

技術論文



Technical Paper

軟磁性金属粉末における磁区の変化挙動が磁気特性におよぼす影響

佐藤 誉将*¹, 深瀬 美紀子*¹, 竹澤 昌晃*²

Effect of Magnetic Domain Wall Motion on Hysteresis Loss of Soft Magnetic Powder

Takamasa SATO, Mikiko FUKASE and Masaaki TAKEZAWA

Synopsis

Soft magnetic powder cores are used for choke coils, used in DC-DC converters, noise filters, etc. However, the increase of core loss during high frequency driving needs to be improved. Since core loss is related to magnetic domain motion, it is important to observe magnetic domains clearly to understand how to decrease core loss.

In this study, the relation between core loss and the magnetic domain motions in various Fe-Si alloy powders has been investigated by observing magnetic domains with a Kerr effect microscope.

We concluded as follows:

- (1) Grain boundaries, vacancies and precipitates prevent the motion of domain walls as pinning sites.
- (2) The patterns of magnetic domains vary with internal strain, crystal orientation, or segregation in the powders. Change rate of luminance value decreases in powder with complex magnetic domains.
- (3) Hysteresis loss decreases with increase of change rate of luminance value which quantifies the ease of domain wall motion. Therefore, it is important to relax the strain induced by solidification or to homogenize the segregation so that domain walls can easily move.

1. 緒言

近年パソコン、スマートフォンの普及や自動車の電動化に伴って、それらの制御用電源に使用されるスイッチング電源やDC-DCコンバータは高特性化が進み、それに付随して電磁部品を構成する素材にも、特性の改善が要求されている。特にDC-DCコンバータのような電力変換を行う変圧器は、スイッチング周波数を高めることで小型化が可能のため、近年では高周波駆動の技術開発が積極的に行われている。しかし変圧器を高周波駆動さ

せると、チョークコイルの磁芯となる軟磁性材料は高温となり、エネルギーの変換効率が低下してしまう。そのため、磁芯に適用される素材にはエネルギーロスが小さいことが求められる。磁芯材料におけるエネルギーロスとは鉄損失であり、軟磁性材料が電気エネルギーを磁気エネルギーに変換する際に生じる損失である。鉄損失はさらにヒステリシス損失と渦電流損失に分けることができる。磁芯材料には、従来から電磁鋼板の積層磁芯が多用されていたが、近年では、積層磁芯に代わる材料として、製品形状の自由度が高く、磁気特性の調整が容易な

2020年3月17日 受付

* 1 大同特殊鋼(株)技術開発研究所 (Corporate Research & Development Center, Daido Steel Co., Ltd.)

* 2 九州工業大学 (Kyushu Institute of Technology)

粉末を圧縮成形した，圧粉磁芯が注目されている¹⁾。

圧粉磁芯は，各粉末が絶縁被膜に覆われているため，粒子間の短絡が抑制され積層磁芯に対し渦電流損失が低い。一方で一般にヒステリシス損失が積層磁芯に比べて高いため²⁾，その低減が課題となってくる。ヒステリシス損失は，印加磁界を変化させたときの磁区の変化挙動に相関がある。しかしながら，軟磁性粉末材料において，磁区の変化挙動と磁気特性の相関関係はこれまであまり報告されていない。そこで本検討では磁気 Kerr 効果顕微鏡を用いてさまざまな Fe-Si 系粉末の磁区観察を行い，磁区の変化挙動や，それらとヒステリシス損失の関連性を調査した。

2. 実験方法

2. 1 試料

本検討で用いた粉末の成分組成は Fe-3.0 mass%Si (以下, Fe-3.0Si) と Fe-6.5 mass%Si (以下, Fe-6.5Si) とした。Fe-3.0Si 粉末はガスアトマイズ法で作製した粉末を用い，Fe-6.5Si 粉末は水アトマイズ，改良水アトマイズ³⁾，ガスアトマイズの3種類のアトマイズ方法で作製したものをを用いた。また，改良水アトマイズで作製した Fe-6.5Si 粉末については，結晶粒の粗大化とアトマイズ時の冷却凝固歪みを減少させる目的で，水素雰囲気中，1323 K で 21.6 ks の熱処理を施した試料も準備した。各アトマイズ粉は粒度分布の相違による磁気特性への影響を排除するため，平均粒径が 50 ~ 60 μm となるように粒度を調整した。各粉末の成分分析値および円形度を Table 1 に示す。ここで円形度は粒子形状を数値化したもので，粒子画像分析装置 (マルバーン製: Morphologi G3) で測定した。円形度 C の定義式を (1) に示す。

