

# 第 1 章 序論

## 1.1 はじめに

近年“ものづくり”を行うに際して、我々のまわりを取りまく環境への配慮が不可欠となってきた。1992 年ブラジルのリオで 180 カ国以上の代表が参加して開催された地球サミット（地球環境会議）において地球環境問題が議論され、子孫に豊かで明るい地球環境を伝承する願いを込めた行動計画「アジェンダ 21」が採択された。このアジェンダ 21 に基づき 1996 年 9 月に国際標準化機構（ISO）が環境マネジメントシステム規格 ISO14000 シリーズを制定した。（財）日本規格協会（環境管理規格審議委員事務局）の調査によれば、我が国では 2004 年 8 月の時点で 16,000 件もの団体が ISO14000 シリーズの認定を受けており、さらに右肩上がりで申請件数が増加していることから、今後“環境への配慮”は益々重要になると考えられる。

また、1997 年“気候変動枠組条約第 3 回締約国会議（COP3）”が京都で開催され、先進国の温室ガス削減目標が取り決められた。日本は 2008 年から 2012 年の平均値で 1990 年比“6%の温室ガス削減”が目標値となっている。しかしながら、2003 年の調査では 1990 年比で 8%増加しており、今後、より一層の温室ガス削減に関する対策強化が必要となる。我が国において、排出する温室ガスの約 8 割がエネルギー生産時に発生する CO<sub>2</sub> であり、省エネルギーや化石燃料への依存度を可能な限り低減することが必要である。しかしながら、安易にエネルギー需要を抑制することは経済の発展をも抑制しかねず、両者を同時に達成することは容易ではない。今後はグリーンサイエンスという言葉に集約されるように、高性能な材料・製品をより少ないエネルギーで作製することが重要になると考えられる。

## 1.2 研究対象と意義

H14 年経済産業省製造産業局の資料“変圧器の電力損失削減のための革新的磁性材料の開発”によると、我が国の 2010 年に予想される総発電電力量は 12,110 億 kWh であり、そのうち変圧器の鉄損は 136 億 kWh、金額にして約 2 千億円と大きなものとなっている。現在、電力のおよそ半分は電動機で消費され、その駆動用電源内には、昇降圧トランス用磁気コア、エネルギー蓄積インダクタ用磁気コア等、小電力から大電力用まで数多くの磁気コアが用いられている。これら磁気コアには、省エネルギーの観点から、“低損失”が所望され、より低磁気損失な磁気コア用材料の開発が所望されている。

一方、近年、携帯電話に代表されるように機器の小型化も急速に進行している。一般的に、磁気デバイスは他のデバイスと比較して、小型化の速度が緩やかであり、近年の電気電子機器の高密度実装を満足するには磁気コアにも更なる小型化が所望され、低磁気損失に加えて“高い飽和磁化”を有する磁気コアの開発が強く望まれている。

低磁気損失かつ高飽和磁化を有する磁気コアの開発には、そのコア材料に対する研究が不可欠である。本研究では、今後の情報通信機器の電力需要の高まりを踏まえ、電源回路出力部で交流分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小電力用低透磁率軟磁性材料の研究開発を行った。これらの磁気コアは情報通信電子機器のスイッチング電源等に組み込まれる必要不可欠な磁気デバイスである。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、H12 年度の消費電力量の約 8 倍に相当する 3,300 億 kWh に達すると予想されている。すなわち、情報通信に関連するデバイスの高効率化は急務であり、仮に電源回路を含めた回路全体の電力効率が 1%改善できれば、年間数十億 kWh の省電力、金額にして数百億円もの削減が期待される。

一般に軟磁性材料には、漏れ磁束および磁気損失の低減の観点から透磁率が高いことが所望される。しかしながら、本研究で想定する応用下では、“直流コイル電流による有効磁界下で材料が動作すること” および磁性体特有の“磁気飽和現象が存在すること” から、透磁率をある程度低い値に制御する必要がある。このことを直流重畳下で動作するチョークコイルを例に説明する。

コイルのインダクタンス  $L$  はコア材料の比透磁率  $\mu_r$ （以後比透磁率のことを透磁率と呼ぶ）に比例する。主にトランス用磁気コアに使用される一般的な軟磁性材料は、B-H 平面上の原点が動作点となるが、チョークコイル用磁気コアに使用される軟磁性材料は、コアの内部に直流コイル電流により生じる直流重畳磁界  $H_{dc}$  が存在するため、動作点が B-H 平面上の原点から  $H_{dc}$  分シフトする (Fig.1-1)。  $H_{dc}$  により動作点が磁気飽和領域に達すると印加磁界  $H$  の変化に対して磁束密度  $B$  の変化が著しく減少し  $\mu_r$  が低下する。この  $\mu_r$  の低下により  $L$  が減少するためコイルの働きは著しく低下する。  $\mu_r$  が高い場合はわずかな  $H_{dc}$  で飽和領域に達するが、  $\mu_r$  が低い場合はある程度の  $H_{dc}$  下でも飽和領域に達さず  $L$  が値を持つためコイルが有効に動作する。

一方、  $\mu_r$  が低すぎる場合は巻数やコア体積（断面積や磁路長）を増やすことである程度の  $L$  を得ることは可能であるが、体積の増加は近年の小型化の風潮を逆流することになり、巻数の増加は巻線抵抗を増加させ発熱等新たな問題を生む。以上のことから、本研究対象とした透磁率制御型磁気コア用の軟磁性材料では、数百程度のある程度低い透磁率が所望される[1]。すなわち、高効率で磁気デバイスを動作させるために、透磁率制御型磁気コア用軟磁性材料に必要とされる特性は、

- (i) 高飽和磁化（小型化）
- (ii) 低磁気損失（省エネ、発熱の抑制）
- (iii) 適度な低透磁率（直流コイル電流による磁気飽和の抑制）

と整理される。加えてスイッチング電源の駆動周波数が数百 kHz から MHz の領域に移行しつつあり、良好な高周波特性も望まれる。

今後の小電力部門、特に情報通信機器の消費電力の増加を考慮すると、本研究を通じ透磁率制御型磁気コアの小型・低損失化に向けたコア用軟磁性材料の研究開発を行うことは意義深いと考えられる。

