高飽和磁束密度を持つナノ結晶軟磁性合金 「ナノパーム™」の開発

牧野 彰 宏^{*1} 畑内 隆 史^{*2}
井上 明 久^{**} 増本 健^{**}

1. はじめに

省エネルギー化は、昨今の地球環境保護への関心の高まりと相俟って、世界的な要請であるが、エネルギーのほとんどを外国からの輸入に頼っている日本にとっては回避することのできない重要な今日的な課題であると言える。この課題に対する一つの対策として、配電用柱上トランスの磁心材料を従来のケイ素鋼からより損失の少ないFe基アモルファス合金への置き換えが進められているが、さらに低損失の軟磁性材料の出現への期待が大きい。

他方、われわれの生活に不可欠なものとなっている種々の電子機器においては高性能化、小型化および省電力化が急速に進められ、同時にこれらのノイズ対策もその重要性が増しているなか、電子機器に用いられる磁性部品への性能上の要求レベルも益々高くなってきている。この要求に応えるためには、高い飽和磁束密度(B_s)、優れた軟磁気特性および低い磁心損失を兼備した材料が必要とされ、現在この実現を目指した材料開発が活発に行われている。本稿では、従来実現し得なかった高い B_s と優れた軟磁気特性の両立を目指して、著者らが開発したナノ結晶軟磁性Fe-M-B(M=Zr, Hf, Nb)系合金「ナノパーム, Nanoperm」の磁気特性、微細組織およびその磁性部品への応用例について報告する。

2. 開発の経緯

実用材料としては、パーマロイ、センダストおよびソフトフェライトなどの結晶材料とFe基およびCo基アモルファス合金が知られているが、概して言えば、これらの材料において優れた軟磁気特性と高い B_s は両立することが難しい。たとえば、Co基アモルファス合金は優れた軟磁気特性を示

すが、その B_s はFe基アモルファスの約半分である。逆に、Fe基アモルファス合金は1.3~1.6 T程度の高い B_s を持つがその軟磁気特性は十分とは言えない。この高い B_s をもつFe基アモルファス合金の軟磁気特性の改善のため、Fe-Si-B系アモルファス合金を低温で長時間熱処理し、部分的に微細な結晶組織とすることが効果があること⁽¹⁾、さらに最近、この合金にNbとCuを複合添加した5元アモルファス合金を結晶化させることによりナノスケールの α -Fe組織が得られ、約1.3 Tの B_s と優れた軟磁気特性が実現されることが見い出された⁽²⁾。

著者らは、1990年にFe₉₁Zr₇B₂アモルファス合金薄帯を熱処理することにより $B_s=1.7$ Tおよび透磁率(μ_e at 1 kHz)=14000が得られることを見出し⁽³⁾、高濃度にFeを含むFe-M-B(M=Ⅳa~Ⅵa族金属)系ナノ結晶合金についてその磁気特性および微細組織を系統的に調べた⁽⁴⁾⁽⁵⁾。その結果、製造条件、合金組成および熱処理条件などを最適化⁽⁶⁾⁽⁷⁾することにより、図1に示すようにFe基アモルファス合金と同等以上の B_s 、およびCo基アモルファス合金に匹敵する軟磁気特性を持つFe-M-B(M=Zr, Hf, Nb)系ナノ結晶軟磁性合金「ナノパーム」の開発に成功した。

3. ナノパームの特徴

図2に示すように、アモルファス相の結晶化を用い開発されたナノ結晶軟磁性合金薄帯は組成により2グループに大別される。(a)グループは、従来から軟磁気特性を示すことが知られている75から85 at%程度のFeを含むFe-半金属系アモルファス合金に添加元素を加え、結晶化組織をさらに微細化し、軟磁気特性を改善したものであるが、Fe濃度は70~80 at%であるため優れた軟磁気特性が得られるときの B_s は1.4 T程度が限界である。この B_s はFe基アモルファス合金より小さく、この点は(a)グループの材料の応用上大きな制約となる。他方、(b)グループはFe-半金属系アモルファス合金よりも高いFe濃度でアモルファス相が得られるFe-金属系をベースに、高いアモルファス形成能を持つBを若干添加した組成を持つ。この合金はアモルファス状態では、インバー効果によりそのキュリー温度(T_c)が上述のFe-半金属系アモルファス合金よりも著しく低いため、Fe-半金