$$C = \frac{4\pi S}{L^2} \quad (1)$$

ここで S は撮影された粒子の面積，L は粒子の周囲長である。円形度は粒子径約 56 μm の粉末の値を代表値とした。

2. 2 磁気特性評価

磁気特性評価用の磁芯試料の作製には，成形に伴う歪みを極力抑えるために，粉末を樹脂と混ぜて注型し自然硬化させる低圧成形法を採用した。試験粉末に，4 wt% のエポキシ樹脂を添加し，さらに希釈用の有機溶剤をエポキシ樹脂に対して 50 wt% の割合で加え，攪拌脱泡装置にて混合した。スラリー状の混合試料を，外形 19

Table 1. Chemical compositions and circularities of sample powders.

Sample	Preparation method	Chemical compositions (mass%)					Circularity @56 μm
		Fe	Si	Mn	S	O	
A Fe-3.0Si	Gas atomization	Bal.	2.85	<0.01	0.001	0.03	0.90
B Fe-6.5Si	Gas atomization	Bal.	6.27	0.04	0.004	0.04	0.93
C Fe-6.5Si	Modified-water atomization	Bal.	6.36	0.07	0.003	0.08	0.89
D Fe-6.5Si	Water atomization	Bal.	6.25	0.11	0.003	0.40	0.76

mm × 内径 13 mm のトロイダル状の型へ流し込んだ後，常温で自然硬化させ，成形体を得た。

鉄損失の測定は，交流 BH アナライザー (岩通計測株式会社: SY8258) を用いて，最大励磁磁束密度を 0.1 T で一定にし，周波数を 1 ~ 200 kHz の範囲内で変化させて実施した。また，鉄損失 P_c におけるヒステリシス損失 P_h と渦電流損失 P_e の分離は以下のように行った。式 (2)，式 (3) に示すように，鉄損失を周波数で割った値 P_c/f の周波数依存性から，この P_c/f を 0 Hz に外挿した値を 1 周期当たりのヒステリシス損失係数 ($K_h = P_h/f$) とし，ここから各周波数でのヒステリシス損失 P_h を算出した⁴⁾。

$$P_c = P_h + P_e = K_h f + K_e f^n \quad (2)$$

$$\frac{P_c}{f} = K_h + K_e f^{n-1} \quad (3)$$

2. 3 磁区観察および定量評価

磁区観察は，粉末をエポキシ樹脂で固定し，表面が鏡面となるように研磨した試料を用い，磁気 Kerr 効果顕微鏡により行った。すなわち，光の入射方向に対して試料の磁化方向が平行な場合に得られる縦 Kerr 効果を利用し，試料の面内磁化の方向に依存した明暗を磁区として観察した。軟磁性粉末は明瞭な磁区のコントラストが得られにくいいため，画像処理によってコントラストの強調や品質の改善を行った。sin 波の交流磁界印加下の磁区変化過程を 3 秒で 128 枚取得・平均化して基準画像を作製し，ライブ画像との差分を処理することで，磁区のコントラストを強調した。磁区観察は残留磁化状態から +1.5 kOe までの磁化過程で行った。また磁場印加時開始時の磁化を残留磁化の状態を揃えるため，試料はあらかじめ 1.5 kOe の磁場を印加した。

磁区観察で取得した輝度値を用い，励磁による磁区の変化を定量化した。観察条件によるばらつきを無くすた

め、磁気飽和した際の輝度値が± 100 % となるように規格化した。規格化に用いた式を式 (4) に示す。

$$R = \frac{L - (\frac{L_{max} - L_{min}}{2} + L_{min})}{\frac{L_{max} - L_{min}}{2}} \times 100 \quad (4)$$