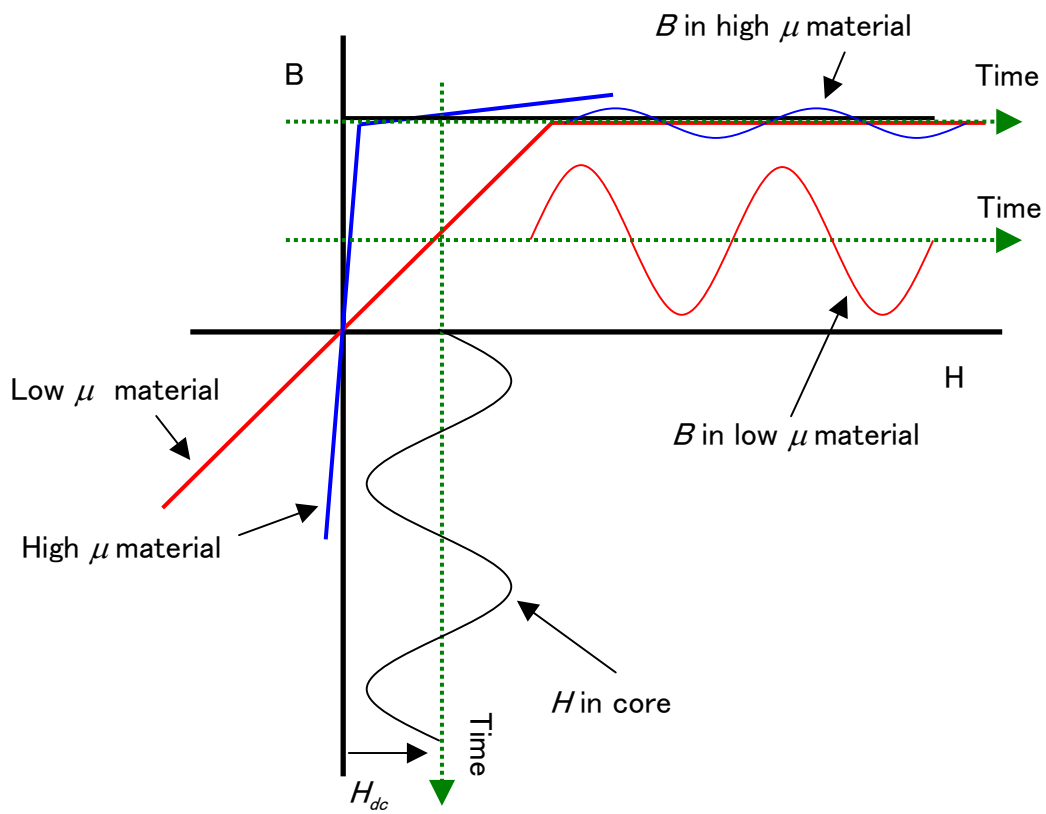


Fig.1-1 Effect of dc-bias magnetic field on a waveform of flux density in a choke coil.

### 1.3 透磁率制御型磁気コア

電気・電子機器の小型化の流れを受け、磁気デバイスも小型化が進行している。現在は、動作周波数の増加により小型化をはかる方法が広く採用されている。しかしながら、本研究で想定するチョークコイル用磁気コアでは、先に述べたように直流重畳下で動作するため、直流許容電流（磁気飽和が生じる電流）の制限を受け、飛躍的な小型化には至っていない。また、動作周波数の高周波化は、高調波サージによる損失の増加、回路共振、周辺デバイスへノイズ等の悪影響が懸念され、これらを抑制する必要がある。本研究ではそれら高調波ノイズの抑制および除去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で用いられるコア用の軟磁性材料を研究対象とした。本節では、透磁率制御型磁気コアの現状および問題点を述べる。

現在広く用いられている低透磁率磁気コアには、磁路の一部にエアギャップを設けて透磁率を低減させた“ギャップ付きフェライトコア”や磁性粉末をバインダを用いて圧縮成形した“圧粉コア”がある。ギャップ付きフェライトコアは、フェライト自身の安価な材料コストやコア成形時の高い形状自由度等、その高い生産性が反映され、小電力用低透磁率磁気コアとして広く用いられている。しかしながら、このギャップ付きフェライトコアは、

- (i) 低い飽和磁化[2]（小型化の妨げ）
- (ii) ギャップからの漏れ磁束（損失の増加および周辺機器へのノイズ等の悪影響[3]）
- (iii) 低いキュリー温度[2]（動作温度の制限）

等の欠点を有しており、特にその飽和磁化は金属材料と比較して 2~3 分の 1 程度と小さく、今後のコアの小型化への要求に十分応えられる材料でない。

圧粉コアには、軟磁気特性に優れたセンダスト[4]（Fe-Si-Al 系合金）のパウダーコア[5]や高周波特性に優れたアモルファスのパウダーコア等がある。圧粉コアは、磁気特性が良好な金属系磁性材料をホットプレスによりコア成形し、バインダを用いることで個々の磁性粉末を電氣的・磁氣的に孤立させ、うず電流の抑制と透磁率の低減を達成している。また形状自由度もフェライトコアと同様高い。遠藤、八木らは SWAP 法（Spinning Water Atomization Process）により高い急冷速度を実現し、Fe-Cr-Si-B-C 系アモルファス粉末の大量生産を実現した。この SWAP 法にて作製したアモルファスの粉末と低融点ガラスバインダを用い、結晶化温度以下でホットプレスすることで Fe 系アモルファスパウダーコアを作製し、最大磁束密度  $B_m = 0.1 \text{ T}$ 、励磁周波数  $f = 100 \text{ kHz}$  で  $6.6 \text{ J/m}^3$  の低損失を実現している[6-8]。また、さらに損失の低い圧粉コアとしては、Manivel Raja らが Fe-Cu-Nb-Si-B 系材料の Nb を Mo に置換し、少量の Al を添加した圧粉コアを報告している[9]。Manivel Raja らの報告したコアは  $f = 100 \text{ kHz}$  において初透磁率  $\mu_i = 600$  程度、磁気損失  $0.67 \text{ J/m}^3$  であった。しかしながら Manivel らの報告した圧粉コアは、“損失測定条件の最大磁束密度が明確でないこと”やコアの直流ヒステリシスループにおいて“保磁力が  $100 \text{ A/m}$  以上と大きいこと”，また圧粉コア全般の問題点である非磁性のバインダの使用による“等価的な飽和磁化の減少”等の諸問題および欠点を有している。

その他の低透磁率コアには、ピンングサイト析出コア、磁場中熱処理による透磁率制御型コア、部分結晶アモルファスコア等がある。

ピンングサイト析出コアは、磁壁移動を伴う磁化過程において、その移動をピン止めすることで低透磁率を実現する。本研究では当初 Fe-Cu-Nb-Si-B 系および Fe-Zr-Nb-B-Cu 系材料（各材料とも 1.4.2 節にて記述）を用い、磁壁ピンング型低透磁率コアの作製を行った[10]。その結果、Fe-Cu-Nb-Si-B 系においては  $\text{Fe}_2\text{B}$  をピンングサイトとして析出させることで透磁率の低減と低損失を実現した。しかしながら、Fe-Cu-Nb-Si-B 系ピンングサイト析出コアは小振幅励磁の場合は優れた特性を示すものの、大振幅励磁時において磁壁がピンングサイトを離れる時に、磁化過程が不可逆となり損失が増加することが明らかとなった。一方、Fe-Zr-Nb-B-Cu 系では透磁率の低減は達成したものの、低損失は達成されなかった。検討の結果、Fe-Zr-Nb-B-Cu 系での透磁率の低下は、ピンングサイトの析出による磁壁移動のピン止めによるものではなく、 $\alpha\text{-Fe}$  の粒成長に起因するものであることが判明した。ピンングサイト析出コアは、可逆的な磁化過程の範囲での使用においては優れた磁気特性を示すが、不可逆な磁化過程に移行した場合に損失が増加するため、使用範囲を制限すれば良好な低透磁率コアであるといえる。

