研 究

磁性皮膜で被覆した圧粉磁心の磁気特性評価

黄 晟煥, 服部 毅, 金子 裕治

(株) 豊田中央研究所, 〒480-1192 長久手市横道 41-1.

Magnetic Properties of Iron Core made from Powders Coated with Magnetic Insulative Films

Junghwan HWANG, Takeshi HATTORI and Yuji KANEKO

Toyota Central R&D., Inc., 41-1 Yokomichi, Nagakute 480-1192, Japan.

Received August 29, 2014

ABSTRACT

In order to improve the permeability μ and magnetic flux density B_s of powder magnetic core, we characterized the iron powder compact coated with spinel ferrite particles. Their μ and B_s are higher than those of iron powder compact coated with nonmagnetic insulative films, having the same resistivity; B_{2k} of 1.4 T, density of 7.79 Mg/m³, and resistivity of 70 $\mu\Omega \cdot m$ are achieved.

KEY WORDS

magnetic insulative film, spinel ferrite, powder magnetic core, permeability, magnetic flux density

1 緒 言

圧粉磁心は、表面を絶縁皮膜でコーティングした磁性粉末を成形して作製されているので、(1)等方的な磁気特性による3次元的な磁気回路設計が可能であること、(2)比抵抗が高いため、高周波域で渦電流損失が低いことなどの特長を有する。その特長を活用し、電子機器用のチョークコイル¹⁻³⁾やインジェクタの噴射弁⁴⁾、モータ^{5,6)}などへの応用が盛んである。然しながら、現状の圧粉磁心は、その磁束密度や強度が電磁鋼板に比べて低い問題がある。通常の圧粉磁心は粒径100 μm 前後の磁性粉末の集合体であり、粉末表面の絶縁皮膜にはSi樹脂やリン酸塩皮膜など、非磁性皮膜が被覆されているので、粉末内には反磁界の影響による磁氣的抵抗が生じ、磁界に対して磁化されにくく、高磁束密度が得られにくい。それに対して、磁性を有する絶縁皮膜は粉末間の磁気抵抗が緩和され、磁化されやすく、透磁率向上が期待できる。高い比抵抗値を有するスピネル型フェライトを絶縁皮膜へ導入する研究については、100 kHz以上の高周波域での圧粉磁心の透磁率を向上させた研究例があり、例えば、阿部ら^{7,8)}はスピネル型フェライト MFe_2O_4 ($M = Ni, Zn, Fe, Mn$ など) の高透磁率、高電気抵抗の特性を利用し、10 μm 以下の金属微粒子表面に数十 μm 以上のスピネル型フェライト皮膜をフェライトメッキ法^{9,10)}で被覆して、100 kHz以上の高周波対応の軟磁性材料を開発して

いる。また廣田ら^{11,12)}は、大きなせん断応力を付与可能なメカノフュージョンを用いて粉末表面にフェライト粉を被覆した粉末を作製した後、成形、パルス通電焼結を施し、密度6 Mg/m³程度のコンポジットを作製した。

然しながら、これらの研究は100 kHz以上の高い周波数領域での使用が前提となるため、微粉表面には厚い皮膜をつけており、その為に飽和磁化 B_s が1.5 T以下の値しか得られていない。それに対して、本研究のねらいは、使用周波数が数百 Hz の低い領域における絶縁皮膜の磁性化と高密度成形の組合せによる圧粉磁心の高透磁率化と高磁束密度化の両立である。本研究では、透磁率(ここでは、磁束密度 B_{2k} ($H = 2000$ A/m での磁化)¹³⁾)に及ぼす絶縁皮膜の磁性の有無、磁性皮膜の飽和磁化および鉄粉粒径などの影響を計算で求めた。その後、純鉄球状粉とスピネル型フェライト粉を混合して、表面にフェライト皮膜を生成させた純鉄粉を成形して圧粉体を作り、特性評価を行った。その計算値と実験値を比較評価して磁性皮膜の効果について検証し、磁性絶縁皮膜による圧粉磁心の絶縁化と高飽和磁化への可能性について検討した。

