



複合配向化した軟磁性微粒子コンポジット材の磁気特性に関する研究

Study on magnetic properties of soft magnetic particle composites with complex oriented structure

若林 和志^{a)}・村田 啓太^{a)}・宮崎 孝道^{a)}・増本 博^{b)}・遠藤 恭^{a),c),d)†}

^{a)}東北大学大学院工学研究科, 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-05 (〒980-8579)

^{b)}東北大学学際科学フロンティア研究所, 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-3 (〒980-8578)

^{c)}東北大学高等研究機構先端スピントロニクス研究開発センター, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (〒980-8577)

^{d)}東北大学スピントロニクス学術連携研究センター, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (〒980-8577)

K. Wakabayashi^{a)}, K. Murata^{a)}, T. Miyazaki^{a)}, H. Masumoto^{b)}, Y. Endo^{a),c),d)†}

^{a)} Graduate School of Engineering, Tohoku University, 6-6-05 Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-8579, Japan

^{b)} Frontier Research Institute for Interdisciplinary Sciences, Tohoku University,

6-3 Aoba, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-8578, Japan

^{c)} Center for Science and Innovation in Spintronics, Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai, 980-8577, Japan

^{d)} Center for Spintronics Research Network, Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai, 980-8577, Japan

This paper describes a study on the magnetic properties of magnetic particle composites with complex oriented structures consisting of micro-size soft magnetic particles and submicron-size amorphous Fe-B particles synthesized by using a liquid-phase reduction method. For a constant amount of each micron-size particle, their saturation flux densities linearly increased with the increase of Fe-B particles, while their permeabilities markedly increased and decreased as the amount of Fe-B particles increased. In addition, the external magnetic field range in which the permeability increases was extended by the use of Fe-B particles, which might be attributed to the decrease of demagnetization. Therefore, these results demonstrate that magnetic properties are markedly improved by complex oriented structures. These results also suggest that these magnetic particle composites with complex oriented structures are a candidates for passive devices for next generation power electronics.

Key words: soft magnetic particle composites, complex oriented structure, permeability, passive device

1. 緒言

カーボンニュートラルの実現に向けて、高効率な電力変換が可能で電圧・電流を半導体素子のスイッチング動作により制御するパワーエレクトロニクス技術の重要性が増している。この技術では、近年、SiC, GaN や Ga₂O₃ といったワイドバンドギャップ半導体 (パワー半導体) 材料¹⁾を取り入れたパワーデバイスの研究開発が活性化を呈している。これらのパワーデバイスを電力変換装置に実装することによって、高速かつ高周波帯域で駆動することが可能となる²⁾。その一方で、これらのパワーデバイスに対応したトランスやインダクタといった受動素子の開発は遅れている。その結果、電力変換装置の損失全体に占める受動素子の損失割合が大きくなり、装置の小型化・高効率化の足かせになっている³⁾⁻⁵⁾。

これまでに、受動素子、特にインダクタに関しては、金属合金やフェライトなどの高透磁率を有する軟磁性材料が用いられてきた。金属合金は高い飽和磁束密度を有するため、直流重畳特性に優れる一方で、電気抵抗率が低く、高周波帯域において損失の増大が課題となっている⁶⁾。また、フェライトは高抵抗率を有することから高周波帯域においても損失を抑制することが可能であるものの、飽和磁束密度が低く、磁気飽和によるインダクタンスの低下やインダクタの小型化が課題となっている^{7),8)}。以上のことから、高飽和磁束密度・低損失を両立する新たな軟磁性材料の開発が求

められている。

このような材料候補の一つとして、軟磁性金属微粒子を樹脂や SiO₂ などの絶縁材料で被膜した軟磁性金属微粒子コンポジット材 (Soft Magnetic Composites: SMCs)が挙げられる。SMCs は、金属材料由来の高飽和磁束密度と、絶縁材料由来の高抵抗率によって損失の抑制を実現している。また、柔軟性が高く成型が容易であることから、インダクタ、チョップパや高周波パワーチョークなどの幅広い受動素子への応用が可能である。その一方で、軟磁性金属微粒子と絶縁材料との複合材料であるため、磁気的エアギャップ由来の反磁界によって透磁率が十分高くないことが課題となっている^{9),10)}。

