

# 気固反応によりマグネタイトから合成した Fe 基ミクロン粒子への酸化被膜の低温形成

°宮澤 守, 小川 智之, 飛世 正博, 齊藤 伸 (東北大学)

Low temperature formation of oxide film on Fe-based micron particles synthesized from magnetite by gas-solid reaction

Miyazawa Mamoru, Ogawa Tomoyuki, Tobise Masahiro, Shin Saito (Tohoku University)

**はじめに** 近年, 低炭素社会への移行の中で, 家電製品における消費電力の削減が進められており, 高効率かつ小型な電源デバイスの需要が増している. これに用いられる軟磁性材料には, 動作周波数での渦損を軽減するために, 高電気抵抗, 高飽和磁化, 低保磁力という 3 つの特性を併せ持つことが求められ, Fe 基圧粉磁心材料が注目されている. 本用途に用いられるミクロン径の軟磁性粉は, 渦損対策のために後工程で粒子表面に絶縁材料を被覆させて使用されているが, 被覆絶縁材料の体積による飽和磁化の低下や軟磁性導出のための歪取り焼鈍熱処理時の被膜の分解を抑制することに課題がある. そこで本研究では気固反応を駆使して粉末作製時に磁性粉の表層を酸化させることにより, 極薄絶縁被膜付きの Fe 基ミクロン粒子の作製を目指した.

**実験結果** Fe 基ミクロン粒子に高飽和磁化軟磁性を導出するためには, 粒子内の集合組織の磁歪と結晶磁気異方性の調整が必要である. そこで今回の検討では極少量の Si を固溶させた Fe のナノメートル寸法の多結晶からなる軟磁性粒子の作製を提案した. 具体的には原料を Si 添加マグネタイト ( $(\text{Fe}_{0.98}\text{Si}_{0.02})_3\text{O}_4$ ) とし, これを結晶相の変化を伴う還元により軸方位無配向のナノ多結晶粒子の作製を試みた. Fig. 1 に原料粉と還元粉の X 線回折プロファイル (XRD) を示す. 参考のため逆スピネル型マグネタイトと体心立方型 (bcc) 鉄の粉末プロファイルも示している. 還元は水素ガスを用い大気圧下で  $600^\circ\text{C}$  に加熱しながら行った. 原料粉および還元粉のプロファイルには, それぞれ逆スピネル, bcc 由来の回折線のみが観測されている. これらから今回の実験では還元が十分に進んでおり, 酸化相が残存していないことがわかる.

続いて還元粉に酸化皮膜を設けるために, 乾燥空気を用い大気圧下で加熱しながら酸化を行った. Fig. 2 に 1 時間の酸化プロセス後の試料粉の飽和磁化  $M_s$  および保磁力  $H_c$  の酸化温度依存性を示す. 酸化温度の高温化にともない  $M_s$  は減少,  $H_c$  は増加し, 共に  $120^\circ\text{C}$  から  $130^\circ\text{C}$  の間で大きく変化した. Fig. 3 に酸化プロセス後の試料粉の体積抵抗率  $\rho$  の酸化温度依存性を示す. 酸化温度を高温化すると  $\rho$  は  $120^\circ\text{C}$  までは緩やかに増加し  $120^\circ\text{C}$  から  $130^\circ\text{C}$  の間では 5 桁以上も著しく増加した. さらに温度を増加させた場合  $\rho$  はほとんど変化しなかった. これらの結果は, マグネタイトからの還元粉は  $120^\circ\text{C}$  から  $130^\circ\text{C}$  という低温で酸化が一気に進行することが示唆している. 以上により  $120^\circ\text{C}$  付近にて酸化の活性化ポテンシャルの解析を行うことで極薄酸化皮膜付き Fe 基ミクロン粒子を形成できることがわかった.

**謝辞:** Si 添加マグネタイト原料粉は関東電化株式会社により提供を受けた.

本研究の一部は, 文科省 革新的パワーエレクトロニクス創出基盤技術研究開発事業の支援を受けて行われた.