2 実験方法

2.1 磁束密度の計算

磁束密度の計算は、河瀬ら¹⁴⁾が提案したモデルを用いて、

磁界の強さにおける磁束密度を計算した。その圧粉成形体のモデルと磁束密度 B の計算式をFig. 1に示す。粉末粒径(l_2)とギャップとなる絶縁皮膜の膜厚(g)で構成される粒子1個に生じる磁束密度を計算する。計算式に使ったパラメータの数値は次のように求めた。鉄粉の磁気抵抗率(ν)には、被覆処理していない原料粉の鉄粉を1568 MPaの成形圧力で成形したリング試験片で求めた磁束密度 B_{2k} の値である1.45 Tを用いた。絶縁皮膜の磁気抵抗率(ν_0)は絶縁皮膜の種類により異なる値を用いた。まず非磁性皮膜の場合は、真空中の磁気抵抗率を用いた。次に磁性皮膜の場合は、スピネル型フェライトの磁化が2000 A/mで飽和すると見なすことを前提に、スピネル型フェライトの飽和磁化の値をそのまま磁気抵抗率(ν_0)として用いた。

2.2 試験片作製および特性評価の条件

Fig. 2に試験片の作製手順を示す。原料磁性粉末は、粒度分布106~212 μm を有する純鉄ガスアトマイズ球状粉100 gを用いた。その原料磁性粉末の表面に被覆するスピネル型フェライト粉は、粒径は1 μm 以下の高純度化学製の $\text{Mn}_{0.5}\text{Zn}_{0.5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ を用いた。そのフェライト粉の飽和磁化を測定した結果、0.2 Tであった。スピネル型フェライト粉を原料磁性粉末に対して0.1~1.0 mass%になるよう秤量し、原料磁性粉末と一緒に500 mlのポリ瓶に投入後、ポリ瓶を速度300 rpmの回転ミルを用いて被覆処理を行った。均一に被覆させるため、混合時間は100 hとした。一方、比較材である非磁性絶縁皮膜としてリン酸塩皮膜の被覆粉を用いた。100 ml ビーカーに同じ原料磁性粉末100 gを入れた後、リン酸塩溶液¹⁵⁾ (SrO , H_3BO_3 , H_3PO_4)を

Fig. 1 The analyzed model and calculation formula of magnetic flux density B for powder magnetic core.

Fig. 2 Experimental procedure of powder magnetic core using magnetic insulating film.

1.5:1.0:4.0のモル比となるよう調製)を投入し、スパーテルで軽く攪拌後、523 Kの乾燥炉に入れて、大気中で30 min乾燥後、解粉して作製した。

試験片形状は $\phi 39-\phi 30 \times t 5$ mmのリング状とした。その成形には、ステアリン酸リチウムを用いた金型潤滑温間成形^{16,17)}を用いた。金型温度を423 Kに加熱保持した後、1568 MPaの圧力で成形した。なお、成形時に内部潤滑剤および樹脂は添加していない。その後、成形体密度、比抵抗および磁気特性の評価を行った。成形体密度は、成形体の重量と形状から測定した寸法密度で、比抵抗は、アドバンテスト製のマイクロームメータ(型番: R6561)を用いた4端子法で測定した。静磁場特性の測定にはリング試験片に、 $\phi 0.5$ mmの被覆銅線を検出80ターン、励磁240ターン巻いて測定試料とした。測定装置は東英工業製の直流自記磁束計TRF-5を使用した。なお、本文中で B_{2k} は、X kA/mで測定された磁束密度を示す。被覆粉の表面および圧粉体の断面を走査型電子顕微鏡(SEM)で観察した。

3 結 果

3.1 計算で求めた絶縁皮膜の膜厚における磁束密度 B_{2k} の傾向

絶縁皮膜の非磁性化と磁性化による影響を調べるため、非磁性皮膜と飽和磁化0.1 Tを有する磁性皮膜における絶縁皮膜の膜厚と磁束密度 B_{2k} の関係の計算結果をFig. 3に示す。粉末粒径は100 μm とした。その結果、同じ膜厚において、飽和磁化が0.1 T程度の磁性皮膜でも非磁性皮膜に比べて磁束密度 B_{2k} が増加することがわかった。非磁性皮膜の代わりに磁性を持つ皮膜を導入することで、圧粉磁心の磁束密度の向上の可能性があることが分かった。

Fig. 4に絶縁皮膜の膜厚と磁束密度 B_{2k} の関係における、磁性皮膜を被覆した粉末の粒径の影響を示す。膜厚が厚くなると磁束密度 B_{2k} が低下して、同じ膜厚においては粉末粒径が大きいほど磁束密度 B_{2k} が増加した。つまり、圧粉成形体に占める鉄粉の割合が多いほど磁束密度 B_{2k} は増加することが確認

Fig. 3 Effect of magnetism of insulating film.

