

高透磁率を有する 面内一軸異方性 CoFeNi-MgF₂ ナノグラニューラ膜

直江正幸、曾根原誠*、宮地幸祐*、佐藤敏郎*、室賀翔**、遠藤恭**、小林伸聖、荒井賢一
(電磁研、*信州大、**東北大)

In-plane anisotropic CoFeNi-MgF₂ nanogranular films having low anisotropy field for high permeability at VHF band
M. Naoe, M. Sonehara*, K. Miyaji*, T. Sato*, S. Muroga**, Y. Endo**, N. Kobayashi, K-I. Arai
(DENJIKEN-Res. Inst. EM Mater., *Shinshu Univ., **Tohoku Univ.)

はじめに

一軸異方性ナノグラニューラ膜は、8 kA/m を超えるような異方性磁界 H_k を容易に呈し、かつ比抵抗 ρ が高いため、UHF~SHF 帯薄膜材料として有望である。しかし、高い H_k は磁化困難軸の透磁率低下をもたらすため、次世代のオンチップ POL(Point Of Load)電源用途のような 100 MHz 付近の VHF 帯で 100 以上の比透磁率と低損失を両立するには、むしろ適度な H_k が重要となる。これまで、高い飽和磁化 M_s および低い結晶異方性定数 K_1 の二元 CoFe 合金およびフッ化物を用いた面内一軸異方性ナノグラニューラ膜について検討したが、CoFe の比較的高い正の磁歪定数 λ により膜の異方性が影響を受け、低 λ だが高 K_1 となる Co-rich 合金組成域に使用が限定されるため、高透磁率化が不十分であった。高 M_s 、低 λ 、および低 K_1 の CoFe 代替材は限られるが、本研究では、CoFe の正磁歪を Ni の負磁歪により低減できるため Fe-rich にでき、低 K_1 で高 M_s も保てることを期待される三元 CoFeNi 合金を採用し、MgF₂ マトリックスのナノグラニューラ膜作製を試みた。

実験方法

タンデムスパッタ装置の陰極を CoFeNi 合金とし、組成を Co₆₀Fe₂₅Ni₁₅、Co₇₀Fe₂₀Ni₁₀、および Co₈₀Ni₁₅Ni₅ (全て at. %) とした。この三組成では、いずれの M_s も Co₈₀Fe₂₀ (at. %) と同等の約 1.9 T である一方、 λ および K_1 は Co₈₀Fe₂₀ の +10 ppm および -5×10^4 J/m³ よりも低いが、Co-rich であるほど零磁歪に近づき、 K_1 が負に高くなる特徴がある。もう一つの陰極には MgF₂ 焼結体を用いた。陰極と対向する水冷陽極に設置のガラス基板を公転させることで、プラズマを立てた両陰極上を交互に通過させ、磁界中成膜した。 ρ (=膜組成) は両陰極への投入電力比、厚みは成膜時間で制御した。その他条件は、0.33 m/s の基板周速、 1×10^{-5} Pa 以下の真空到達、および 1.07 Pa の Ar 成膜ガス圧である。試料は、VSM による静磁化測定、短絡マイクロストリップライン法による透磁率測定、および直流四探針法による比抵抗測定などにより評価した。

実験結果

Co₆₀Fe₂₅Ni₁₅-MgF₂ 膜の膜厚は 539 nm、比抵抗は 14.7 $\mu\Omega\cdot\text{m}$ であった。Fig. 1 は本膜の磁気特性である。成膜中の基板への直流磁界印加方向に沿った面内磁化容易軸となっており、磁歪によって一軸異方性が影響を受けている様子はない。 ρ および M_s が本膜と同じ約 15 $\mu\Omega\cdot\text{m}$ および約 1.1 T になるよう成膜した Co₈₀Fe₂₀-MgF₂ 膜と比較すると、 H_k は約 17% 減少した (6→5 kA/m)。これにより、低周波での静的な μ' は、これも Co₈₀Fe₂₀-MgF₂ 比で 30% 増加した (100→130)。強磁性共鳴周波数は僅かに低下したが、100 MHz 付近での μ'' は低い。この低 H_k と高透磁率化は、Co₆₀Fe₂₅Ni₁₅ が Co₈₀Fe₂₀ よりも低 K_1 かつ低 λ であることに起因すると考えられる。