磁場中熱処理による透磁率制御型コアは磁界中冷却効果（1.5 節参照）により、磁界容易軸を印加磁界方向と垂直方向に形成することで、印加磁界方向の透磁率を低減（1.6.1 節）させたものである。茂松は、Co-Fe-Zr-B 系アモルファス薄帯をトロイダル成形した後、コアの高さ方向（薄帯の幅方向）に磁界を印加しながら熱処理を施すことにより印加磁界方向に対し垂直方向に異方性を付与した。この磁場中熱処理により作製したコアの透磁率は  $B_m = 0.1 \text{ T}$ ,  $f = 100 \text{ kHz}$  の条件下で 600 程度、損失値は同条件下で約  $9 \text{ J/m}^3$  であった [11]。茂松は、作製したコアの損失が周波数の増加に伴い、磁化回転（1.4.1 節）を仮定した時のうず電流損失の理論計算値との差が大きくなったことから、完全な垂直方向への異方性付与を達成できていないと結論付けている。また、他の報告例としては吉沢らによる Fe-M-Cu-Nb-Si-B (M: Ni, Co) および Fe-Co-Nb-Si-B トロイダルコアがある[12]。その中で、アモルファス  $\text{Fe}_{8.8}\text{Co}_{70}\text{Cu}_{0.6}\text{Nb}_{2.6}\text{Si}_9\text{B}_9$  薄帯に磁場中熱処理を施すことでナノ結晶（1.4.2 節）化し、 $1800 \text{ J/m}^3$  程度の大きな異方性が得られることを示し、その薄帯を用いて 200 程度の透磁率（ $f = 100 \text{ kHz}$ , 最大印加磁界  $H_m = 0.05 \text{ A/m}$ ）を有するトロイダルコアを作製した。報告によればそのコアの損失値は  $f = 100 \text{ kHz}$ ,  $B_m = 0.2 \text{ T}$  の条件下で  $6.2 \text{ J/m}^3$ （ $B_m = 0.1 \text{ T}$  に換算すると  $1.5 \text{ J/m}^3$  程度）であり、高飽和磁化・低透磁率・低磁気損失を併せ持つ良好な透磁率制御型磁気コアであった。しかしながら、Co を多く含むため磁気歪み（2.11 節）が  $10^{-5}$  オーダと大きく、コアの小型化を鑑みた場合、磁気特性の劣化が懸念される（5.2 節）。

部分結晶アモルファスコアは、応力誘導磁気異方性（1.5 節）を利用した磁化回転型の低透磁率コアである。アモルファス試料の一部を結晶化させ、その際生じる結晶相-アモルファス相間の歪みに起因する内部応力と試料が有する磁気歪みの相互作用で異方性を誘起し、印加磁界方向の透磁率を低減させたものである。Fe-Si-B-Cr アモルファス薄帯を用いた報告[13]では、 $500 \sim 600 \text{ }^\circ\text{C}$  程度で窒素および酸素中で熱処理を施すことで、 $B_m = 0.1 \text{ T}$ ,  $f = 100 \text{ kHz}$  の条件下で透磁率は 200 程度、磁気損失は  $7.2 \text{ J/m}^3$  のコアが得られている。部分結晶したアモルファス合金について網川らは、酸化性雰囲気中で部分結晶化させたアモルファス Fe-Si-B 薄帯の表面磁区観察を行い、部分結晶化によって試料表面での磁区が乱れ、結晶化の進行に伴って保磁力が増加することを報告し

ている[14]. 部分結晶アモルファスコアは結晶相-アモルファス相間の圧縮力で異方性を誘導するため、圧縮力の向きが一樣に揃いにくく、印加磁界方向（薄帯状試料の長手方向）に対して垂直な方向への完全な異方性付与を達成できず、鉄損が増加する傾向がある。

今後の低透磁率磁気コアの更なる高性能化には、フェライト材料よりも磁気特性が優れる金属材料を用い、新たな手法にて低透磁率・低磁気損失を達成する必要があると考えられる。

## 1.4 磁気損失の低減法

従来、低透磁率と低磁気損失の間にはトレードオフの関係が成立し、同時に満足する軟磁性材料の開発は困難とされていた。前節で述べたように、フェライト材料よりも飽和磁化の高い金属材料を用いた低透磁率・低磁気損失磁気コアが数例提案されたが、次世代の材料として十分期待に応えられるものではなかった。本研究では、磁気損失の低減の観点から高いポテンシャルが期待されるナノ結晶材料と磁化回転を適用した。本節では、“磁化過程の制御”，“ナノ結晶材料”に関して説明する。

### 1.4.1 磁化回転モードの利用

近年、スイッチング電源を始め機器の駆動周波数の高周波化が進行している。磁性材料を高周波下で駆動する場合、磁気損失の増加や透磁率の低下等、磁気特性の劣化が問題となる。特に磁気損失は電力効率改善の観点から無視することができない要素の一つである。交流磁界下での磁気損失には、

- ① ヒステリシス損失
- ② うず電流損失
- ③ 残留損失

等がある。

本実験では、低透磁率・低磁気損失を両立させるため、磁化過程を磁化回転モードに制御した。磁化過程が磁壁移動を伴わない磁化回転であることの長所について説明する。

#### I. ヒステリシス損失

ヒステリシス損失は、磁性体が描くヒステリシスループが囲む面積に相当する。ヒステリシス損失は、磁性材料の表面の粗さや不純物等による非可逆的な磁壁の移動および非可逆な磁化過程によって引き起こされる。

Fig.1-2 に一軸異方性を有する磁性体モデルに、磁化容易軸と角度  $\theta_0$  で磁界を印加した場合のヒステリシスループを示す。  $\theta_0 = 0^\circ$  の時が、容易軸方向に磁界を印加した場合、  $\theta_0 = 90^\circ$  の時が困

難軸方向に磁界を印加した場合となる。Fig.1-2 に示すように、印加磁界方向が困難軸方向に近づくほどヒステリシス損失は減少する。完全に磁化困難軸方向に磁界を印加した場合、磁性体は可逆的な磁化回転のみで磁化するため磁壁の移動は起こらず、理論的にはヒステリシス損失は無い。つまり、一軸異方性を有する磁性体の磁化困難軸方向に磁界を印加すれば、