できた。

Fig. 5には磁性皮膜の飽和磁化と膜厚による磁束密度 B_{2k} の変化を示す。粉末粒径は100 μm とした。高い飽和磁化の磁性体を絶縁皮膜へ導入する方が、磁束密度 B_{2k} が向上しており、高磁束密度化に有利であることが計算で認められた。

3.2 スピネル型フェライト被覆粉の特性

前述した計算結果を検証するため、スピネル型フェライト粉を被覆した鉄粉で成形したリング試験片の特性評価を行った。磁性絶縁皮膜の膜厚と各特性(密度、透磁率、磁束密度 B_{2k} および比抵抗)の関係を調べるため、まず、スピネル型フェライト粉の混合量によって生じる絶縁皮膜の膜厚を測定した。皮膜厚さの測定にはオージェ電子分光分析(AES)を用いた。被覆粉の表面から皮膜の厚さ方向に酸素の分布を測定し、表面の酸素強度の50%になる厚さをフェライト皮膜の膜厚とした。測定値は、粉末1個当たり2箇所を、粉末2個で分析して求めた値の平均値である。Fig. 6にスピネル型フェライトの被覆粉のオージェ電子分光分析の結果と断面SEM像を示す。

Fig. 4 Effect of particle diameter.

Fig. 5 Effect of B_{max} of magnetic insulating film.

Fig. 6 Measurement of spinel ferrite film thickness. (a) Analysis result of AES depth spectrum, and (b) SEM image of cross section of powder.

Fig. 7 The relation between addition quantity of spinel ferrite powders and film thickness (*Film thickness is analyzed by AES depth spectrum).

Fig. 6(a)で示す表面の酸素強度52000の50%になる酸素強度26000の膜厚が約100 nmとなり、Fig. 6(b)の被覆粉の断面を直接観察して測定した膜厚100 nmとほぼ一致した。Fig. 7にスピネル型フェライトの混合量とオージェ電子分光分析で測定した絶縁皮膜の膜厚の関係を示す。0.1 mass%のスピネル型フェライトの混合量で約50 nm、0.5 mass%を混合すると約200 nmの膜厚を示した。

Fig. 8に磁性絶縁皮膜の膜厚における密度、比抵抗、磁束密度 B_{2k} および磁束密度 B_{20k} の変化を示す。絶縁皮膜が厚くなると、比抵抗が増加し絶縁性は向上するが、密度と磁束密度 B_{2k} 、 B_{20k} が低下した。被覆粉の膜厚50 nmの場合、比抵抗=70 $\mu\Omega \cdot m$ 、密度=7.79 Mg/m^3 、磁束密度 B_{2k} =1.4 T、磁束密度 B_{20k} =1.96 T、また膜厚100 nmの場合、比抵抗=100 $\mu\Omega \cdot m$ 、密度=

7.78 Mg/m^3 、磁束密度 B_{2k} =1.3 T、磁束密度 B_{20k} =1.95 Tの圧粉体が得られた。この結果から、スピネル型フェライトの絶縁皮膜への適用で高比抵抗と高磁束密度の特性が得られることが確認された。

Fig. 9にスピネル型フェライト被覆粉の表面状態(Fig. 9(a))と圧粉体断面(Fig. 9(b))のSEM像を示す。被覆表面が殆ど均一に被覆されており、断面像からも緻密で均一皮膜が観察された。スピネルフェライト粉を単純混合によって被覆しても、均一に被覆が可能で、高磁束密度と高比抵抗を両立する圧粉体得られることが分かった。