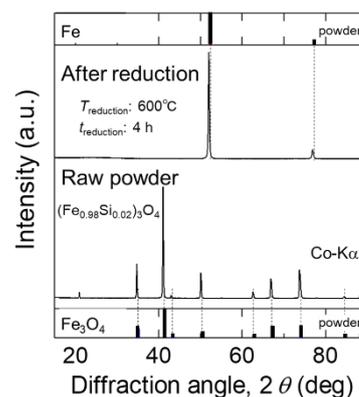


Fig. 1 XRD profiles for raw and after reduction powders. Powder patterns for inverse-spinel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  and bcc Fe are also shown.

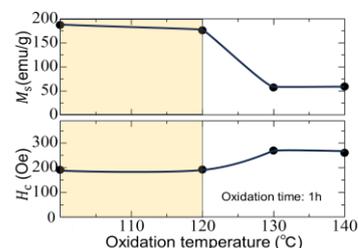


Fig. 2 Dependence of saturation magnetization,  $M_s$ , and coercivity,  $H_c$ , of Fe-Si powders on oxidation temperature.

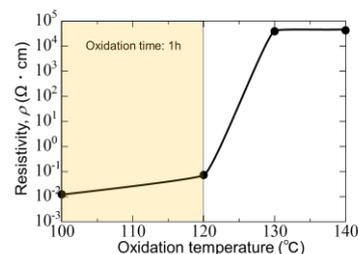


Fig. 3 Dependence of the volume resistivity,  $\rho$ , of FeSi powders on oxidation temperature.

# 圧粉コアの直流バイアス特性と $B-H$ カーブ特徴解析の相関

大沼智幸<sup>1</sup>、小野暢久<sup>1</sup>、岡本聡<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup> 東北大多元研, <sup>2</sup> 東北大学 CSIS)

## Correlation between iron loss and features of $B-H$ curves of dust cores under the application of dc bias field

T. Onuma<sup>1</sup>, N. Ono<sup>1</sup>, and S. Okamoto<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup>IMRAM, Tohoku Univ., <sup>2</sup>CSIS, Tohoku Univ.)

### はじめに

近年、再生可能エネルギーや電気自動車の普及に伴い、電力変換器の小型化・効率化が求められており、パワーデバイスの効率向上に加え、受動素子の損失低減が不可欠な状況となっている。特にトランスやインダクタにおいては高周波帯での損失低減が急務であり、損失の多くを占める鉄損のメカニズム解明が待たれている。また、インダクタ材料は直流バイアスを印加して使用されることが多く、バイアス印加時の鉄損の挙動は重要な性能指標である。我々はバイアス印加時の鉄損挙動を  $B-H$  カーブの形状の変化と関連付けて考察し、主成分分析(PCA)を用いることで、 $B-H$  カーブの非線形な形状の変化を数値的に捉えることを試みてきた<sup>1)</sup>。本研究では Magnetics 社製センダスト(Kool M $\mu$ )<sup>®</sup>圧粉コアおよび FeSi(XFlux)<sup>®</sup>圧粉コアの鉄損、 $B-H$  カーブ形状を解析した。

### 実験方法

鉄損は2コイル法で測定し、直流バイアスは3次コイルを用いて印加した。各バイアス条件において、磁束密度  $\Delta B$  を 40 mT, 周波数  $f$  を 100 kHz に固定して鉄損および  $B-H$  カーブデータを取得し、得られた  $B-H$  カーブデータを PCA により解析した。