- (i) 可逆的な磁化回転による磁化
- (ii) 磁壁移動を伴わないため、ヒステリシス損失が零

となり、ヒステリシス損失の低減が期待できる。

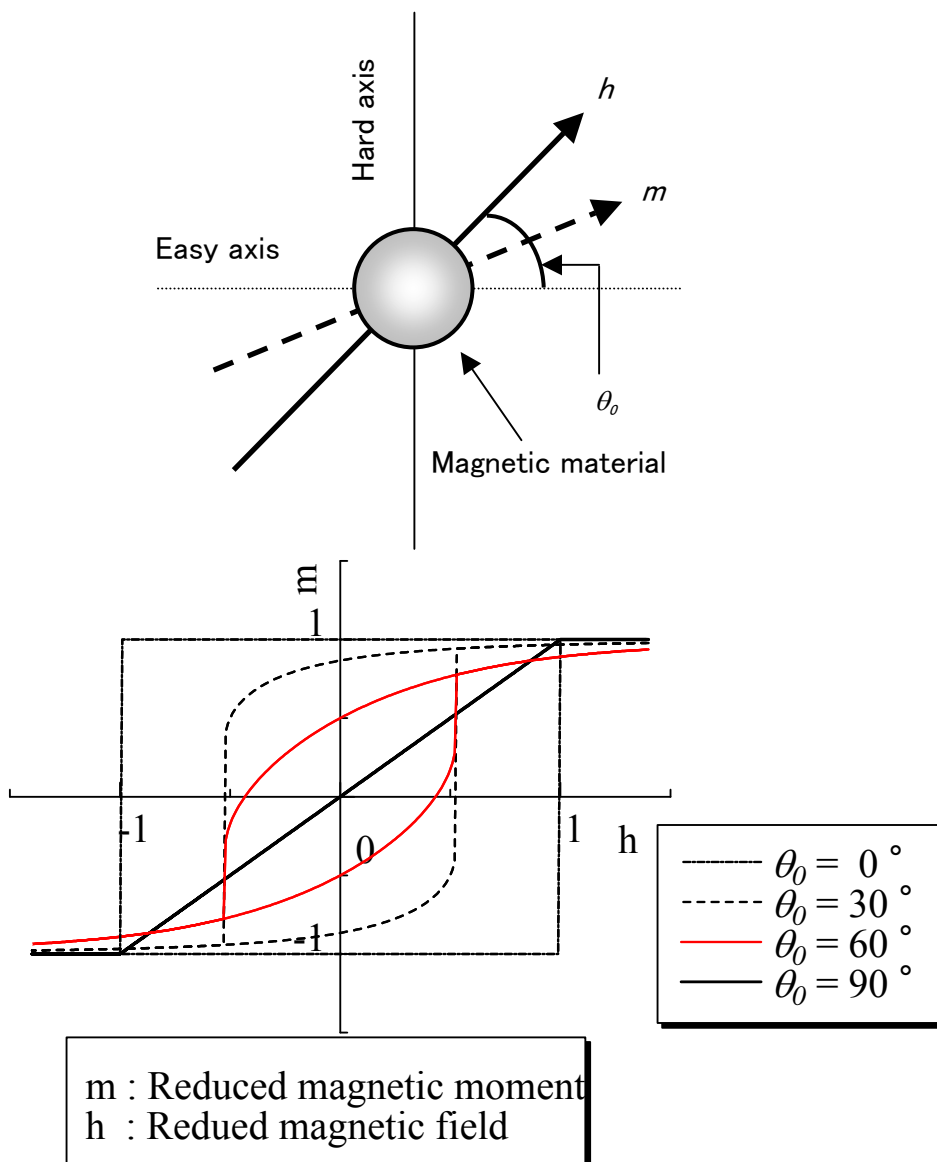


Fig.1-2 Variation of hysteresis loops due to direction of applied magnetic field.

## II. うず電流損失

交流磁界で磁性体を磁化すると、磁性体内の磁束が時間変化し、電磁誘導則の

$$\text{rot}\mathbf{E} = -\frac{\partial\mathbf{B}}{\partial t} \quad (1-1)$$

に従って試料内に起電力が生じる。この起電力により試料内にうず電流が流れ、ジュール熱が発生する。このジュール熱損失がうず電流損失である。金属磁性材料はフェライト材料と比べ電気抵抗率が低いため、高周波励磁下ではうず電流損失の占める割合が大きくなる。うず電流損失は、磁化過程によりその大きさが異なる。

Fig.1-3(a)に示すように、厚さ  $d$  の無限平板磁性体内で磁化がその回転により変化する時（磁化回転モード）に生じるうず電流損失は、

$$\frac{W_c}{f} = \frac{\pi^2 d}{6} \cdot \frac{dB^2 f}{\rho} \quad (1-2)$$

と与えられる[14]。ここで、 $W_c/f$ ,  $d$ ,  $B$ ,  $f$ ,  $\rho$  はそれぞれ一周あたりのうず電流損失、試料の厚さ、磁束密度、励磁周波数、試料の電気抵抗率である。



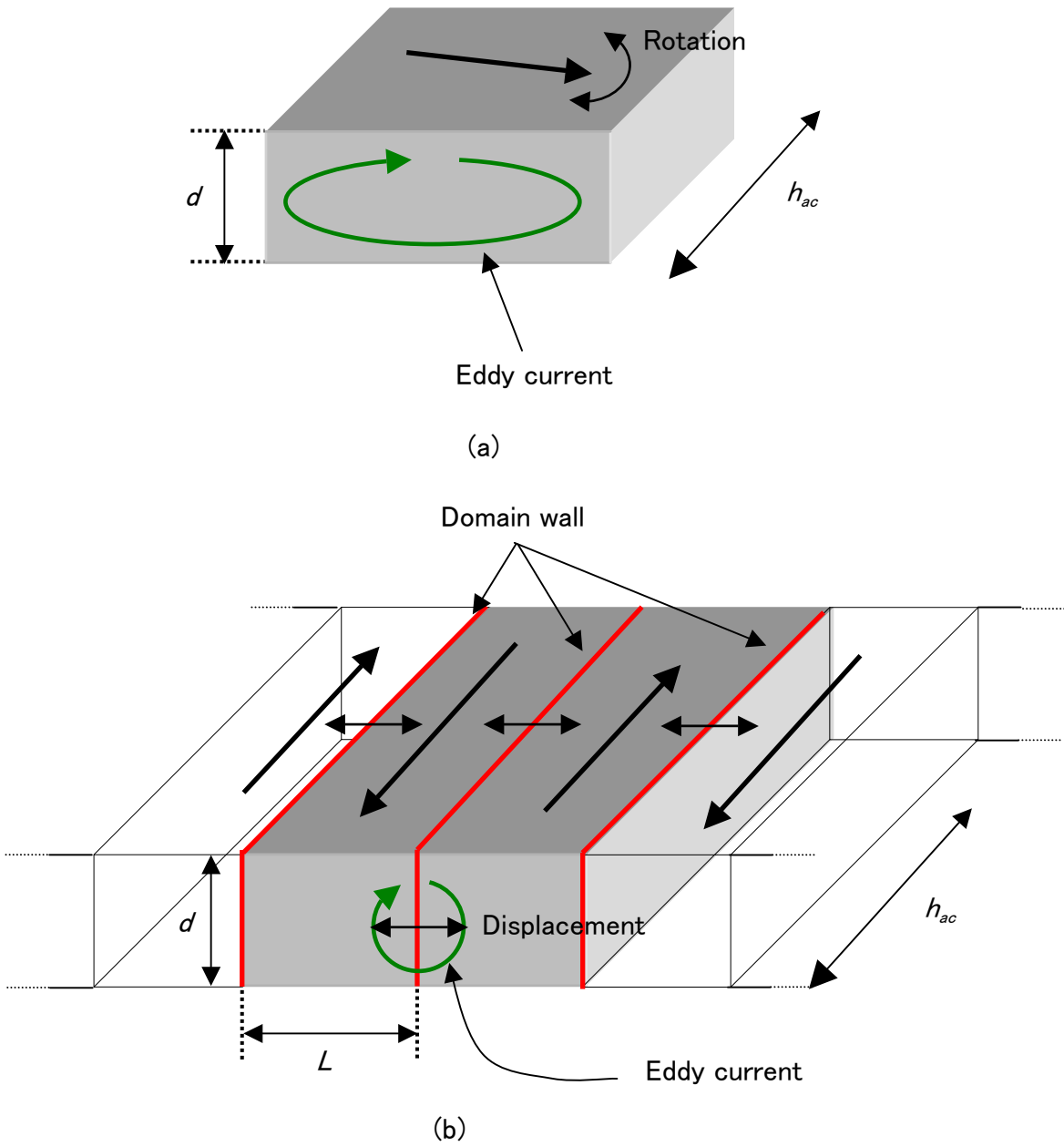


Fig.1-3 Magnetization change by (a) rotation and (b) domain-wall displacement.

一方, Fig.1-3(b)に示すように厚さ  $d$  の無限平板磁性体内に磁区幅  $L$  で  $180^\circ$  磁壁が並んでいる場合を仮定すると, 磁化が磁壁移動により変化する時 (磁壁移動モード) に生じるうず電流損失は,

$$\frac{W_c}{f} = \frac{8.4L}{\pi} \cdot \frac{dB^2 f}{\rho} \quad (1-3)$$

と与えられる[15]. ただし,  $L \geq d$  を仮定している.

磁化回転モードの時のうず電流損失を  $W_{cr}$ , 磁壁移動モードの時のうず電流損失を  $W_{cd}$ , とすると一般に  $W_{cr} < W_{cd}$  となる. これは, いずれの磁化モードにおいてもうず電流損失は磁束密度の時間変化の 2 乗 ( $(dB/dt)^2$ ) に比例することに起因する. 磁化回転の場合は  $dB/dt$  が場所的に平均しているのに対し, 磁壁移動の場合は磁壁付近に局在するため, 場所平均で比較した場合, 磁壁移動モードの方がうず電流損失は大きくなる. 従って, うず電流損失低減の観点からも磁化回転モードの適用が効果的となる.