ここでRは輝度値の変化率、Lは各印加磁界強度での輝度値、 L_{max} は正の磁界で磁気飽和した時の輝度値、 L_{min} は負の磁界で磁気飽和した時の輝度値である。輝度値変化率Rの大きさは、磁区変化のしやすさと相関する。

3. 結果および考察

3. 1 磁気特性

Table 2に各試料の低压成形体密度と鉄損失を示す。成形体密度については、各試料で同程度の値を示しており、試料間での相対評価を行う上で問題ないものと判断した。損失特性については、今回調査対象とした5水準では、熱処理を施したFe-6.5Siの改良水アトマイズ粉末である試料C (annealed) が最も低損失であった。また、Fe-3.0Siのガスアトマイズ粉末である試料Aは渦電流損失が他の試料に比べて高い値を示しているが、これは含有するSi量が少ないため素材の固有抵抗が低下したことに起因すると推測できる。

本検討では、磁区の変化挙動を強く反映するヒステリシス損失に着目し、各試料の損失特性と磁区との関連性を調査すると共に、各試料の相対比較を実施した。

Table 2. Core density and iron loss value of powder core.

Sample	Core density (g/cm ³)	Total loss @0.1 T, 30 kHz (kW/m ³)	Hysteresis loss @0.1 T, 30 kHz (kW/m ³)	Eddy current loss @0.1 T, 30 kHz (kW/m ³)
A Fe-3.0Si	4.72	601	454	147
B Fe-6.5Si	4.97	529	476	53
C Fe-6.5Si	4.70	402	354	48
D Fe-6.5Si	4.86	520	497	23
C (annealed) Fe-6.5Si	4.95	340	267	73

3. 2 磁区観察

3. 2. 1 Fe-3.0Siガスアトマイズ粉末の磁区観察結果

Fig. 1にガスアトマイズ法で作製したFe-3.0Si粉末に

ついて、磁場を0～1.08 kOeまで印加しながら磁区観察を実施した際の磁区構造変化を示す。印加磁界の増加に伴って磁壁が移動し、磁化反転が進む様子が確認できる。Fig. 1(a), (b)に示すのはFig. 1の一部分を拡大したものである。Fig. 1(a)に示すように、結晶粒界が磁壁移動のピンニングサイトとなっている様子が確認された。また、Fig. 1(b)に示すように、結晶粒内でも磁壁のピンニングサイトが確認され、EDXの分析結果から、結晶粒内のピンニングサイトにはMn, S等の介在物や、空孔が存在すると判明した。

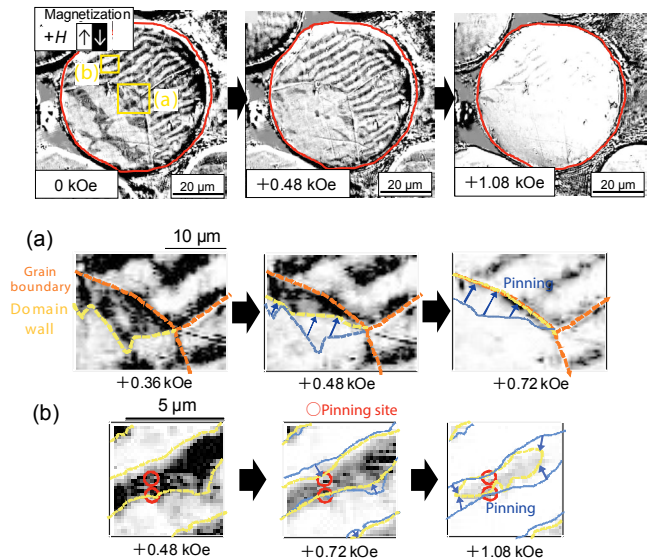


Fig. 1. Change in magnetic domain of gas-atomized Fe-3.0Si powder during the magnetizing process. Images (a) and (b) are magnified.