### 実験結果

Fig.1 にセンダストおよび FeSi 圧粉コアの鉄損のバイアス特性を示す。FeSi の鉄損はバイアスに対し単調に低下するのに対し、センダストの鉄損は一旦低下した後に再び増加する。Fig.2 にセンダスト圧粉コアにバイアス磁界を印加した際の  $B-H$  カーブの形状変化を示す。磁束密度  $B = 0$  T 付近ではバイアス印加にともない  $B-H$  カーブ形状は Upper branch、Lower branch とともに左にシフトする。一方、FeSi 圧粉コアの場合は Fig.3 に示すとおり  $B = 0$  T 付近で Upper branch が右に、Lower branch が左に変化する。Fig.4 は各コアの  $B-H$  カーブの Upper branch の挙動を PCA で解析した結果である。図中の数値はバイアス磁界 (A/m) である。PC1 のスコアはバイアス印加による  $B-H$  カーブの傾きの変化、PC2 のスコアは  $B-H$  カーブの非線形な形状の変化を表現している。センダストの PC2 スコアにはバイアス 2000~2200 A/m において不連続な変化が観測される。これは Fig.1 の鉄損変化と対応している。このように材料毎に異なる DC バイアス特性に対して、PCA により  $B-H$  カーブ挙動が明確に異なっていることを示すことができた。

### 謝辞

本研究は文部科学省 革新的パワーエレクトロニクス創出基盤技術研究開発事業 JPJ009777 およびデータ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト事業(データ創出・活用型磁性材料研究拠点)JPMXP1122715503 の助成を受けたものです。また本研究では PCA ツールとしてトヨタ自動車㈱の材料解析クラウドサービス WAVEBASE を使用しました。

### 参考文献

- 1) T. Onuma, Z. Li and S. Okamoto, IEEE Trans. Magn., doi: 10.1109/TMAG.2023.3281548.

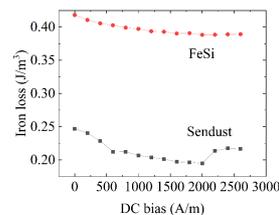


Fig.1 Iron loss of Sendust and FeSi dust cores under DC bias fields.

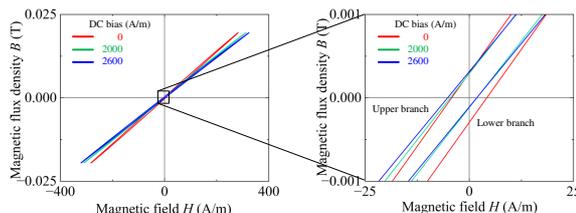


Fig. 2  $B-H$  curves of a Sendust dust core under DC bias fields.

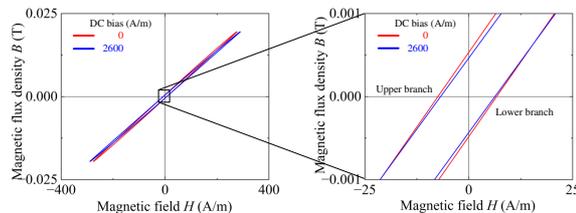


Fig. 3  $B-H$  curves of an FeSi dust core under DC bias fields.

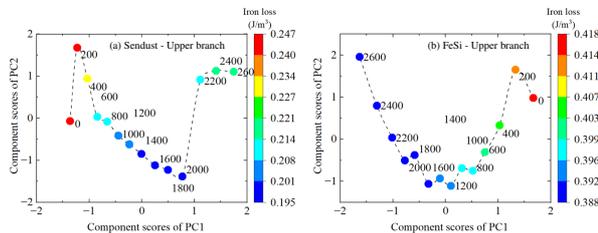


Fig.4 Shape analyses of upper branches  $B-H$  curves of (a) Sendust and (b) FeSi.

## 形状の異なる電解鉄粉からなるトロイダルコアにおける磁気特性

児玉雄大, グエンフォン, 宮崎孝道, 室賀翔, 遠藤恭  
(東北大)

Study on magnetic properties of toroidal cores composed of electrolytic iron powders with different shapes  
Yudai Kodama, Phuong Nguyen, Takamichi Miyazaki, Sho Muroga and Yasushi Endo  
(Tohoku Univ.)

