合金とCuを含まないFe-Bアモルファ

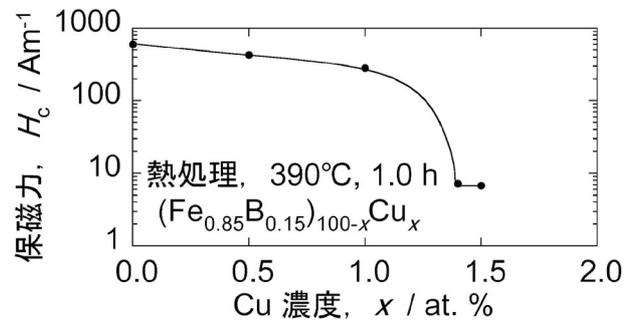


図3 $(\text{Fe}_{0.85}\text{B}_{0.15})_{100-x}\text{Cu}_x$ 合金の H_c のCu濃度 x 依存性.

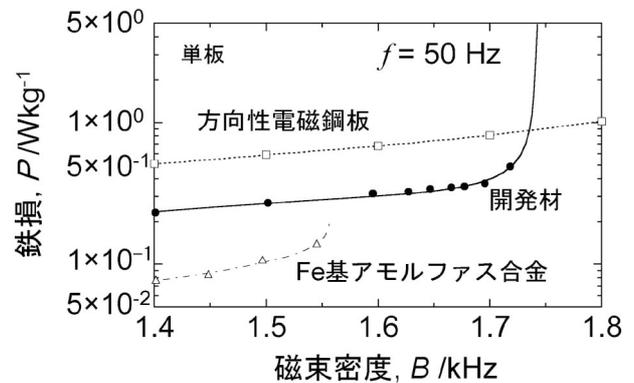


図4 開発材および方向性電磁鋼板、Fe基アモルファス合金の鉄損 P の B 依存性.

表1 開発材と従来材の特性の比較.

材料	B_s (T)	B_{80} (T)	H_c (A/m)	ρ ($\mu\Omega\text{m}$)	$P_{15/50}$ (W/kg)	
開発材	$\text{Fe}_{83.7}\text{Cu}_{1.5}\text{B}_{14.8}$	1.82	1.50	7.0	0.7	0.38
	$\text{Fe}_{82.7}\text{Cu}_{1.3}\text{Si}_2\text{B}_{14}$	1.85	1.71	6.5	0.7	0.30
	$\text{Fe}_{80.6}\text{Cu}_{1.4}\text{Si}_5\text{B}_{13}$	1.80	1.70	5.7	0.8	0.26
従来材	方向性電磁鋼板	2.03	1.80	8.0	0.5	0.59
	Fe基アモルファス合金	1.57	1.53	1.5	1.2	0.10

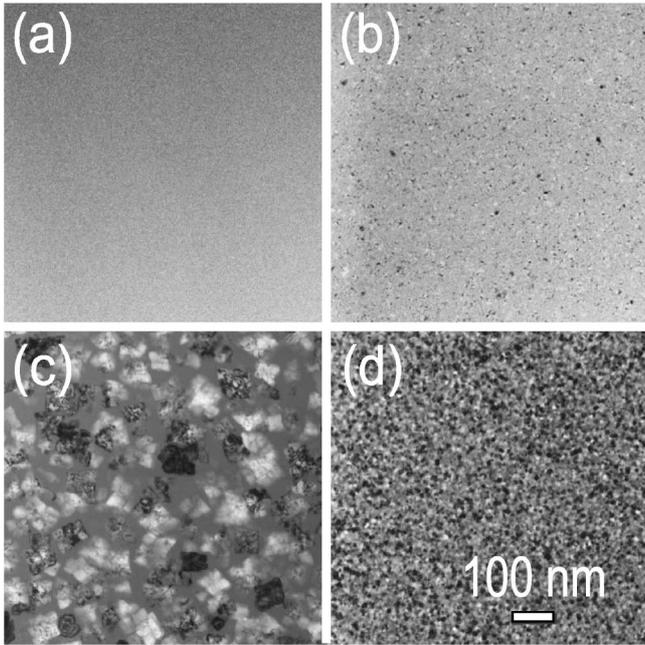


図5 TEMによるマイクロ構造, (a) Cuが0.0%の作製状態の試料, (b) Cuが1.5%の作製状態の試料, (c) 390°C, 1hの熱処理を施したCuが0.0%の試料, (d) 390°C, 1hの熱処理を施したCuが1.5%の試料(本開発材).