Fig. 1で使用した粒子とは異なるFe-3.0Siガスアトマイズ粉末の無磁場における磁区構造をFig. 2に示す。また、同粉末に0～1.08 kOeまでの磁場を印加した際の(a)および(b)領域の磁区構造変化をそれぞれFig. 2の(a)および(b)に示す。Fig. 1の粉末の無磁場中での磁区観察結果と比較して、複雑化した形状の磁区が観察された。また、Fig. 2(b)のような磁区形状がより複雑な領域の方が、磁区の変化が小さくなっているように見受けられる。そこでさまざまな磁区形状のFe-3.0Siガスアトマイズ粉末について、0～1.5 kOeまで磁場を印加した際の磁区観察から取得した輝度値で、磁区変化の定量化を検討した。その結果をFig. 3に示す。ストライプ形状の磁区が乱れたような複雑な磁区を有する粉末は、輝度値変化率が低下する傾向が認められる。磁区形状が変化する要因として、アトマイズ時の冷却凝固歪みや結晶方位、偏析などの影響が考えられるが、それらについては今後の研究課題としたい。

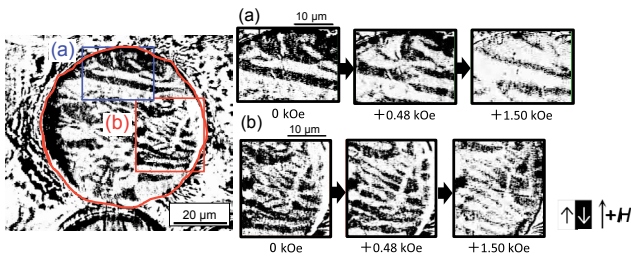


Fig. 2. Change in magnetic domain of the other gas atomized Fe-3.0Si particle during the magnetizing process. Images (a) and (b) are magnified.

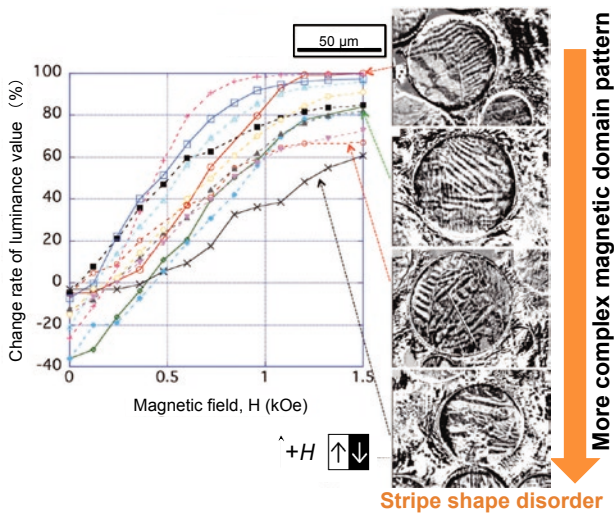


Fig. 3. Relationship between magnetic domain patterns and change rates of luminance value of Fe-3.0Si gas atomized powders.

3. 2. 2 Fe-3.0Si粉末の磁区変化におよぼすSi添加量の影響

Fig. 4 にガスアトマイズ法で作製した Fe-3.0Si 粉末と Fe-6.5Si 粉末の磁区観察結果の比較を示す。Fe-3.0Si に対して Fe-6.5Si は磁区が複雑であることが分かる。Fig. 5 には、これらの粉末の輝度値変化率を示す。図で示した輝度値変化率は、各ロットの粉末 10 粒子について輝度値変化率を測定した平均値である。図中にはこの粉末を用いて作製した磁芯のヒステリシス損失 (Ph @ 0.1 T, 30 kHz) も併せて示している。

ヒステリシス損失がわずかに小さい Fe-3.0Si 粉末の輝度値変化率は、Fe-6.5Si 粉末より若干大きく、このことは、磁壁移動が容易なほどヒステリシス損失が小さくなることを示す妥当な結果と考えられる。

しかし、一般に Fe-Si 合金では、Si 添加量を増大する

と結晶磁気異方性定数 K_1 や磁歪定数 λ_s が減少し、損失値が低下することが知られており^{5), 6)}、本検討の調査結果は従来の知見と異なっている。従来知見と異なる原因として、Si 添加量の違いで冷却凝固過程が異なって生じる偏析の影響などが考えられるが、詳細は不明確であるため、今後さらなる検討が必要と考えている。