**はじめに** カーボンニュートラルの実現へ向け、パワーエレクトロニクス技術の進歩が必要不可欠である。スイッチング電源等のパワエレ機器を構成するトランス、インダクタといった受動素子は損失・体積割合が大きく、高飽和磁束密度と低損失を満たす新たな軟磁性材料の開発が必須な状況である。なかでも、金属磁性粉末は高飽和磁束密度を有し、自由に形状を変えることができるため、軟磁性材料として近年注目を集めている。しかしながら、フェライトコアと比較すると抵抗が低く、渦電流が流れやすいため、損失が大きといった課題を抱えている。

本研究では、軟磁性材料として高飽和磁束密度を有するさまざまな形状を有する電解鉄粉に着目し、それらの圧粉磁心を作製し、磁気特性の形状による効果を検討した。

**実験方法** 本研究では、試料として、図1に示すように、針状、扁平状、球状といった異なる形状の数十  $\mu\text{m}$  程度の電解鉄粉からなるトロイダルコアを用いた。これらのトロイダルコアは以下のように作製した。すなわち、まず、鉄粉とわずかな量のバインダを十分に混練させた後、あらかじめ準備した金型を用いてプレス機によりトロイダルコアを圧粉成形した。成形後、150  $^{\circ}\text{C}$  一定の温度で2時間熱処理を施し、コアの作製を行った。

作製したコアの構造解析と組成分析は、SEM, XRD および EDX を用いた。また、それらの磁気特性評価には、B-H アナライザ、インピーダンスアナライザおよび VSM を用いた。なお、これらの評価はすべて室温で行った。

**結果** 図2に形状の異なる電解鉄粉からなるトロイダルコアにおけるコアロス(1周期)の周波数依存性を示す。すべてのコアについて低周波帯ではコアロスは低く一定となり、高周波帯では、周波数の増加とともに、コアロスが増加した。また、扁平状と比較して、針状と球状におけるコアロスの増加が数十 kHz 程度の低い周波帯で発生し、その変化も顕著であった。これらの違いは、粒子形状に起因するものである。すなわち、針状の場合には、圧粉磁心にした際に粒子同士が絡まりあい、粒子間の渦電流損によるものと考えられる。また、球状の場合には、針状、扁平状と比較すると粒子の断面積が大きいため、粒子内で発生する渦電流損によるものと考えられる。以上の結果は、粒子形状を変えることで、磁気特性の制御が可能であることを示唆している。

**謝辞** 本研究の一部は、文部科学省革新的パワーエレクトロニクス創出基盤技術研究開発事業 JPJ009777 のもとで行われました。また、東北大学国際集積エレクトロニクス開発センター(CIES)および東北大学先端スピントロニクス研究開発センター(CSIS)の支援のもとで行われました。

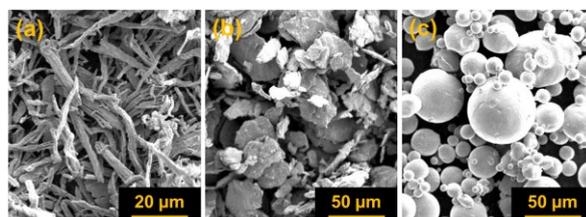


Fig. 1 : SEM images of electrolytic iron powders with different shape ((a) : Needle (b) : Flake (c) : Spherical)

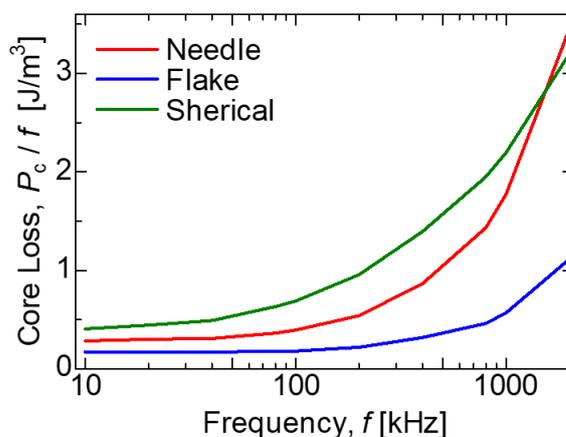


Fig. 2 : Frequency dependence of core loss per one cycle at maximum magnetic flux density ( $B_m$ ) of 10 mT in the toroidal cores composed of electrolytic iron powders with different shapes.