謝辞

本研究の一部は、JST A-STEP、JPMJTR22R9 の支援を受けた。

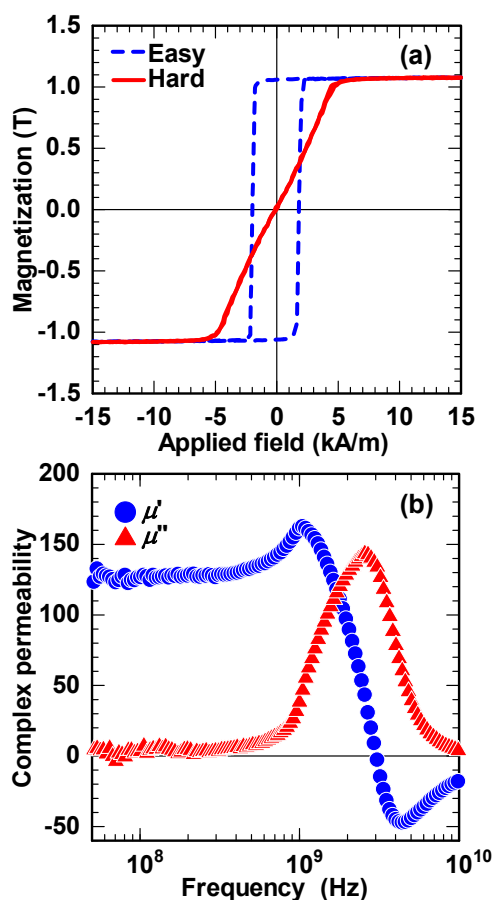


Fig. 1 In-plane magnetic properties of Co₆₀Fe₂₅Ni₁₅-MgF₂ film having thickness of 539 nm and resistivity of 14.7 $\mu\Omega\cdot\text{m}$: (a) Magnetization curves and (b) Complex permeability spectra of magnetic hard axis.

サブミクロン Fe-Ni-B アモルファス微粒子の構造と磁気特性

若林 和志, 宮崎 孝道, 室賀 翔, 遠藤 恭 (東北大学)

The structure and magnetic properties of submicron Fe-Ni-B amorphous particles

Kazushi Wakabayashi, Takamichi Miyazaki, Sho Muroga, Yasushi Endo (Tohoku Univ.)

はじめに

数 10MHz~数 GHz で動作するインダクタや電磁ノイズ抑制体などに用いられる軟磁性材料には、低損失と高い共鳴周波数が要求される。その材料候補として、グラニューラ薄膜やミクロン径の微粒子が挙げられるが、生産性や損失の観点から実用化には課題が残っている。我々のグループでは、その材料候補の一つとして、強磁性金属元素を有するサブミクロン径の軟磁性微粒子に着目した。これまでに、水溶液還元反応法を用いて合成されたサブミクロン径のアモルファス Fe-B 微粒子は、1-3 GHz 付近で自然共鳴周波数が得られ、固有透磁率が 9-14 となることを報告した^[1]。本研究では、新たに強磁性元素である Ni を添加した Fe-Ni-B 微粒子を合成し、それらの構造および磁気特性について検討する。

実験方法

Fe-Ni-B 微粒子は、鉄塩、ニッケル塩を溶解させた水溶液中に還元剤となる NaBH₄ を滴下することで合成した。また、合成した粒子は Ar ガス中で 400 °C, 1 時間熱処理を施した。

合成した微粒子の形状および構造、組成に関しては、SEM-EDX および TEM を用いて評価した。また、それらの磁気特性に関しては、絶縁体の樹脂中に微粒子を 50 vol.% になるように分散させたコンジット材を作製し、それらを用いて VSM および短絡型マイクロストリップ線路と VNA を組み合わせた複素透磁率測定法により評価した。