これらの課題を解決するために、島田・遠藤らは軟磁性金属微粒子の複合配向化について提案・検討してきた^{11),12)}。複合配向化とは、二種類以上のサイズの異なる微粒子を樹脂と混合し、ペースト化する過程で磁界を印加することによって一方向に配列させることである。この複合配向化させた構造では、印加磁界中で飽和した大サイズ粒子間に生じる磁束の方向に小サイズ粒子が磁気的相互作用によって凝集し、効率よく微粒子全体の反磁界を低減させることができる。したがって、大サイズ粒子における透磁率を大幅に上昇させることが可能である。このような概念に基づいて、平均粒径 1 μm の Fe 微粒子と 10 nm の Fe₃O₄ 磁性流体を適当な体積比で複合配向化させることによって、初透磁率を Fe 微粒子単体に比べて大幅に上昇できることを報告した¹¹⁾。その一方で、

Corresponding author: Y. Endo (e-mail: yasushi.endo.c1@tohoku.ac.jp).

初透磁率領域を超えた磁界を印加すると、 Fe_3O_4 粒子が磁気飽和し、Fe 微粒子間に生じる磁気的エアギャップ由来の反磁界を低減するような効果が得られないことを明確にした。この効果を得るためには、粒子サイズだけでなく、微粒子の飽和磁束密度の違いにも注目することも提案した。

本研究では、 μm 径の軟磁性微粒子と、水溶液還元法で合成した高飽和磁束密度を有するサブ μm 径の Fe-B アモルファス微粒子とを複合配向化し、それらの構造および磁気特性について検討した。

2. 実験方法

μm 径の軟磁性微粒子としては、電解 Fe 微粒子（東邦亜鉛製）、Fe-Si-Al、FeNi 微粒子（エプソンアトミックス製）を用いた。サブ μm 径の軟磁性微粒子としては、水溶液還元反応法^{13,14)}により合成した Fe-B アモルファス微粒子を用いた。また、各微粒子のメディアン径 D_{50} と飽和磁束密度 B_s の実測値は Table 1 に示した通りである。

合成した試料は、 μm 径微粒子と Fe-B 微粒子とを樹脂中に分散混合し、ポリミド基板に塗布した後、固化するまでの間、電磁石を用いて最大磁界 300 mT を印加して配向処理を行ったコンポジット材である。なお、 μm 径の微粒子の充填率は 50 vol.% 一定とし、Fe-B 微粒子の充填率は 0 ~ 20 vol.% まで変化させた。

合成したコンポジット材の形状観察には走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscopy : SEM) を、磁気特性評価には振動試料型磁力計 (Vibrating Sample Magnetometer : VSM)、フェライトヨーク法を利用した透磁率測定法を用いた。なお、すべての測定は室温で行われた。

Table 1 Characteristics of magnetic particles. (measured value)

Samples	D_{50} [μm]		B_s [T]
	Long axis	Short axis	
Fe	12		2.18
Fe-Si-Al	5.30	3.23	1.33
FeNi	5.04	2.95	1.19
Fe-B	0.34		1.19