ただ上述のように、輝度値変化率はヒステリシス損失のわずかな大小さえも反映していることから、得られた結果は磁化過程を評価するうえで信頼性があると考えられる。

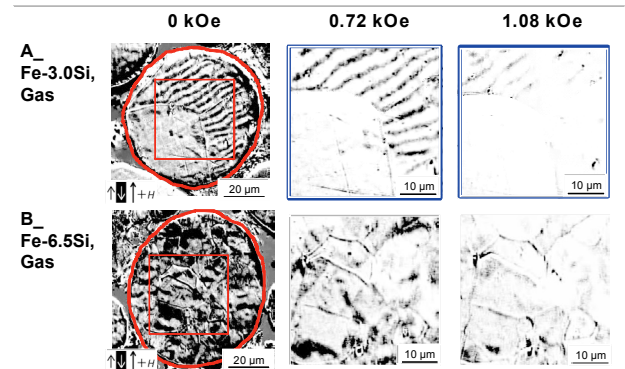


Fig. 4. Magnetic domain structures and their changes under magnetization process for gas-atomized Fe-3.0Si and Fe-6.5Si powders.

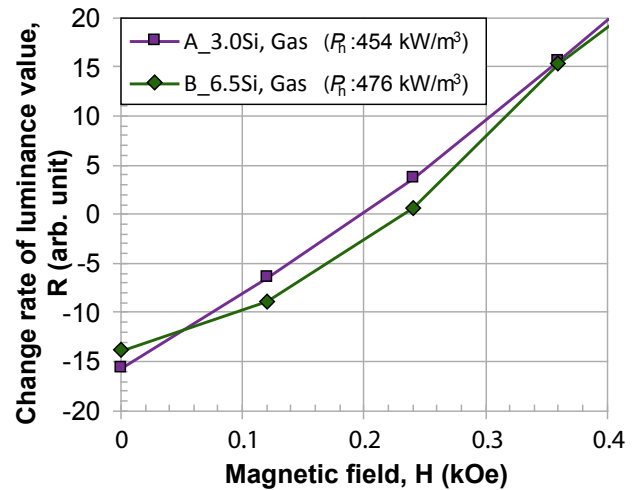


Fig. 5. Change rate of luminance value for gas-atomized Fe-3.0Si and Fe-6.5Si powders.

3. 2. 3 Fe-6.5Si粉末の磁区変化におよぼす粉末製造方法の影響

Fig. 6 に、ガスアトマイズ法、改良水アトマイズ法、水アトマイズ法で作製した Fe-6.5Si 粉末の磁区観察結果を示す。粉末断面から水アトマイズ法で作製した粉末は異形状であることが分かる。また水アトマイズ粉末の磁

区は、その他の粉末と比べてさらに複雑化しており、磁区の変化が小さいことが分かる。Fig. 7に、これらの粉末の磁区変化を輝度値変化率で定量した結果を示す。図中にはヒステリシス損失に加えて、粉末の円形度Cも併せて示している。輝度値変化率は改良水アトマイズ粉が最も大きく、水アトマイズ粉末が最も小さい。また、ヒステリシス損失も、改良水アトマイズ粉が最も小さく、水アトマイズ粉が最も大きいという矛盾ない結果が得られた。

水アトマイズ粉末はその他の粉末と比べて円形度が低く、異形状であるが、これは、アトマイズ時の冷却速度が大きく、噴化された溶湯が表面張力で球形になる前に凝固することに起因する⁷⁾。そのため、アトマイズ時に溶湯内部へ空気や水が巻き込まれた場合、それらが粉末内部に欠陥（空隙）として取り残されることは容易に想像できる。また、冷却速度が大きいと冷却凝固歪みが多く導入されることも推定される。これらが磁壁移動のピンングサイトとして複合的に影響した結果、水アトマイズ粉末は輝度値変化率が小さく、ヒステリシス損失も高くなったと考えられる。一方で改良水アトマイズの冷却速度は、水アトマイズとガスアトマイズの中間に位置するため、改良水アトマイズ粉末は空隙などの粉末内部欠陥が少なく、冷却凝固歪みや、前節で述べた偏析の影響も小さくなり、輝度値変化率が大きく、ヒステリシス損失も小さいという良好な軟磁気特性が得られたと推測される。