実験結果

図 1 は合成した Fe-Ni-B 微粒子における(a)SEM 像の一例と (b)電子線解析(TEM 観察)の結果である。形状は非凝集性の球状で、平均粒径 D₅₀ は 204 nm であった。また、合成した微粒子の結晶構造に関して、電子線解析においてハローパターンを観測したことから、合成した微粒子はアモルファス構造を有していることがわかった。また、熱処理を施した後も熱処理前と同様の結果となり、アモルファス構造を有していた。

図 2 は Fe-Ni-B 微粒子における複素透磁率の熱処理効果である。透磁率の実部 μ' は 2 となり、熱処理を施すと 2.8 へ増加した。また、透磁率の虚部 μ'' はブロードなピークが発生し、熱処理を施すことで立ち上がりを 1 GHz 付近まで抑制することが確認された。これらの結果は、熱処理によって微粒子のひずみが緩和されたことによるものと考えられる。

以上の結果は、水溶液還元反応法を用いて合成した Fe-Ni-B 微粒子は安定性が高く、渦電流損失を高周波帯まで抑制することができることを意味している。したがって、数 10MHz~数 GHz で動作するインダクタや電磁ノイズ抑制体などへの応用が期待される。

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 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 JPMXP1122715503 のもとで行われました。また、東北大学 CIES および東北大学 CSIS の支援のもとで行われました。

参考文献

[1] K. Murata, T. Miyazaki, H. Masumoto, Y. Endo, T. Magn. Soc. Jpn. (Special Issues), 5, 1-5 (2021)

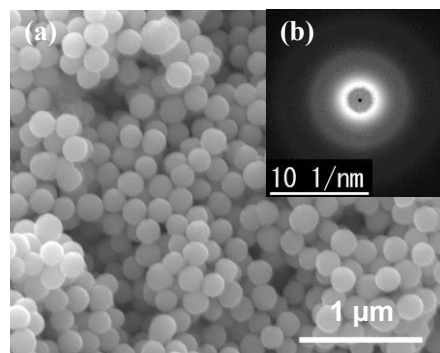


Fig. 1 (a) SEM image (b) the electron diffraction peaks image of Fe-Ni-B particles.

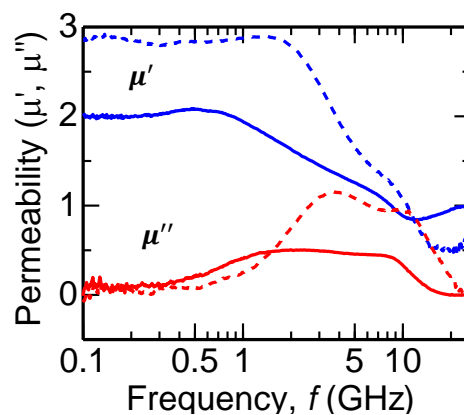


Fig. 2. Complex permeability of Fe-Ni-B composites with as made (solid line) and annealed (dashed line).

1.61 T の高い B_s と高耐食性を有する FeCo 基アモルファス合金粉末

梶浦良紀、長谷川暁斗、細野雅和、吉留和宏、大塚翔太*2、大久保等*2、松元裕之
(TDK 株式会社 材料研究センター, *2 TDK 株式会社 マグネティクスビジネスグループ)

Novel FeCo based FeCoBPSiCr Amorphous Alloy Powder with High B_s of 1.61 T and High Corrosion Resistance

Y. Kajiura^{*1}, A. Hasegawa^{*1}, M. Hosono^{*1}, K. Yoshidome^{*1}, S. Otsuka^{*2}, H. Okubo^{*2}, H. Matsumoto^{*1}

(*1 Materials Research Center, TDK Corporation, *2 Magnetics Business Group, TDK Corporation)

緒言

近年における電子機器の高機能化に伴い、インダクタにおいては、高い飽和磁束密度(B_s)に加えて様々な製品形状や使用環境に適用するために、高い B_s と優れた耐食性を両立できる金属軟磁性粉末が求められている。本研究では、高い B_s と高い耐食性が確認されている FeCoBPSiCr アモルファス合金に着目し、FeCoBPSiCr 合金の粉末化を試みた。本報告では、1.61 T の高い B_s と、既存の FeSiB 系アモルファス合金粉末を凌駕する優れた耐食性を両立できる FeCoBPSiCr アモルファス合金粉末を見出したとともに、得られた粉末を用いたインダクタ素子における直流重畳特性を報告する。