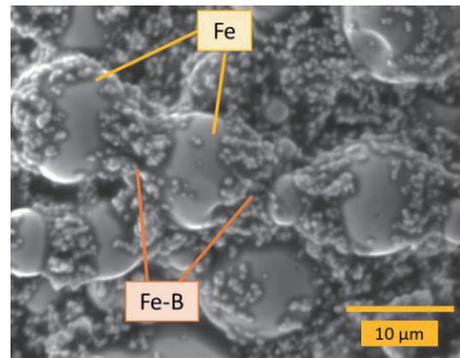
3. 実験結果および考察

3.1 Fe/Fe-B 複合微粒子コンポジット材

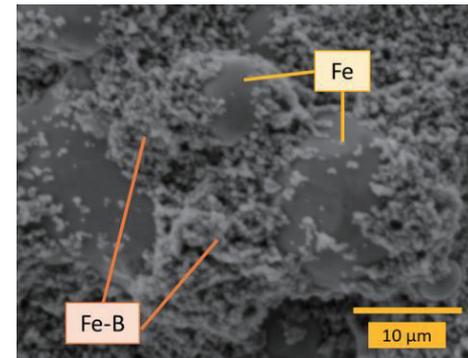
第 1 章で述べた先行研究 (Fe/Fe₃O₄ 複合微粒子コンポジット材に関する研究) にならい、まず Fe/Fe-B 複合微粒子コンポジット材の構造と磁気特性について検討した。

Fig. 1 は、合成した Fe/Fe-B 複合微粒子コンポジット材の SEM 像である。Fe-B 微粒子の充填率が 5 vol.% の場合には (Fig. 1(a))、Fe 微粒子の隙間に Fe-B 微粒子が詰められている様子が観察された。これは、Fe 微粒子間に生じている磁束の流れに Fe-B 微粒子が磁気的相互作用によって引き寄せられたためであると考えられる¹¹⁾。一方、Fe-B 微粒子の充填率が 20 vol.% の場合には (Fig. 1(b))、Fe-B 微粒子が Fe 微粒子間に詰められるだけでなく、Fe-B 微粒子同士で凝集している様子も観察された。これは、Fe-B 微粒子が過剰に充填されたことによるものである。

Fig. 2 は Fe 微粒子および Fe-B 微粒子単体のコンポジット材と

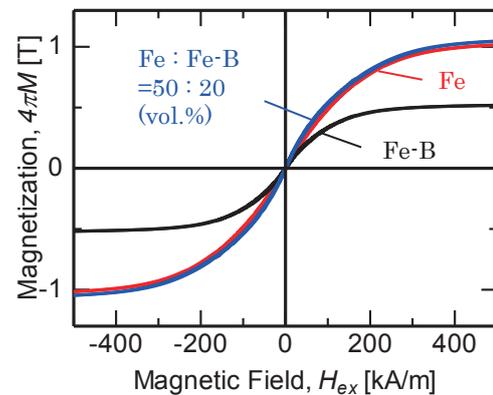


(a) Fe : Fe-B = 50 : 5 (vol.%)

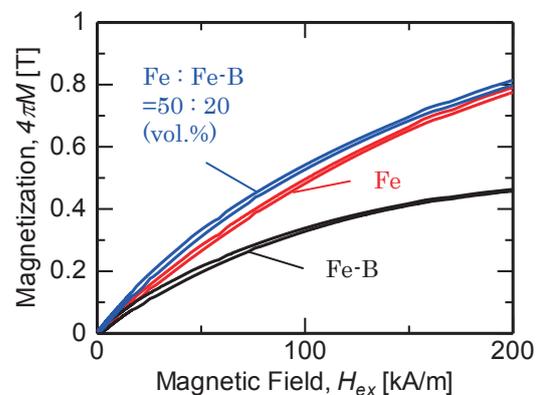


(b) Fe : Fe-B = 50 : 20 (vol.%)

Fig. 1 SEM images of Fe/Fe-B composites with complex oriented structure.



(a)



(b)

Fig. 2 Hysteresis loops of Fe, Fe-B, and Fe/Fe-B (20 vol.%) composites.

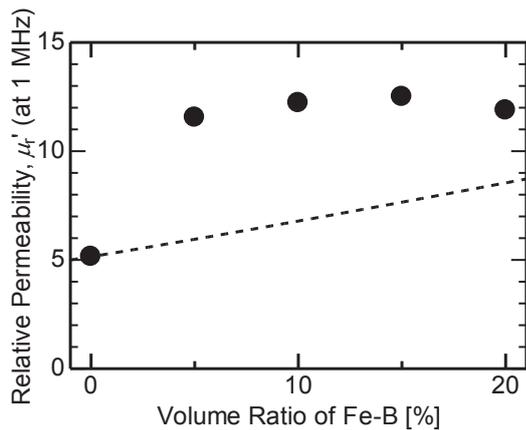


Fig. 3 Fe-B ratio dependence of relative permeability for Fe/Fe-B composites with complex oriented.