* アルプス電気株式会社中央研究所長岡分室

1)部長 2)課長

** 東北大学教授; 金属材料研究所

Development of Nanocrystalline Soft Magnetic Alloys "Nanoperm™" with High Saturation Magnetization; Akihiro Makino*, Takashi Hatanai*, Akihisa Inoue**, Tsuyoshi Masumoto**(*Alps Electric Co. Ltd, **Tohoku University) 1995年1月30日受理

図1 ナノパーム薄帯および従来材料における飽和磁束密度(B_s)と1 kHzにおける透磁率(μ_e)の関係。

(a) Fe-半金属系合金	70 to 80%Fe,
Fe-Si-B-Nb-Cu	Bs=1.2 to 1.4T
Fe-Si-B-Nb-Au	
Fe-Si-B-V-Cu	
Fe-P-C-Ge-Cu	
(b) Fe-M-B 合金	85 to 90%Fe,
Fe-Zr-B	Bs=1.5 to 1.7T
Fe-Hf-B	
Fe-Nb-B	

図2 主なナノ結晶軟磁性合金薄帯の分類。

属系アモルファス合金と比較すると、室温における B_s と軟磁気特性は著しく劣ることが知られていた⁽⁸⁾。著者らは、この合金系の中で、Fe 濃度の高いある限られた組成範囲のアモルファス相を結晶化することによりナノスケールの α -Fe 組織が得られ、従来実現し得なかった 1.5 T 以上の高い B_s と優れた軟磁気特性が同時に発現することを見出した。

4. ナノパームの微細組織と磁気特性

代表組成である $\text{Fe}_{90}\text{Zr}_7\text{B}_3$, $\text{Fe}_{90}\text{Hf}_7\text{B}_3$ および $\text{Fe}_{84}\text{Nb}_7\text{B}_9$ 合金の最適熱処理後の透過電子顕微鏡 (TEM) 写真を図 3 に示す。それぞれの三元合金において、8~15 nm のほぼ一様な粒径 (D) を持つ bcc 組織が観察され、また、このときの磁歪 (λ) は 10^{-6} オーダーと小さいことから、優れた軟磁気特性は、図 2 の (a) グループの合金と同様に、主として均一なナノ組織と小さな λ に起因すると考えられる。しかし、図 4 に示す高分解能 TEM 写真とナノビーム分析から、ナノスケールの bcc 粒間にわずかな量の残留アモルファス相が存在し、また、このアモルファス相が急冷状態よりも著しく高い濃度の Nb および B を含むことが判明した。高濃度に溶質元素を含むこの残留アモルファス相は急冷状態のアモルファス相よりも高い T_c と高い熱的安定性を持つことになり、結果として、bcc 粒間の磁氣的結合を容易にし、また bcc 粒径の成長を高温まで抑制し、優れた軟磁気特性を発現させる上

図3 923 K で 3.6 ks 熱処理した (a) $\text{Fe}_{90}\text{Zr}_7\text{B}_3$, (b) $\text{Fe}_{90}\text{Hf}_7\text{B}_3$ および (c) $\text{Fe}_{84}\text{Nb}_7\text{B}_9$ 合金薄帯の TEM 写真 (明視野) と電子線回折図形。

図4 923 K で 3.6 ks 熱処理した $\text{Fe}_{84}\text{Nb}_7\text{B}_9$ 合金薄帯の高分解能 TEM 写真およびナノビーム EDS, EELS スペクトル。

で重要な役割を担うことが明らかとなった⁽⁹⁾。さらに、図 5 に示すように、スパッタ膜においても、上述した薄帯と同様にナノ組織が実現され、優れた磁気特性が得られることも見出した⁽¹⁰⁾。

著者らは、さらに軟磁気特性を改善するために、 D の微細化、 λ の減少および残留アモルファス相の T_c の上昇などを試みた。結晶化のための熱処理の際の昇温速度を上昇させると D が微細化し、軟磁気特性が改善され⁽⁶⁾、また M 元素を適宜組合せることにより緻密に零磁歪近傍で λ を調節し得ることが確認されている。さらに、Pd や Cu の微量添加によっても D が微細化され⁽⁷⁾、また Co の微量添加により残留アモルファス相の T_c が上昇し⁽¹¹⁾、軟磁気特性が改善されることも見出されている。このような種々の最適化検討の結果、図 1 に示した磁気特性を持つナノパームが実現された。

図 6 にナノパームと Fe 基、Co 基アモルファス合金における磁心損失の最大磁束密度 (B_m) および周波数 (f) 依存性を示す。ナノパームは商用周波数における全 B_m 領域において、すでに柱上トランスへの適用が進められている Fe 基アモルファス合金よりも著しく低い損失を示し、また 1 MHz までの高い周波数領域においても、従来最も低い損失を示すことが知られている Co 基アモルファス合金に匹敵す

図5 873 Kで3.6 ks熱処理した $\text{Fe}_{88}\text{Hf}_{10}\text{B}_2$ 合金膜の高分解能TEM写真.