実験方法

Fe(99.9 mass%), Co(99.8 mass%), B(99.5 mass%), Fe₃P (99.9 mass%), Si (99.999 mass%), Cr (99.9 mass%)の原料を用いて高周波溶解にて母合金を作製し、単ロール液体急冷法により幅 1-5 mm, 厚み約 20-80 μm の金属薄帯を作製した。X 線回折から、アモルファス単相が得られる最大厚みを臨界厚みとし、臨界厚みの大きさからアモルファス形成能を評価した。 B_s は、振動試料型磁力計を用いて測定した。耐食性は、厚み 20 μm の金属薄帯を作用電極とし、対極に Pt 線、参照電極に Ag/AgCl 電極を用いて電気化学測定を行うことで評価した。また、ガスアトマイズ法を用いて粉末化を行った。作製した粉末を 63 μm の篩を用いて分級した粉末を使用し、透過型電子顕微鏡 (TEM)を用いて粉末のアモルファス状態を確認した。作製した粉末を使用し 2.0 (L) \times 1.2 (W) \times 0.8 (H) mm の外寸となるインダクタを作製し、LCR メーターを用いて直流重畳特性を評価した。

実験結果

Table 1 に FeCoBPSiCr アモルファス合金および既存の FeSiBC アモルファス合金における臨界厚み、腐食電位、腐食電流密度および磁気特性を示す。Table 1 より FeCoBPSiCr 合金は、粉末化が可能な 87 μm の高いアモルファス形成能を有すると同時に、-520 mV の高い腐食電位と 23.7 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ の低い腐食電流密度を示し、既存の FeSiBC 合金よりも優れた耐食性を有する合金であることが示された。

Fig. 1 に、ガスアトマイズにより作製した FeCoBPSiCr アモルファス合金粉末および既存の FeSiBC アモルファス合金粉末を用いたインダクタ素子における直流重畳特性を FeCoBPSiCr アモルファス合金粉末の TEM 像および電子線回折パターンと共に示す。Fig. 1 より、FeCoBPSiCr アモルファス合金粉末は均一なアモルファス相を有し、FeCoBPSiCr アモルファス合金粉末を用いたインダクタ素子は既存の FeSiBC アモルファス合金粉末を用いた場合と同等以上の優れた直流重畳特性を示すことが確認された。

Table 1 Amorphous forming ability, corrosion characteristics and magnetic characteristics of metallic ribbons in the FeCoBPSiCr and commercial FeSiBC amorphous alloys.

Composition	Amorphous forming ability (μm)	E_{corr} (mV)	i_{corr} ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)	H_c (A/m)	B_s (T)
FeCoBPSiCr	87	-520	23.7	20.4	1.71
FeSiBC	60	-677	53.1	25.7	1.69

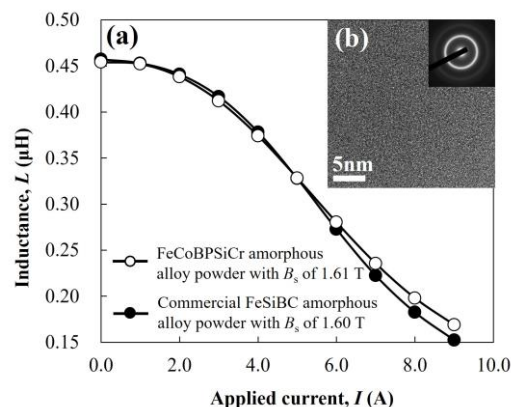


Fig. 1 (a) DC-bias characteristics of the FeCoBPSiCr and commercial FeSiBC amorphous alloy powders, (b) TEM image of the FeCoBPSiCr amorphous alloy powder with SAED pattern

鉄基アモルファス球状微粒子の開発

津代 嶺、遠藤 恭*
(戸田工業 (株)、*東北大)