### III. 残留損失

ヒステリシス損失とうず電流損失以外の損失をまとめて残留損失という. 残留損失の中には磁気共鳴や磁気余効による損失等がある. フェライトは高周波において残留損失の増加が著しい.

以上のことから, 一軸異方性を有する磁性体の磁化困難軸方向に磁界を印加した場合, 磁化過程が磁化回転となるため, 磁壁移動を伴う磁化過程よりもヒステリシス損失およびうず電流損失の低減が期待される.

#### 1.4.2 ナノ結晶材料

1970 年代に開発されたアモルファス磁性材料は,

- ① 結晶磁気異方性 (1.5 節) の排除
- ② ピニングサイトとなる結晶粒界の排除
- ③ 結晶状態よりも高い電気抵抗率

等から, “高透磁率・低保磁力が期待されること” および “高周波下でのうず電流の抑制による鉄損の低減が期待されること” から広く研究された. アモルファスの軟磁性材料としては Fe, Co 等の遷移金属を主構成要素とし, 約 15~25 at.% のメタロイド元素 (B, C, Si, Ge, P 等) を添加したものが多く研究された. メタロイド元素は Fe や Co 原子間の隙間に侵入し, アモルファスの形成を促進する. アモルファス金属の製法としては, 真空蒸着やスパッタリング, メッキ, 気相化学反応法 (CVD: Chemical Vapor Deposition), 液体急冷法等がある. 真空蒸着やスパッタリング, メッキ, CVD では薄膜を対象としているため, 応用範囲が限定される. これに対し, 液体急冷法は比

較的容易かつ大量にアモルファスの薄帯や粉末を作製できるため応用の範囲が広い。本実験に関連する液体急冷法による長尺アモルファス薄帯作製手法には、遠心急冷法[16]、ディスク急冷法[17]、ロール法[18]等があり、中でもロール法の1つである単ロール法は、幅が10 cm程度、長さが数100 mもの幅広長尺アモルファス薄帯の作製が可能であることから広く用いられる。Fe基アモルファス材料は、飽和磁化やキュリー温度こそCo基アモルファス材料よりも優れていたが、磁気歪みや鉄損面で劣り、高周波応用ではCo基アモルファス材料が優勢であった。

1988年、吉沢らは結晶化温度が高いFe-Si-B系アモルファス合金にCuとNbを微量添加し、結晶化温度よりも高い温度で熱処理を施すことで、数十nmのFe-Si結晶を安定に析出させ、その合金が優れた軟磁気特性を示すことを報告した[19]。このFe-Cu-Nb-Si-B系ナノ結晶材料はFINEMETとして商標化された。FINEMETは高周波下でCo基アモルファス材料に匹敵する高透磁率・低鉄損を示した。また、同時に低磁気歪みを達成し、Fe系材料の高周波応用への道を切り開いた。このFINEMETの開発により、飽和磁化はCo基アモルファスの約2倍、キュリー温度も約2倍(°C換算)となった。

吉沢らは数十nmの微細結晶粒を安定して得ることができる理由を次のように報告している。まず熱処理の初期の段階でFe, Cu, Nbのそれぞれの元素が高濃度な領域が形成される。この時、非固溶系の高濃度Fe領域と高濃度Cu領域は互いに分離し、多くのFe結晶の核が形成される。その後、高濃度Fe領域は粒成長するが、高い結晶化温度を有する高濃度Nb領域により粒成長が抑制され、結果として数十nmの均一な組織が形成される。

本報告を受け、Herzerおよび他の研究者らによって、ナノ結晶材料の微細構造と磁気特性に関する研究が多く行われた[20-24]。また、宝野らのグループはアトムプローブ電界イオン顕微鏡(APFIM: Atom-Probe Field Ion Microscopy)を用いてFINEMETの結晶化初期の段階を詳細に検討し、

- ①  $\alpha$ -Fe ナノ結晶中には20 at.%程度のSiが含まれること
- ② NbとBはFe-Si結晶中から排除されて、アモルファス相中に存在すること
- ① Cu濃度の高いfcc-Cu相が存在すること
- ②  $\alpha$ -Fe粒子はCuクラスターとアモルファスの界面から核形成されること

を報告した[25-28]。ナノ結晶材料の微細構造と磁気特性に関する研究およびナノ結晶形成初期過程の研究を通じ、FINEMETにおける微細結晶の構築から、ミクロ構造と磁気特性の関係までが一通り体系立てられた。

FINEMETが優れた軟磁気特性を示す理由についてはHerzerがランダム配向モデル[29]を用いて説明している[20, 30, 31]。Fe-Cu-Nb-Si-B系のアモルファス合金を結晶化させると、無配向な10~20 nm程度のbcc Fe-Siのナノ結晶組織がアモルファスマトリクス中に分散した組織が形成される。Herzerの計算によれば粒界間のアモルファス相の厚さは原子4~5個分程度である。これら各結晶粒はアモルファス相を介して交換相互作用で磁氣的に結合しており、ランダムに配向している。

この結晶粒のランダムな配向により、結晶磁気異方性が平均化されて零に近づくために、低保磁力を示す。実際に Herzer は結晶粒径と実効異方性定数の関係を評価し、結晶粒径が 10~100 nm の範囲では、結晶磁気異方性が平均化され実効異方性定数が結晶粒径の 6 乗に比例することを示し、結晶粒径の減少に伴って保磁力が著しく低減することを報告した[30]。この結晶粒径と保磁力の関係からわかるように、結晶粒の微細化は磁気特性に敏感に反映される。実効異方性定数の減少に加えて、微細結晶の析出後に、アモルファス相の正の磁気歪みと Fe-Si 相の負の磁気歪みが相殺され、実効的な磁気歪みが 0 近傍になることも FINEMET が優れた軟磁気特性を示す理由の 1 つである。

従来、結晶粒界が磁壁のピンニングサイトとなり、高透磁率・低保磁力を得る妨げになると考えられていた。そのため、軟磁性材料の低損失化に関する研究では、結晶粒径の増加による保磁力低減に関する研究や先に述べたアモルファス材料の研究が着目されていたが、FINEMET の報告を機に、結晶粒の微細化が注目されることになった。1.3 節で述べた磁壁ピンニング型低透磁率コア作製の際に用いた Fe-Zr-Nb-B-Cu 系材料はナノパームと呼ばれ 1990 年鈴木らにより報告されたナノ結晶材料である[32]。

ナノ結晶構造を構築することにより、磁化過程に及ぼす結晶磁気異方性の影響が著しく小さくなるため、透磁率の上昇と保磁力の低減が期待される。加えて、結晶粒径が磁壁のスケールよりも格段に小さいため、磁化進行時の磁壁移動の妨げにならず、低磁気損失が期待される。

本研究では、磁気損失の低減に対して高いポテンシャルが期待される磁化回転を利用し、さらにナノ結晶を構築した。

## 1.5 透磁率の制御法

前節にて、磁化回転の利用とナノ結晶の構築により低磁気損失が期待されることを述べた。本節では、透磁率の制御法に関して記述する。

一般に軟磁性材料は透磁率が高いため、低透磁率磁気コア用材料を作製する際には、何らかの透磁率の制御が必要となり、そのために磁気異方性が広く用いられる。磁気異方性には、

- ① 結晶磁気異方性
- ② 形状磁気異方性
- ③ 誘導磁気異方性
- ④ 応力誘導磁気異方性

があり、磁性材料を磁化する際、その振舞いを決める重要な要素となる。1.3 節で述べたギャップ付きコアや圧粉コアは形状磁気異方性を、磁界中熱処理による透磁率制御型コアは誘導磁気異方性を、部分結晶アモルファスコアは応力誘導磁気異方性をそれぞれ利用し、透磁率を制御したコアである。以下に磁気異方性について説明する。