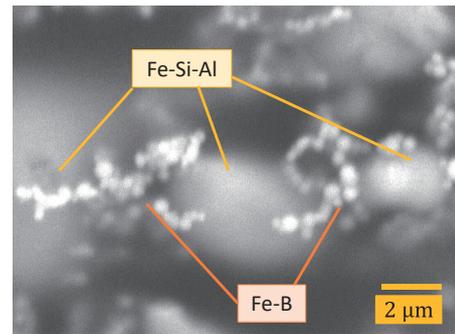
Fe-B 微粒子の充填率が 20 vol.% の Fe/Fe-B 複合微粒子コンポジット材の磁化曲線である。なお、コンポジット材の磁界配向方向に対して、面内平行方向に外部磁界を印加した結果である。Fe-B 微粒子を複合配向化した場合、単体のコンポジット材と比較してわずかに飽和磁束密度が高くなった。これは、軟磁性微粒子の充填率が増したためであると考えられる。また、複合微粒子コンポジット材では初透磁率領域を超えて磁化曲線の傾きが大きくなっていることが確認された (Fig. 2(b))。Fe/Fe-B 複合微粒子コンポジット材における Fe-B 微粒子の充填率が 20 vol.% の場合、透磁率が Fe 微粒子単体のコンポジット材と比較して 68 kA/m 付近まで高くなった。これは、先行研究の Fe₃O₄ 微粒子と比較して、Fe-B 微粒子の飽和磁束密度が高く、複合配向化による反磁界の低減効果が 68 kA/m 付近まで拡張されたためであると考えられる。この範囲は Fe-B 微粒子の充填率が高まると広がった。

Fig. 3 は、Fe/Fe-B 複合微粒子コンポジット材における比透磁率 μ_r' の Fe-B 微粒子充填率依存性である。グラフ中の破線は Bruggeman の式¹⁵⁾から導出したもので、複合配向化せず Fe 微粒子の充填率を高めた場合の推定値を表している。 μ_r' は Fe-B 微粒子を充填すると増加し、5 vol.% 以上においてほぼ一定となった。それらの値は 12 ~ 13 であり、試料の充填率が 50 ~ 70 vol.% にもかかわらず Bruggeman の式から求めた Fe 微粒子単体の固有透磁率値 ($\mu_r = 14$) とほぼ同程度となった。これは、複合配向化によって Fe 微粒子の反磁界が著しく低減したことによるものと考えられる。

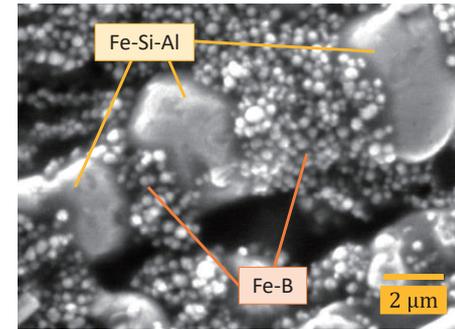
これらの結果から、Fe 微粒子に対して少量の Fe-B 微粒子を複合配向化させることにより Fe 微粒子の反磁界を低減するように Fe-B 微粒子が移動し、 μ_r' を向上させることができることがわかった。

3.2 M/Fe-B 複合微粒子コンポジット材 (M = Fe-Si-Al, FeNi)

3.1 節で述べたように、Fe/Fe-B 複合微粒子コンポジット材において、粒径の大きな Fe 微粒子間に生じる磁束の流れに粒径の小さな Fe-B 微粒子が引き寄せられる複合配向化による効果が得られた。この効果が、 μm 径微粒子の飽和磁束密度が Fe 微粒子より低い場合においても得られるか否



(a) Fe-Si-Al : Fe-B = 50 : 5 (vol.%)



(b) Fe-Si-Al : Fe-B 50 : 20 (vol.%)

Fig. 4 SEM images of Fe-Si-Al/Fe-B composites with complex oriented structure.