Development of spherical iron-based amorphous fine particles

R. Tsushiro, Y. Endo*
(Toda Kogyo Corp., *Tohoku univ.)

はじめに

インダクタなどの電子部品の高性能化において、使用する磁性材料の特性改善が求められており、微細な軟磁性金属粉末の開発が注目されている。軟磁性金属粉末の量産にはアトマイズ法が多く用いられているが、製法的に $1\mu\text{m}$ 以下の微粒子の作製が困難である。液相還元法を用いれば微粒子の作製は可能であるが、従来の手法^{1),2)}では一次粒子径の均一性や凝集物の発生に課題があった。ここでは、新たな液相還元法を検討し上述の課題を解決した Fe-B 微粒子を開発したことについて報告する。

実験方法

液相還元法の原料種、錯化剤、反応条件 (pH、温度、雰囲気、攪拌条件など)、絶縁処理方法を検討し、目標とする Fe-B 組成のアモルファス粒子を作製した。得られた粉末の一次粒子径と分布は走査型電子顕微鏡(SEM)を、凝集粒子径は粒度分布計を用いて評価した。透磁率の周波数特性は 30~40vol%含有させた樹脂混練シートをネットワークアナライザで測定した。

実験結果

Fig.1 は作製した Fe-B 粒子の SEM 像である。流動性に有利な真球状の粒子となっていることが分かった。また、作製条件を調整することにより、平均一次粒子径が $0.2\mu\text{m}$ 以下の微粒子も得ることができた。一次粒子径の均一性と分散性について、Sample A、B と同程度の大きさの Fe-B 粒子を従来法で作製し比較した。その結果を Table 1 に示す。粒子の均一性を表す S/DI および凝集度を表す $D2/DI$ とともに、従来品よりも本開発品の方が小さい値となっており、均一で分散性の良い粒子になっていることが分かった。

透磁率の周波数特性を Fig.2 に示す。軟磁性粉は、特に高周波において粒子間および粒子内渦電流損が発生し特性が低下することが問題となるが、本開発品は 1GHz の高周波帯域において、従来品よりも小さい μ'' を示し 4 倍以上の高い Q 値を示すことから、渦電流損が減少していると考えられる。

磁性粒子を高充填し高密度化することでもインダクタの特性は向上するため、現在、本開発品を数 $10\mu\text{m}$ の大粒子と混合させた場合の特性評価も検討中である。

参考文献

- 1) K. Murata, T. Miyazaki, H. Masumoto, and Y. Endo: *Trans. Magn. Soc. Jpn.*, **5**(1), 1, (2021).
- 2) S. Yuki, K. Shimba, N. Tezuka, and S. Sugimoto: *Journal of the Japan Institute of Metals and Materials*, **76**(4), 278, (2012).

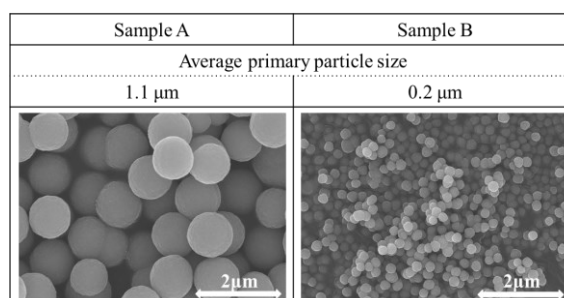


Fig.1 SEM images of Fe-B particles.

Table 1 Characteristics of samples.