3.3 磁性絶縁皮膜による高磁束密度化の効果

磁性皮膜と非磁性皮膜の圧粉磁心の磁束密度 B_{2k} の実験値を計算値と比較するため、原料磁性粉末のみ、およびリン酸塩皮膜を被覆した被覆粉を同じ1568 MPaの成形圧力でリング試験片を作製した。Fig. 10に磁性および非磁性絶縁皮膜の膜厚に対する磁束密度 B_{2k} の実験値と計算値をプロットして示す。非磁性皮膜であるリン酸塩皮膜の膜厚は被覆粉の断面SEM像から直接測定し、リン酸塩皮膜の膜厚が約100 nmとなることがわかった。そのリン酸塩皮膜を被覆した被覆粉の断面SEM像をFig. 11に示す。磁性皮膜と非磁性皮膜の圧粉磁心の磁束密度 B_{2k} は、膜厚が厚くなると値が低下するが、非磁性絶縁皮膜に比べて磁性皮膜の磁束密度 B_{2k} が高い値を示した。また磁性絶縁皮膜における膜厚100 nmまでの磁束密度 B_{2k} の変化傾向が計算値と実験値でほぼ一致していることがわかる。非磁性絶縁皮膜でも膜厚100 nmにおける実験値と計算値が良く一致した。

しかし、被覆粉の膜厚200 nm以上、つまり圧粉体の膜厚ではその2倍に近い400~500 nmの膜厚では計算値と実験値に乖離が大きくなった。計算値には入力した皮膜の膜厚以外の空隙は生じないと仮定していることに対して、実際の成形時には被覆粉の間に空隙が生じて圧粉体の密度が低下する。膜厚200 nm以上で計算値と実験値に乖離が大きくなることは、

Fig. 8 Effect of insulating film thickness on the properties.

Fig. 9 SEM images of (a) surface of powder coated by spinel ferrite, and (b) cross section of magnetic core.

その空隙発生に起因する密度低下が原因の一つであると推察される。

Fig. 12に磁性絶縁皮膜と非磁性絶縁皮膜を有する圧粉磁心の圧粉体密度による磁束密度 B_{2k} の変化を示す。圧粉体密度の増加により磁束密度 B_{2k} が向上しており、同じ密度では磁性皮

膜の磁束密度 B_{2k} が非磁性皮膜より高い値を示した。Table 1に同じ比抵抗 $100 \mu\Omega\cdot\text{m}$ を有する磁性皮膜と非磁性皮膜の圧粉磁心における圧粉体密度、比抵抗、磁束密度 B_{2k} および B_{20k} の評価結果を、またその両絶縁皮膜の圧粉磁心の BH 曲線をFig. 13に示した。

Fig. 10 Comparison between experimental and calculated value (magnetic flux density B_{2k}).

Fig. 12 Comparison of magnetic flux density B_{2k} between magnetic film core and nonmagnetic film core.

Fig. 11 SEM image of cross section of powder plated by nonmagnetic film.

これらの結果から、スピネル型フェライトの被覆による絶縁皮膜の磁性化により、絶縁性を確保しながら圧粉磁心の高磁束密度化が可能であることが認められた。

4 ま と め

磁性絶縁皮膜による圧粉磁心の高磁束密度化の可能性を検討するため、スピネル型フェライト粉を混合被覆した鉄粉を成形した圧粉体の特性を評価し、以下の結果を明らかにした。

- (1) スピネル型フェライトを絶縁皮膜に導入した圧粉体の磁束密度を評価した結果、計算値と実験値が概ね一致した。計算結果により、磁性絶縁皮膜による高磁束密度化の効果は、膜厚が厚くなるほど、粉末粒径が大きいほど、顕著であることが分かった。
- (2) 同じ比抵抗を有する非磁性絶縁皮膜に比べ、磁性絶縁皮膜の圧粉磁心の方が高い磁束密度を示した。絶縁皮膜の磁性化することにより、圧粉磁心の高磁束密度化ができた。

Table 1 The properties of powder magnetic cores with magnetic insulating film and nonmagnetic insulating film using by figure 13.

	Green density (Mg/m^3)	Resistivity ($\mu\Omega\cdot\text{m}$)	B_{2k} (T)	B_{20k} (T)
Magnetic film	7.78	100	1.29	1.95
Nonmagnetic film	7.77	100	1.10	1.86

Fig. 13 Initial magnetization curves of magnetic film and nonmagnetic film core.