# 磁化反転過程に基づく各種トロイダル磁心の鉄損解析

小野 暢久<sup>1</sup>、上原 裕二<sup>2</sup>、遠藤 恭<sup>3,4</sup>、吉田 栄吉<sup>1</sup>、及川 英彦<sup>5</sup>、菊池 伸明<sup>1</sup>、岡本 聡<sup>1,4,6</sup>

(<sup>1</sup>東北大多元研、<sup>2</sup>磁気デバイス研究所、<sup>3</sup>東北大工、<sup>4</sup>東北大 CSIS、<sup>5</sup>トーキン、<sup>6</sup>NIMS)

Iron loss analyses of toroidal cores of various materials based on magnetization reversal processes

N. Ono<sup>1</sup>, Y. Uehara<sup>2</sup>, Y. Endo<sup>3,4</sup>, S. Yoshida<sup>1</sup>, H. Oikawa<sup>5</sup>, N. Kikuchi<sup>1</sup>, S. Okamoto<sup>1,4,6</sup>

(<sup>1</sup>IMRAM, Tohoku Univ., <sup>2</sup>Magnetic Device Laboratory, <sup>3</sup>Graduate School of Eng. Tohoku Univ.,  
<sup>4</sup>CSIS, Tohoku Univ., <sup>5</sup>TOKIN, <sup>6</sup>NIMS)

## はじめに

パワーエレクトロニクスの小型化・高効率化実現に向けて、高周波領域における磁性素子の低損失化への要求が高まっている。そのためには鉄損起源を明らかにすることが重要であるが、広く用いられている Steinmetz 式による解析は現象論的な解釈に留まっており、その物理的メカニズムはまだよく理解されていない。この課題に対して、我々はセンダスト圧粉磁心に対して、正弦波励磁のブロードバンド鉄損計測を行い、過去に提案された 2 種の鉄損解析モデル(磁化過程分離モデル[1],実効磁壁モデル[2])を組み合わせることにより、磁化反転過程に基づく鉄損要因解析を行ってきた[3]。本研究では、本手法を他の材料系に展開して材料毎の鉄損と磁化過程解析結果との相関を調べることを進めている。まずは MnZn フェライト磁心に対する解析結果を既に報告したセンダスト圧粉磁心の結果と比較した結果を報告する。

## 実験方法

トロイダル形状のセンダスト圧粉磁心および MnZn フェライト磁心(外径 13 mm、内径 8 mm、厚み 5 mm)に対し、2 コイル法及び共振法[4]を併用して 100 Hz から 55 MHz の範囲でのブロードバンド鉄損計測を行った。それらのデータを基に磁化過程分離モデルおよび実効磁壁モデルを用いて要因解析を行った。