Sample	Method	Primary particle Size	S/DI	$D2/DI$	Q at 1GHz (μ'/μ'')
A	Developed	1.1	0.12	1.2	10.9
B	Developed	0.2	0.14	0.8	15.9
Ref.) C	Conventional	1.0	0.36	7.2	2.7
Ref.) D	Conventional	0.5	0.28	3.3	4.3

S: SD of primary particle size, DI: average primary particle size, D2: average agglomerated particle size

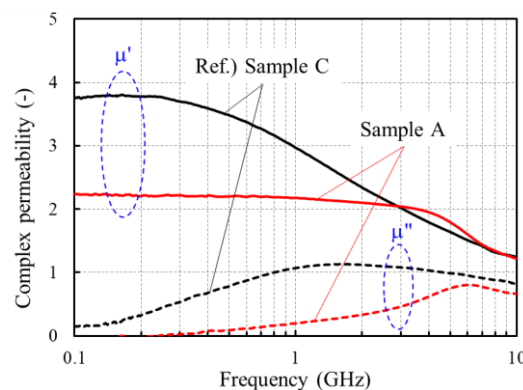


Fig.2 Complex permeability vs. frequency.

陰解法を用いたナノ結晶軟磁性材料マイクロマグネティックシミュレーションの高速化

田中智大、安宅正、風間正喜
(富士通株式会社)

Speeding up of Micromagnetic Simulation for Nanocrystalline Soft Magnetic Material by Implicit Method

T. Tanaka, T. Ataka, M. Kazama
(Fujitsu Limited)

はじめに

次世代パワー半導体を用いたパワーデバイスの高周波動作による小型化・省エネルギー化が期待されている。それに伴いインダクタやトランスといった受動素子はこれまでより高周波で動作することが求められ、高周波においても低損失な受動素子開発が重要になっている。マイクロマグネティックシミュレーションによる磁性体内部の磁区生成・消失の分析は高周波駆動時の損失起源の解明に寄与できると考えられる。しかしながらスイッチング周期は依然マイクロマグネティックシミュレーションの時間刻みに比べ大きいためシミュレーションの高速化が求められている。磁化運動を記述する Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式は磁化の歳差項と減衰項から成るが、我々は数 100 kHz ~ 1 MHz 帯では磁化運動が遅くなり歳差を無視し減衰だけを考慮した場合でも妥当な結果が得られるという仮定のもと、歳差項を無視した LLG 方程式の陰解法を開発した。本報告では陰解法の詳細、計算高速化の結果、歳差項を無視した影響を報告する予定である。

計算方法

ナノ結晶軟磁性材料は 10 ナノメートル程度のメッシュに分割されており、各メッシュ領域において磁気異方性がランダム配向しているランダム磁気異方性モデルを用いて表現する。一定周波数をもつ外部磁界を磁性体に一様に印加する。磁化運動は以下のような歳差項を無視した LLG 方程式に従うとする。時間刻み拡大のため LLG 方程式による時間発展はエネルギー最小化を利用した陰解法を開発し利用する。

$$\frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} = -\frac{\gamma}{2} \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}})$$

\mathbf{m} , γ , \mathbf{H}_{eff} はそれぞれ単位磁化ベクトル、ジャイロ磁気定数、有効磁界であり、ダンピング定数は 1 である。

結果

飽和磁化が 1.6 T、サイズが 10 μm x 2 μm x 0.05 μm の薄帯モデルに振幅 3000 A/m、周波数 1MHz の外部磁界を印加した条件に対し我々が開発した新手法を用いて計算する。比較のため Crank Nicolson 法による解析を実施したところ新手法は Crank Nicolson 法に比べて約 2 倍高速化される。Fig. 1 に磁化状態のスナップショットを示す。磁区幅を分析するとどちらの手法も磁区幅 180nm~400nm にピークが集まり、歳差項を無視する影響は 1MHz 以下では小さいと考えられる。

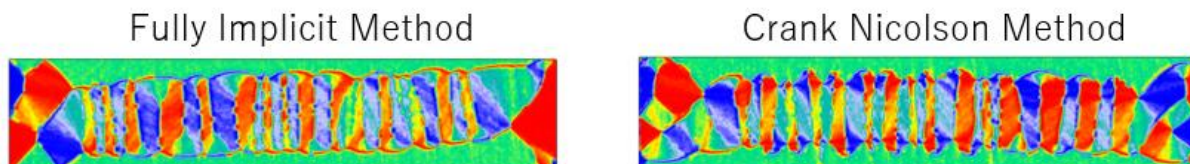


Fig. 1 Magnetization visualization of the implicit method and the semi-implicit Crank Nicolson method.