ス合金の熱処理の効果をマイクロ構造の観点から調査するために、作製状態および390°C, 1hの熱処理を施した試料のTEM像を図5(a)~(d)に示す。図5(a)のようにCu 0.0%材の作製状態では、結晶粒の存在が確認されず、完全なアモルファス相であると判断される。一方、図5(b)に示すようにCuを含む合金の作製状態では、アモルファス相が主相となるが、その中に1 μ m四方に数千個のサブナノ~数ナノメートルオーダーの微結晶(初期微結晶)が析出している。これらの試料に390°C, 1hの熱処理を施した試料のTEM像を図5(c), (d)に示す。いずれの試料でもbcc Feの析出が観測されるが、初期微結晶の有無により、マイクロ構造は大きく異なり、初期微結晶が存在しない場合は、50~100 nmの結晶粒が、アモルファス相中に析出する。これに対して、Cuを1.5%含む試料では20 nm以下の微細なbcc Fe結晶粒が高密度に生成し、結晶相の体積分率も高くなる。本合金ではナノ結晶の周囲でCuクラスターが観察されており、Cuクラスターが核生成サイトを与えていることが確認された⁽¹⁰⁾。ナノ結晶合金系では、結晶粒が高密度に存在する場合、結晶粒径の減少とともに実効的な結晶磁気異方性が低減することが知られている⁽⁶⁾。従来のNbやZr等の結晶粒成長を抑制する効果がある元素を含むFe基ナノ結晶合金とは異なり⁽¹¹⁾、Fe高濃度の合金系において、優れた軟磁気特性を発現するナノ結晶組織を実現するためには作製状態のアモルファスリボンに高密度の核生成サイト(初期微結晶)が存在していることが必須であり、本合金系の場合はCuを添加することによりナノ結晶組織と優れた磁気特性が実現されている。

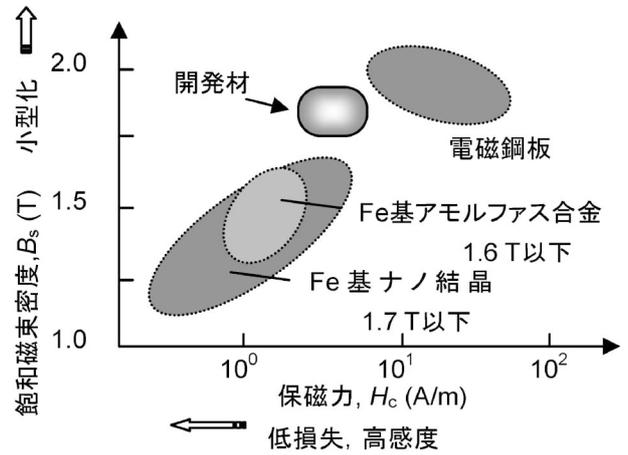


図6 Fe基軟磁性材料の飽和磁束密度 B_s と保磁力 H_c の関係の模式図。

4. 将来性

図6には各種Fe基軟磁性材料の B_s と H_c の関係を示す。本合金は、電磁鋼板よりも低 H_c ・低鉄損であり、Fe基のアモルファス合金や従来型のナノ結晶合金よりも、高い B_s を有する。開発材は、Coだけでなく、従来のナノ結晶材に必要不可欠であったNbやZrを含まず、製品コストを大幅に低減できる。開発材は省エネルギー・省スペースの実現に有望な環境調和型の新材料と位置づけられ、リボン材のみならず粉末材への応用も期待できる。

5. 特許

特開2007-270271等国内外出願16件。

文献

- (1) D. F. Binns, A. B. Crompton and A. Jaberansari: IEE Proc. C. Gen., Trans. and Distrib., **133**(1986), 451.
- (2) 増本 健, 深道和明編: アモルファス合金 その物性と応用, アグネ, (1981).
- (3) J. A. Vaccari: Design Eng., **52**(1981), 53.
- (4) Y. Yoshizawa, S. Oguma and K. Yamauchi: J. Appl. Phys., **64**(1988), 6044.
- (5) K. Suzuki, N. Kataoka, A. Inoue, A. Makino and T. Masumoto: Mater. Trans., JIM, **31**(1990), 743.
- (6) G. Herzer: Handbook of Magnetic Materials, ed. K. H. J. Buschow (Elsevier, Amsterdam, **10**(1997), 415.
- (7) M. Ohta and Y. Yoshizawa: Jpn. J. Appl. Phys., **46**(2007), L477-479.
- (8) M. Ohta and Y. Yoshizawa: Mater. Trans., **48**(2007), 2378-2380.
- (9) M. Ohta and Y. Yoshizawa: Appl. Phys. Lett., **91**(2007), 062517.
- (10) Y. Chen, 大久保忠勝, 宝野和博, 太田元基, 吉沢克仁: 日本金属学会秋期大会概要集(2007), 229.
- (11) K. Hono and D. H. Ping: Materials Characterization, Elsevier, New York, (2000), 203.