### (a) 結晶磁気異方性

結晶磁気異方性は本多および茅らにより発見された[33]。例えば、bcc  $\alpha$ -Fe では [100], [110], [111]の 3 つの結晶方向に磁界を印加した時、[100]の方向は他の 2 方向[110], [111]よりも容易に磁化し、より早く磁気飽和に達する。一方、[111]の方向は磁化しにくく、また飽和しにくい。これが結晶磁気異方性である。Nd-Fe-B[34, 35]に代表される希土類系磁石や Fe-Pt[36]に代表される白金系磁石等の硬磁性材料の分野においては、それらの結晶が持つ大きな結晶磁気異方性を有効に利用し、優れた硬磁気特性を得ている。一般的に軟磁性材料において異方性の存在は、保磁力の増加等の磁気特性を劣化させる要因となる。そのため、材料内部の異方性の抑制・排除が所望されるが、方向性珪素鋼板[37]のように、用途に応じ磁化容易面を揃えることで優れた磁気特性を実現した材料もある。本研究では、1.4.2 節で述べたようにナノ結晶を構築することで結晶磁気異方性の影響を抑制した。

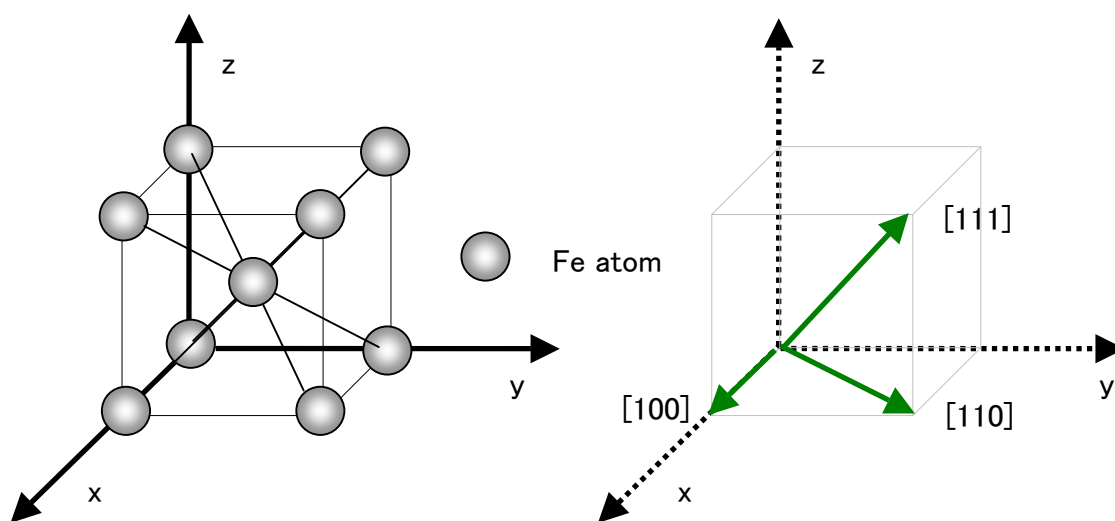


Fig.1-4 Crystal structure of Fe.

## (b) 形状磁気異方性

棒状磁性体のような開磁路磁性体を磁化すると磁性体の端部に磁極が発生する。磁極は磁界の湧き出し口となり，そこから磁性体の外部および内部に磁界が生じる。この磁性体内の磁化方向と逆向きの磁界が反磁界  $H_d$  である。反磁界は真空の透磁率  $\mu_0$ ，磁化  $I$  を用いて次式で与えられる。

$$H_d = -\frac{N}{\mu_0} I \quad (1-4)$$

ここで  $N$  は 0~1 の間の値をとる定数で反磁界係数と呼ばれる。試料が球形でない場合は，方向により反磁界係数が異なるため，反磁界による静磁気エネルギーに差が生じる。磁化は磁性体内部のエネルギーをより小さくする方向に向くため，異方性が生じる。これが形状磁気異方性である。本実験で用いた試料では，幅方向および厚さ方向に対して長手方向が数十倍から数千倍程度の形状比となるため，長手方向の反磁界係数が小さくなり，磁化は長手方向に揃いやすくなる。この反磁界により，磁性体内の実効的な磁界は，外部印加磁界よりも減少する。1.3 節で述べたギャップ付きフェライトコアは磁路の一部にエアギャップを設けることで，圧粉コアは個々の磁性粒子間を非磁性バインダで磁氣的に孤立させることで，磁性体に磁極を発生させ，磁性体内部の実効的な磁界を減じ，実効的な透磁率を低減させている。

**(c) 誘導磁気異方性**

人工的に誘導する磁気異方性を誘導磁気異方性という。誘導磁気異方性の代表的なものに磁界中冷却効果がある。磁界中熱処理では、磁性体に磁界を印加し、磁化を飽和させた状態で熱処理・冷却を行うと磁場方向に異方性が形成される。磁場中熱処理で誘起される異方性は、磁性原子が選択的に配列し磁気的な結合エネルギーを下げることに起因する。磁界中熱処理による透磁率制御型コアは、この誘導磁気異方性を利用した低透磁率コアである。

**(d) 応力誘導磁気異方性**

応力誘導磁気異方性は磁気弾性効果（磁気歪み現象）に起因する。磁性体を磁化した時、その形状が変化する現象を磁気歪みという。この試料の形状の変化は印加磁界の大きさに依存するが、一般に試料が磁気飽和に達したところで飽和する。磁化する前の試料の長さを  $l$ 、磁化した際の形状変化量を  $\Delta l$  とした時、その変化率  $\Delta l/l$  を磁気歪み  $\lambda$  という。磁気飽和時の  $\Delta l$  を  $\Delta l_s$  とすると、

$$\lambda_s = \frac{\Delta l_s}{l} \quad (1-5)$$

となり、 $\lambda_s$  は飽和磁気歪み定数と呼ばれ、この値が磁気歪みの度合いを示す指標となる。一般に  $\lambda_s$  は  $10^{-5} \sim 10^{-6}$  程度と小さな値である。 $\lambda_s$  が正の試料は印加磁界方向に伸び、負の試料は印加磁界方向が縮む。また、逆に  $\lambda_s$  が正の試料に引っ張り応力を加えると、その応力印加方向が磁化容易軸となる。これが応力誘導磁気異方性である。部分結晶アモルファスコアは、アモルファスの試料の一部を結晶化させることで、試料内部に歪みを生じさせ、その歪みにより生じた応力と試料が有する磁気歪みを利用し、透磁率を制御した応力磁気異方性型のコアである。

本研究では、誘導磁気異方性の 1 つであるクリーブ誘導磁気異方性を利用し、透磁率を制御した。クリーブ誘導磁気異方性について次節で説明する。

**1.6 新低透磁率軟磁性材料****1.6.1 一軸異方性の形成**

1.4.1 節で述べたように、一軸異方性を有する磁性体の磁化困難軸方向に磁界を印加すれば、磁化回転により磁化するため、磁壁移動がおこらず、ヒステリシス損失の低減が期待される。ここであらためて Fig.1-2 に着目すると、印加磁界方向が磁化困難軸に近づくにつれ、透磁率が低減することがわかる。すなわち、一軸異方性を有する磁性体への磁化困難軸方向への磁界の印加は、低ヒステリシス損失が期待されることに加えて、透磁率の低減も併せて達成できることがわかる。

先に述べた磁界中熱処理による透磁率制御型コアや部分結晶アモルファスコアも本原理に基づき作製されたが、均一な一軸異方性の誘導を達成することができなかった。そこで本研究では、均一な一軸異方性の誘導手段として誘導磁気異方性の 1 つであるクリープ誘導磁気異方性を用いた。