## 実験結果

得られた一周周期当たりの鉄損  $P_c$  の測定結果(データ点)及び解析結果(線)を Fig.1 に示す。塗りつぶし・白抜きマークは 2 コイル法・共振法の結果を表しており、色の濃(丸マーク)・淡(三角マーク)はセンダスト圧粉磁心、MnZn フェライト磁心を表している。また、実線・点線は解析によって得られた、不可逆および可逆磁化過程を要因とする鉄損成分を表している。低周波・高周波領域では不可逆過程・可逆過程がそれぞれ支配的であり、実験結果を良く再現できている。また、実効磁壁モデルより得られる実効磁壁数  $n_{\text{eff}}$  と磁壁ダンピング  $\beta$  の比  $n_{\text{eff}}/\beta$  の周波数依存性を Fig.2 に示す。両試料において  $n_{\text{eff}}/\beta$  の値は周波数とともに増加し、特定の周波数以上で減少ないし飽和する傾向が見られ、飽和に達する周波数と Fig.1 に示す、可逆磁化過程が支配的になる周波数はよく一致している。これらの結果より、不可逆磁化過程は磁壁移動、可逆磁化過程は磁壁数の飽和、すなわち磁化回転への移行に対応するものと考えられる。したがって、高周波領域における鉄損の大幅な増加は、センダスト、フェライトともに磁壁移動から磁化回転への磁化反転過程の変化を伴っていると結論付けられる。両者を比較すると、フェライトの方が低周波領域で鉄損が低いが、センダストよりも低い周波数、1 MHz 付近で  $n_{\text{eff}}/\beta$  が飽和し、鉄損が急増している。これら磁化過程に関する周波数特性の違いに関して、比透磁率(センダスト: 25、フェライト: 2,700)、磁気共鳴、伝導率特性、磁区構造などの観点から考察を進めている。

## 謝辞

本研究は文科省革新的パワーエレクトロニクス創出基盤技術研究開発事業 JPJ009777 の支援の下で行われた。

## 参考文献

- [1] C. Beatrice, *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **429**, 129 (2017), [2] Y. Sakaki, IEEE Trans. Magn., **MAG-16**, 569 (1980),  
[3] N. Ono, *et al.*, IEEE Trans. Magn. (to be published), [4] M. Mu, *et al.*, IEEE Trans. Power Electro. **29**, 4374 (2014)

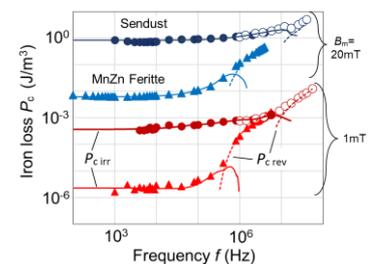


Fig.1. Experimental iron loss per cycle (marks) and analyzed ones (lines) of Sendust dust core (circle) and MnZn ferrite core (triangle).

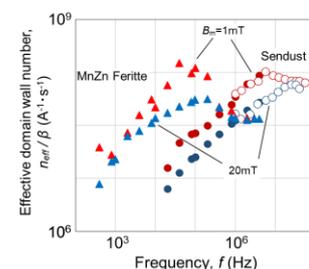


Fig.2. Effective domain wall number  $n_{\text{eff}}/\beta$  of Sendust dust core and MnZn ferrite core.

# パワエレ用軟磁性粒子測定のためのトランス結合型透磁率測定装置の改良

田丸 慎吾  
(産総研)

Modification of transformer coupled permeameter for measuring a soft magnetic particle targeting power electronics applications

S. Tamaru  
(AIST)

## はじめに

パワエレ技術は、脱炭素社会実現に向けた中核技術の一つに位置づけられており、その重要性は近年益々高まってきている。現時点ではインダクタコアの損失が周波数に伴い急激に増加し、回路全体の高周波限界を決めてしまっているため、コア用軟磁性材料の損失機構の解明及びその低減は喫緊の課題である。

重要なパワエレ用インダクタコアの一つに圧粉磁心がある。これはアトマイズ磁性粉末材料をコア形状に加圧成型したもので、粒子表面に酸化膜が形成され渦電流が抑えられるため、数 100 kHz 程度までは優れた特性を示す[1]。しかしパワエレ回路の更なる高周波化のため、より低損失の材料が求められている。

従来の透磁率測定はコア最終形状のみ測定可能であったが、粉末状態、理想的には単一粒子の測定ができれば、高周波特性や損失機構の詳細がより明らかになり、高性能な圧粉磁心材料の創成に繋がる事が期待される。この目的のため、本研究では、我々がマイクロ波帯の透磁率測定のために開発したトランス結合型透磁率測定装置(Transformer coupled permeameter, 以下 TC-Perm)の下限周波数を拡張し[2]、100 kHz - 100 MHz に渡って圧粉磁心用単一磁性粒子の透磁率測定を可能にする改良を行った。