る値を示す. Co基アモルファス合金は, その軟磁気特性の経時変化および高価格が実用上の課題とされており, この点を考慮すると, ナノパームは種々のトランスおよびインダクター用磁心材料として非常に有望であると言える.

磁性部品への応用の観点から, 高い熱的安定性, 良好な曲げや打抜き加工性, 加工およびモールド樹脂などでの応力による軟磁気特性の劣化が少ないこと, および角型比が広い範囲で調整できることなども必要とされるが, ナノパームはこれらの諸性質についても十分に満足することが確認されている.

5. ナノパームの応用例

種々のトランスの試作結果は, 上述した磁心損失結果と同様であるため, ここでは別の応用例を示す. 図7に, ナノパーム薄帯を用いてトロイダル形状に巻き取り作製した外径20 mm, 内径10 mmのコモンモードチョークコイルのインパルス減衰特性を示す. 図は入力パルスノイズ電圧とフィルター通過後の出力電圧の関係を示しており, その値が小さいほどフィルター特性が優れていると言える. ナノパームは1.5 T以上 B_s をもつため, これを用いたインパルス減衰特性を示し, 電子機器の損傷や誤動作の原因となるパルスノイズの減衰に優れた効果を示す. また, ナノパームは, 上述した急冷薄帯, 膜のほかに粉およびその成形体⁽¹³⁾においても優れた磁気特性が得られるため, 今後種々の磁気デバイスおよび部品に幅広く応用されるものと期待される.

6. 特 許

材料, 応用および製法に関する特許は出願中を含めて46件である.

文 献

(1) R. Hasegawa, G. E. Fish and V. R. V. Ramman: Proc. 4th Int. Conf. on Rapidly Quenched Metals, ed by T. Masumoto and

図6 ナノパーム薄帯および従来材料における磁心損失の(a)最大磁束密度(B_m)と(b)周波数(f)依存性.

図7 ナノパーム薄帯および従来材料を用いたコモンモードチョークコイルのインパルス減衰特性.

- K. Suzuki, Japan Inst. Metals, Sendai, (1981), 929.
- (2) Y. Yoshizawa, S. Oguma and K. Yamauchi: J. Appl. Phys., **64**(1988), 6044.
- (3) K. Suzuki, N. Kataoka, A. Inoue, A. Makino and T. Masumoto: Mater. Trans., JIM, **31**(1990), 743.
- (4) K. Suzuki, A. Makino, A. Inoue and T. Masumoto: Mater. Trans., JIM, **32**(1991), 93.
- (5) K. Suzuki, A. Makino, A. Inoue and T. Masumoto: Sci. Rep. RITU, **A39**(1994), 133.
- (6) A. Makino, S. Yoshida, A. Inoue and T. Masumoto: Proc. 8th CIMTEC-World Ceramics Congress and Forum on New Materials., in press.
- (7) A. Makino, A. Inoue and T. Masumoto: Nanostructured Mater., in press.
- (8) S. Ohnuma, M. Nose, K. Shirakawa and T. Masumoto: Sci. Rep. RITU, **A29**(1981), 254.
- (9) A. Makino, K. Suzuki, A. Inoue and T. Masumoto: J. Magn. Mater., **133**(1994), 329.
- (10) 牧野彰宏, 新野さゆり, 井上明久, 増本 健: 日本金属学会誌, **58**(1993), 106.
- (11) 鈴木清策, 牧野彰宏, 井上明久, 増本 健: 日本応用磁気学会誌, **18**(1994), 800.
- (12) 吉沢克仁, 小熊 繁, 平本明敏, 山内清隆: 日立金属技報, **5**(1989), 13.
- (13) A. Kojima, H. Horikiri, Y. Kawamura, A. Makino, A. Inoue and T. Masumoto: Mater. Sci. Eng., **A181/A182**(1994), 1020.