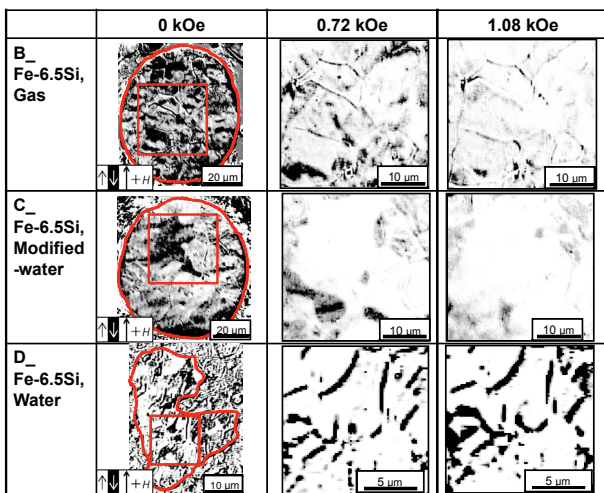


Fig. 6. Magnetic domain structures and their changes during the magnetization process of Fe-6.5Si powders atomized by different processes.

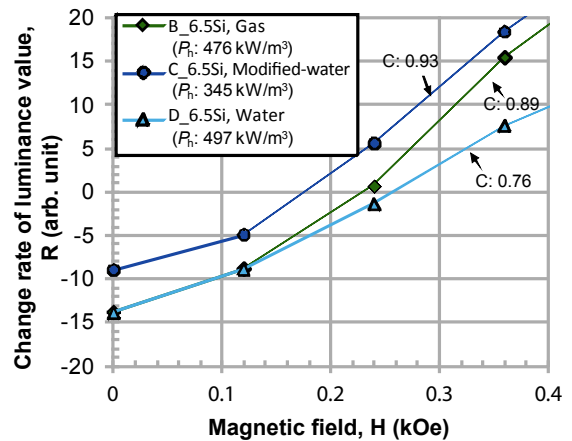


Fig. 7. Change rate of luminance value of Fe-6.5Si powders atomized by different processes.

3. 2. 4 Fe-6.5Si粉末の磁区変化におよぼす粉末熱処理の影響

Fig. 8には、改良水アトマイズで作製した Fe-6.5Si 粉末の熱処理前後について磁区観察を行った結果を示す。熱処理後の粉末は、未熱処理粉末と比較して、磁区形状とコントラストが明確になっていることが分かる。これは熱処理によって冷却凝固歪みが緩和されたことに起因すると考えられる。Fig. 9に、これらの粉末の輝度値変化率を示す。熱処理粉末は輝度値変化率が大きく、よってヒステリシス損失も小さい。熱処理によって、冷却凝固歪みの緩和の他、結晶粒粗大化による粒界数の低減や、偏析の均質化が起り、ピンングサイトとなり得る因子が取り除かれたため、軟磁気特性が向上したと考えられる。

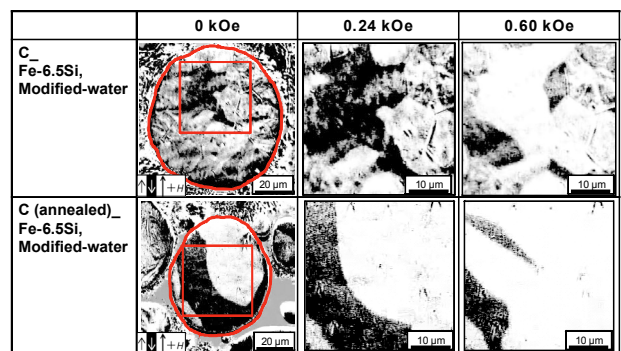


Fig. 8. Magnetic domain structures and their changes during the magnetization process of modified-water-atomized Fe-6.5Si powders before and after annealing.