- (3) スピネル型フェライト粉を混合被覆した鉄粉を1568 MPaの成形圧力で成形した圧粉体で、比抵抗 = $70 \mu\Omega\cdot\text{m}$ 、密度 = 7.79 Mg/m^3 、磁束密度 $B_{2k} = 1.4 \text{ T}$ の特性が得られ、スピネル型フェライトによる圧粉体の絶縁化の可能性を確認した。

文 献

- 1) Y. Ozaki, M. Fujinaga: "Magnetic Properties of High Permeability Iron Powder KIP MG270H for Line Filter Cores", Kawasaki Steel Giho, **31**(1999)130-134.
- 2) H. Mitani, A. Hanaki, H. Yaguchi, Y. Seki: "Magnetic Properties of Dust cores made with Inorganic Insulation coated Iron powder", Kobe Steel Engineering Reports, **48**(1998)25-28.
- 3) T. Saito, S. Yahagi: "Electromagnetic Properties of Compressed cores with Fe-Si-Al system Atomized Powders", Denkiiseiko, **69**(1998)181-187.
- 4) Y. Shimada, K. Matsunuma, T. Maeda, T. Nishioka, A. Ikegaya: "Development of High-Performance P/M Soft Magnetic Material", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, **55-2**(2008) 149-151.
- 5) K. Kanagawa, K. Mori, R. Nakayama: "Charaterization of High-speed Motor using Dust cores", Abstracts of Autumn Meeting JSPM, (2005)138.
- 6) Y. Enomoto, M. Ito, R. Masaki, K. Asaka: "Characteristic Examination of New Synchronous Motor that Composes Craw Teeth of Soft Magnetic Composite", IEEE Trans. Industry Applications, **126-11**(2006)1585-1590.
- 7) D. Kim, M. Ohnishi, N. Matsushita, M. Abe: "Magnetic Cores Usable in Gigahertz Range: Permalloy/Ni-Zn Ferrite Microcomposite made by Low-Temperature Wet Process", IEEE Mag. Trans., **39-5**(2003)3181-3183.
- 8) N. Matsushita, D. Kim, M. Abe: "High-Flux Density and Low-Core Losses Attained for Ferrite / Permalloy Composite Core", IEEE Mag. Trans., **42-10**(2006)2824-2826.
- 9) M. Abe, Y. Tamaura: "Ferrite-Plating in Aqueous Solution: A New Method for Preparing Magnetic Thin Film", Jpn. J. Appl. Phys., **L511**(1983)22.
- 10) M. Abe: "Ferrite-Film Formation from an Aqueous Solution, and Applications", J. of Mag. Soc. Jpn., **22-9**(1998)1225-1232.
- 11) K. Fujimura, M. Kato, K. Hirota: "Fabrication of Mg-Fe-O Ferrite/Magnetic Metal Bulk Composites by High-Pressure Sintering", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, **55-9**(2008) 629-636.
- 12) M. Obata, M. Kato, K. Hirota: "Fabrication of Mg Ferrite/permalloy Magnetic Nano-composites", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, **57-10**(2010)672.
- 13) S. Tajima, T. Hattori, S. Hotta, M. Kondoh, H. Okajima, K. Higashiyama, H. Kishimoto: "Properties of high density magnetic composite (HDMC) by warm compaction using die wall lubrication", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, **50**(2003)577-583.
- 14) Y. Kawase, T. Yamaguchi, T. Takemoto, K. Hiramoto, H. Nakai: "Eddy current analysis of soft magnetic composites using 3-D finite element method", The Papers of Technical Meeting IEEJ, RM-07-98(2007)69-72.
- 15) S. Tajima, T. Hattori, M. Kondoh, H. Kishimoto, M. Sugiyama, T. Kikko: "Properties of high density magnetic composite (HDMC) fabricated from iron particles coated with new type phosphrate insulator", J. Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy, **52**(2005)164-170.
- 16) M. Kondoh, H. Okajima: "High density powder compaction using die wall lubrication", Advances in Powder Metallurgy & Particulate Materials, **3**(2002)47-54.
- 17) S. Tajima, T. Hattori, M. Kondoh, M. Sugiyama, K. Higashiyama, H. Kishimoto, T. Kikko: "Properties of high density magnetic composite (HDMC) by warm compaction using die wall lubrication", Mater. Trans., **45**(2004)1891-1894.