## 1.6.2 クリープ誘導磁気異方性

クリープ誘導磁気異方性は、試料を塑性変形させた時に生じる異方性であり、しばしば応力を印加しながら熱処理を施すことで試料の塑性変形を促し誘起させる。アモルファス磁性体におけるクリープ誘導磁気異方性は 1980 年 Nielsen らによって最初に報告された[38]。Nielsen らは応力下での熱処理で  $\text{Co}_{73}\text{Mo}_2\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$  および  $(\text{Co}_{0.89}\text{Fe}_{0.11})_{72}\text{Mo}_3\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$  アモルファス薄帯に異方性が誘起されることを示し、磁場中熱処理により誘導される異方性と応力下熱処理で誘導される異方性は、その起源が異なることを報告した[39]。1988 年の吉沢らによるナノ結晶材料 (FINEMET) の報告 [19]を受け、1992 年 Kraus らがナノ結晶材料にもクリープ誘導磁気異方性を適用できることを示した[40]。Kraus らが報告したナノ結晶  $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$  薄帯におけるクリープ誘導磁気異方性の大きさは、同組成試料での磁界中熱処理により誘導された異方性の大きさ[41]よりも 2 桁程度大きなものであった。このクリープ誘導磁気異方性の起源に関しては積極的に研究が行われ、諸説提案された[42-44]。

クリープ誘導磁気異方性を本研究で用いることで期待される長所は、

- ① 磁界中熱処理よりも異方性強度のオーダが 2 桁程度大
- ② 熱処理時の印加張力強度により、異方性強度を制御可能
- ③ 均質な一軸異方性の誘導が可能

等が挙げられる。一般に軟磁性材料は、静磁気エネルギーを減少させるために、還流磁区構造のような外部に磁界を生じない磁区を形成する。還流磁区構造を形成した試料内には、磁界を印加した際、磁壁移動を伴う磁化過程が存在するため、磁化回転のみで磁化するよりも損失が増加する。この還流磁区構造の形成は、一方向に大きな異方性を付与することで抑制される。クリープ誘導磁気異方性は①、②の長所を生かし、③を比較的容易に実現可能であると考えられる。

以上のことから本研究では、ナノ結晶材料に比較的容易に均一な一軸異方性が形成可能であると考えられるクリープ誘導磁気異方性を用いた。



## 1.7 本研究の目的

近年の機器の小型・高性能化の流れを受け、磁性部品にも更なる小型・高性能化が所望される。本研究では、今後の情報通信機器の電力需要の高まりを踏まえ、電源回路出力部で交流分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等の小電力用透磁率制御型磁気コア用の軟磁性材料開発に関する研究を行う。

本研究では、1.5 節で述べたように、Fe-Cu-Nb-Si-B 系アモルファス薄帯に張力下で熱処理を施し、ナノ構造を構築しつつクリープ誘導磁気異方性を付与する。異方性を付与することにより、印加磁界方向に対して垂直方向に磁化容易軸を形成する。異方性付与後の薄帯をトロイダル成形しコアを作製することで、

- ① 磁化回転型磁化過程による鉄損低減
- ② 高飽和磁化によるコアの小型化
- ③ ナノ結晶化による誘導磁気異方性の擾乱要素（結晶磁気異方性）の抑制
- ④ ギャップレスによる漏れ磁束の低減
- ⑤ 高キュリー温度による高温下での動作
- ⑥ 低磁気歪み

が期待され、次世代の低透磁率磁気コアとなると期待される。クリープ誘導磁気異方性を用いた Fe-Cu-Nb-Si-B ナノ結晶トロイダルコアの実現と新しい可能性を模索するために、本研究では、クリープ誘導磁気異方性を有する Fe-Cu-Nb-Si-B 系ナノ結晶材料およびそれを用いて作製したトロイダルコアについて、

- ① 異方性の誘導・緩和過程と結晶化過程の関係の明確化
- ② 熱処理過程簡素化に向けた指針の明確化
- ③ 大量生産可能な異方性誘導過程の検討
- ④ 作製したコアの磁気特性評価

を行うことを目的とする。これらを通じ、小さな超低損失・透磁率制御型ナノ構造トロイダルコア用材料および新たなコア材料作製技術を提案する。

## 1.8 本研究の概要

本論文は全 6 章の構成とし、その内容は以下の通りである。

第 1 章では、本研究の背景、意義、目的等を示し、序論とした。

第 2 章では、本実験で用いた試料について述べた後、各章で共通する実験装置および実験方法を述べた。

第 3 章では、透磁率低減に伴う磁気特性劣化を抑制しつつ簡素な透磁率低減を達成することを目的に、クリープ誘導磁気異方性の誘導過程および緩和過程を結晶化過程と対比させながら詳細に検討した。その結果、熱処理開始温度を試料の結晶化温度以下に設定することおよび結晶化過程における昇温率の増加が、異方性の増加に有効であることを明らかとした。また、一度結晶化した試料には大きな異方性の誘導が困難であることを見いだした。さらに、誘導磁気異方性の熱緩和特性を評価し、クリープ誘導磁気異方性が試料の結晶化温度以下での熱暴露ではほとんど熱緩和せず熱に対して高い安定性を有していることを示すと同時に、応力下での熱処理による結晶化度が高い試料ほど、結晶化温度以上の熱暴露による短時間での異方性の緩和量が少なく、緩和速度が遅くなることを明らかとした。

以上、結晶化過程と異方性誘導および緩和過程の検討から、異方性誘導を伴わず結晶化が進行する過程と急激な異方性誘導を伴いながら結晶化が進行する過程および異方性の安定度が向上する過程の 3 つの過程に分類できることを見いだした。

第 4 章では、第 3 章で得られた結果を踏まえ、低透磁率磁気コア用材料の作製過程をより簡素化することを目的とし、2 つの新しい異方性誘導方法を検討した。

まず、熱処理時間の短縮と長尺試料の 1 回での熱処理を実現するために、ジュール加熱法を検討し、低透磁率・低磁気損失を満足する適当な電流密度の範囲を明らかとするとともに、電流密度を適度を選択することで 0.1 sec という極めて短い熱処理時間で異方性の誘導がほぼ完了することを見いだした。また、異方性エネルギーが熱処理時の張力にほぼ比例することから、張力値を変化させることで、所望する透磁率を比較的容易に得られることを示した。さらに、低昇温率に設定することで、均質かつ均一な試料が得られることを明らかとし、均一な異方性強度を有する長尺試料の作製が達成できることを示した。

次に、張力あたりの異方性増加のために試料の伸びを効果的に得ること、およびコア作製の長尺の薄帯を短時間で大量に作製するための指針を得ることを目的に、応力下連続焼鈍法を検討した。応力下連続焼鈍 (CSA: Continuous Stress-Annealing) により作製した試料は、試料を加熱炉内に固定して熱処理を施す手法 (FCS: Fixed Configuration of a Sample) により作製した試料に比べ、試料の伸びを有効に得られる熱処理法であることを明らかとした。さらに、この方法により得られる張力あたりの異方性エネルギーは、他の研究者の既報値と比べて 2~3 倍、FCS と比べて 1.5 倍程度増加することを示した。また、約 3 m/min の高速な移動速度においても、十分な異方性を誘導可能であることを示すと同時に、長尺試料に均一な異方性の付与を達成した。

応力下連続焼鈍法では、異方性強度は同程度でありながら、試料内のアモルファス相と結晶相の構成割合の異なる試料を比較的簡単にかつ大量に作製できることが判明し、物性面を研究する際の試料作製手法としても有効な熱処理法であることを明らかとした。