## 実験結果

Fig. 1 に治具周りの構成図及び写真、治具の透過係数  $S_{21}$  を示す。治具は 2 つの短絡終端された平面導波路 (CPW1,2) から構成されており、信号検出する CPW2 の出力インピーダンスは極めて低い。一方その信号を増幅する低雑音アンプ(LNA)の入力インピーダンスは  $50 \Omega$  であり、従来の TC-Perm ではこれらが直接接続され、その結果大きなインピーダンス不整合が生じていた。この問題を解決するため、巻線比 1:7 のインピーダンス整合トランス及び、そのトランスと CPW2 間を接続する、特性インピーダンスが約  $0.9 \Omega$  の同軸ケーブルを作製し、Fig. 1 に示す通り接続した。その結果インピーダンス不整合が解消され、数 MHz 以下の帯域で  $S_{21}$  が約 16 dB 向上、つまり巻線比だけ信号が昇圧されていることが確認された。

次にこの構成の TC-Perm を用いて、直径約  $50 \mu\text{m}$  の球形をした  $\text{Fe}_2\text{B}$  アトマイズ単一粒子を測定したところ、Fig. 2 に示す通り、200 kHz - 100 MHz に渡って良好な感度で試料に由来する信号が観測出来た。ここで、70 MHz 近傍に共振的な振る舞いが見えるが、これは CPW2 とインピーダンス整合トランス間の反射によって生じるアーティファクトであり、校正によって取り除くことが出来る。

発表では、TC-Perm の低周波限界拡張に伴い観測された従来未知のノイズや残留信号及びその除去方法、拡張後の装置の校正方法並びにそれによって得られる単一磁性粒子の透磁率測定結果について報告する。

## 参考文献

- 1) 住友電工テクニカルレビュー、2016年1月号 No.188,      2) J. Magn. Mater. 501, 166434(2020).

## 謝辞

本研究は文部科学省 革新的パワーエレクトロニクス創出基盤技術研究開発事業 JPJ009777 の助成を受けたものです。

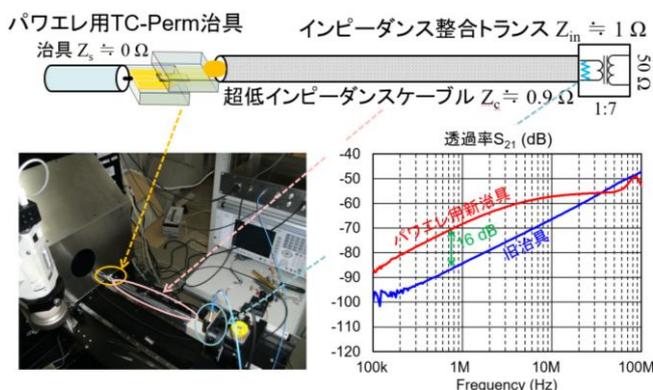


図 1、パワエレ用 TC-Perm 治具の構成、写真及び  $S_{21}$ 。

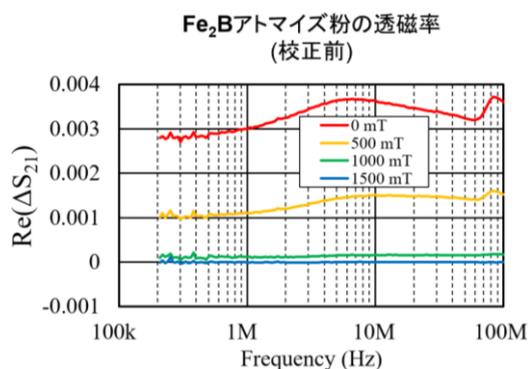


図 2、パワエレ用に改良した TC-Perm による  $\text{Fe}_2\text{B}$  アトマイズ粒子の測定結果。