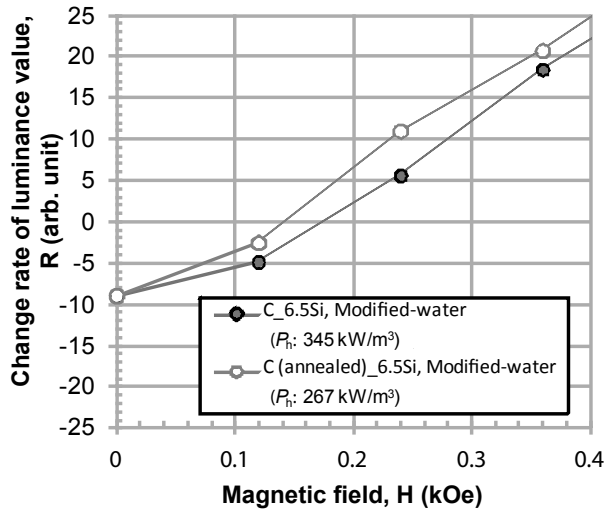


Fig. 9. Change rate of luminance value of modified-water-atomized Fe-6.5Si powders before and after annealing.

3. 3 輝度値変化率とコアロスの関係

Fig. 10 に今回調査した粉末の、0.24 kOe 印加時の輝度値変化率とヒステリシス損失の関係を示す。ヒステリシス損失は輝度値変化率と明確な相関関係を持つことが認められる。これらの結果から、ヒステリシス損失の低減のためには、上述したようなピンニングサイトを極力減らし、磁壁の移動をスムーズにして、磁区の変化を容易にすることが有効であると判明した。

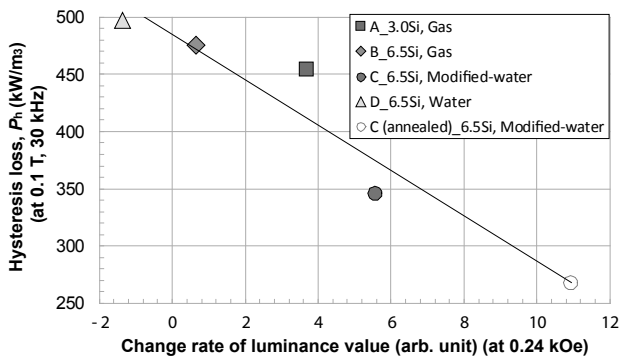


Fig. 10. Relationship between change rates of luminance value and hysteresis losses of Fe-Si alloy powders made by different processes.

4. 結 言

磁気 Kerr 効果顕微鏡を用いて、さまざまなアトマイズ法で作製した Fe-Si 系粉末の磁区観察を行い、磁区の変化挙動とヒステリシス損失の関連性を調査した結果、以下の結果を得た。

- (1) 結晶粒界や、空孔、介在物は、磁壁移動のピンニングサイトとなって磁壁の移動を妨げる。
- (2) 凝固歪み、結晶方位、あるいは偏析などの諸因子により、磁区の形状は変化し、複雑な磁区が観察される粉末では、磁区の変化を定量化した指標である輝度値変化率が小さくなる。
- (3) 輝度値変化率は、ヒステリシス損失と良好な相関関係を示した。すなわち、ヒステリシス損失を低減するためには、冷却凝固歪みの緩和や、偏析の均質化などで磁区の変化を容易にすることが重要である。

(文 献)

- 1) 北条啓文, 赤城宣明, 澤山哲也, 三谷宏幸: 神戸製鋼技報, 60(2010), 79.
- 2) 高下拓也, 中村尚道, 尾崎由紀子: JFE技報, 36(2015), 75.
- 3) 齊藤貴伸, 武本聡: 電気製鋼, 77(2006), 285
- 4) 武本聡, 齊藤貴伸: 電気製鋼, 81(2010), 118.
- 5) 本間基文, 田口章: 磁性材料読本, 工学調査会(1998), 107.
- 6) 山本達治: 磁性合金, 修教社書院, (1941), 70.
- 7) 河合伸泰, 佐藤義智, 関義和: 資源処理技術, 33(1986), 28.



佐藤 誉将



深瀬 美紀子



竹澤 昌晃