第 5 章では、実際にトロイダルコアを作製しその磁気特性を評価した。まず、極端なコア径の減少が磁気損失の増加をもたらすことを示し、理論計算から、良好な磁気特性を維持できる限界のコア径が存在することを明らかとした。コア径が限界コア径よりも大きい時は、コアの損失値はうず電流損失の計算値と一致し、理論限界までの低損失化を達成するとともに、その損失値が最大磁束密度 0.1 T、周波数 0.1 MHz において、他の代表的な低透磁率コアの損失値よりも、約 8 割強小さくなることを示した。また、透磁率は 1 MHz まで一定な値を示すことを明らかとした。さらに、低透磁率コアとしての性能指標の 1 つとなる直流重畳特性を評価し、直流重畳磁界値が異方性磁界付近まではほぼ一定な透磁率および損失値が得られることを示し、磁気特性が劣化する重畳磁界の値が、透磁率を同程度に制御したギャップ付きのフェライトコアよりも約 2.5 倍大きくなることを明らかとした。

機器の小型化・高密度実装化に伴う機器内の温度上昇および本研究で用いた試料の高いキュリー温度を考慮し、作製したコアの高温特性を評価したところ、300 °C 付近まで透磁率・損失とも一定値を示すことが明らかとなった。また、動作温度の上昇に伴い、限界コア径が変化することを示し、動作温度の上昇による透磁率の変化や磁気損失の増加が無いことを明らかとした。さらに、異方性エネルギーと飽和磁化の温度依存性を評価し、透磁率が動作温度の影響を受けず、一定値を示す理由を明らかとした。

最後に、第 6 章にて本研究を総括し、今後の課題および展望を示した。

## 参考文献

- [1] J. K. Watson, *Applications of Magnetism*, New York: John Wiley & Sons, (1980) 241.
- [2] 例えば, 太田 恵造, 磁気工学の基礎 I, 共立出版, (1994) 186.
- [3] H. Fukunaga, T. Eguchi, K. Koga, Y. Ohta, H. Kakehashi, *IEEE Trans. Magn.*, **26** (1990) 2008.
- [4] H. Masumoto, T. Yamamoto, *J. Jpn. Inst. Met.*, **1** (1937) 127.
- [5] 例えば, K. Yanagimoto, K. Majima, S. Sunada, Y. Aikawa, *IEEE Trans. Magn.*, **40** (2004) 1691.
- [6] I. Endo, I. Otsuka, R. Okuno, A. Shintani, M. Yoshino, M. Yagi, *IEEE Trans. Magn.*, **35** (1999) 3385.
- [7] M. Yagi, I. Endo, I. Otsuka, H. Yamamoto, R. Okuno, H. Koshimoto, A. Shintani, *J. Magn. Magn. Mater.*, **215-216** (2000) 284.
- [8] I. Endo, H. Tatumi, I. Otsuka, H. Yamamoto, A. Shintani, H. Koshimoto, M. Yagi, K. Murata, *IEEE Trans. Magn.*, **36** (2000) 3421.
- [9] M. Manivel Raja, N. Ponpandian, B. Majumdar, A. Narayanasamy, K. Chattopadhyay, *Mater. Sci. Eng.*, **A 304-306** (2001) 1062.
- [10] H. Fukunaga, H. Tanaka, T. Yanai, M. Nakano, J. M. Song, *J. Magn. Magn. Mater.*, **254-255** (2003) 519.
- [11] 茂松 信幸, 長崎大学大学院工学研究科電気情報工学専攻 修士論文, (1995) 31.
- [12] Y. Yoshizawa, S. Fujii, D. H. Ping, M. Ohnuma, K. Hono, *Scripta Mater.*, **48** (2003) 2003.
- [13] 池添 広昭, 長崎大学大学院工学研究科電気情報工学専攻 修士論文, (1998) 38.
- [14] 網川 昌明, 繁田 進, 電気学会マグネティックス研究会資料, **MAG-96-235-248** (1996) 21.
- [15] 例えば, 電気学会マグネティックス技術委員会編, 磁気工学の基礎と応用, コロナ社, (2000) 47.
- [16] T. Masumoto, R. Maddin, *Acta Met.*, **19** (1971) 725.
- [17] H. H. Liebermann, C. D. Graham, Jr., *IEEE Trans. Magn.*, **12** (1976) 921.
- [18] H. S. Chen, C. E. Miller, *Rev. Sci. Instrum.*, **41** (1970) 1237.
- [19] Y. Yoshizawa, S. Oguma, K. Yamauchi, *J. Appl. Phys.*, **64** (1988) 6044.
- [20] G. Herzer, *IEEE Trans. Magn.*, **25** (1989) 3327.
- [21] G. Hampel, A. Pundt, J. Hesse, *J. Phys.: Condens. Mater.*, **4** (1992) 3195.
- [22] A. Pundt, G. Hampel, J. Hesse, *Z. Physik*, **B 87** (1992) 65.
- [23] N. Wang, F. Zhu, P. Haasen, *Phil. Mag. Lett.*, **64** (1991) 157.
- [24] B. Hofmann, T. Reininger, H. Kronmüller, *Phys. Stat. Solidi*, **(a) 134** (1992) 2471.
- [25] K. Hono, D. H. Ping, M. Ohnuma, H. Onodera, *Acta Mater.*, **47** (1999) 997.
- [26] M. Ohnuma, K. Hono, H. Onodera, J. S. Pedersen, S. Linderoth, *Nanostruc. Mater.*, **12** (1999) 693.
- [27] K. Hono, D. H. Ping, *Mater. Characterization*, **44** (2000) 203.
- [28] M. Ohnuma, D. H. Ping, T. Abe, H. Onodera, K. Hono, Y. Yoshizawa, *J. Appl. Phys.*, **93** (2003) 9186.
- [29] R. Alben, J. J. Becker, M. C. Chin, *J. Appl. Phys.*, **49** (1978) 1653.

- [30] G. Herzer, *IEEE Trans. Magn.*, **26** (1990) 1397.
- [31] G. Herzer, *Mater. Sci. Eng.*, **A 133** (1991) 1.
- [32] K. Suzuki, N. Kataoka, A. Inoue, A. Makino, T. Masumoto, *Mater. Trans. JIM-31* (1990) 743.
- [33] K. Monda, S. Kaya, *Sci. Repts. Tohoku Imp. Univ.*, **15** (1926) 721.
- [34] J. J. Croat, J. F. Herbst, R. W. Lee, F. E. Pinkerton, *J. Appl. Phys.*, **55** (1984) 2078.
- [35] M. Sagawa, S. Fujiwara, H. Yamamoto, Y. Matsuura, *J. Appl. Phys.*, **55** (1984) 2083.
- [36] O. A. Ivanov, L. V. Solina, V. A. Demshina, L. M. Magat, *Fiz. Metal. Metalloved.*, **35** (1973) 35.
- [37] N. P. Goss, U. S. Patent 1965559 (1934).
- [38] O. V. Nielsen, H. J. V. Nielsen, *Solid State Commun.*, **35** (1980) 281.
- [39] O. V. Nielsen, H. J. V. Nielsen, *J. Magn. Magn. Mater.*, **22** (1985) 21.
- [40] L. Kraus, K. Závěta, O. Heczko, P. Duhaj, G. Valsák, J. Schneider, *J. Magn. Magn. Mater.*, **112** (1992) 275.
- [41] Y. Yoshizawa, K. Yamauchi, *IEEE Trans. Magn.*, **25** (1989) 3324.
- [42] G. Herzer, *IEEE Trans. Magn.*, **30** (1994) 4800.
- [43] B. Hofmann and H. Kronmüller, *Nanostructure Mater.*, **6** (1995) 961.
- [44] B. Hofmann, H. Kronmüller, *J. Magn. Magn. Mater.*, **152** (1996) 91.