か不明瞭である。したがって、本節では、Fe-B 微粒子と同程度の飽和磁束密度を有する μm 径の Fe-Si-Al 微粒子および FeNi 微粒子を用いて複合微粒子コンポジット材を合成し、それらの構造および磁気特性について検討した。

Fig. 4 は合成した Fe-Si-Al/Fe-B 複合微粒子コンポジット材の SEM 像である。いずれの Fe-B 充填率においても、Fe/Fe-B 複合微粒子コンポジット材の場合と同様の結果が得られた。それに加えて、Fe-B 微粒子の充填率が 20 vol.% の場合には、Fe-Si-Al 微粒子間の距離が広がった様子も観察された。この原因については、今後検討していくこととする。

Fig. 5 は Fe-Si-Al 微粒子および Fe-B 微粒子単体のコンポジット材と Fe-B 微粒子の充填率が 10 vol.% の Fe-Si-Al/Fe-B 複合微粒子コンポジット材の磁化曲線である。Fe-Si-Al/Fe-B 複合微粒子コンポジット材の飽和磁束密度は、Fe/Fe-B の場合と同様に、Fe-Si-Al や Fe-B 単体に比べて複合化によって高くなった。これは、軟磁性微粒子の充填率が増したためであると考えられる。また、磁化曲線の傾きは、Fe-Si-Al 微粒子単体や Fe/Fe-B (40 kA/m) の場合と比較して 80 kA/m 付近まで大きくなったものの、FeNi/Fe-B (90 kA/m) と比べると若干小さくなった。この傾きの範囲は、 μm 径微粒子の飽和磁束密度に依存しており、磁束密度が低くなるほど広がる傾向となった。これは、 μm 径微粒子間に生じる磁束の流れが飽和磁束密度が低くなるほど弱まり、磁束が Fe-B 微粒子を通りやすくなったためであると考えられる。

Fig. 6(a) は Fe-Si-Al/Fe-B 複合微粒子コンポジット材における比透磁率 μ_r' の Fe-B 微粒子充填率依存性である。 μ_r' は、Fe-B 微粒子の充填率を高めていくと増加した後、減少して一定となった。これらの値は Bruggeman の式¹⁵⁾から求められる値に比べて高く、

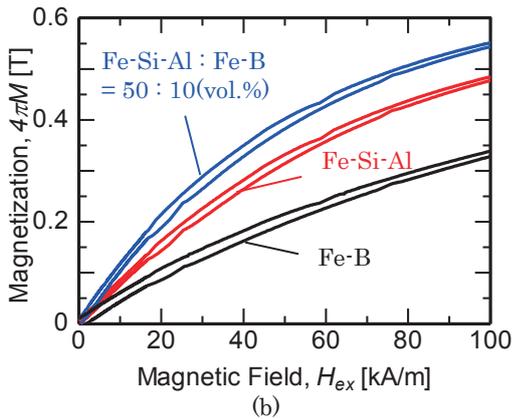
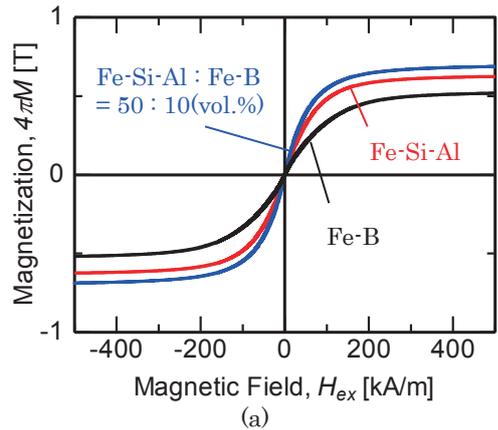


Fig. 5 Hysteresis loops of Fe-Si-Al, Fe-B, and Fe-Si-Al/Fe-B(10 vol.%) composites.

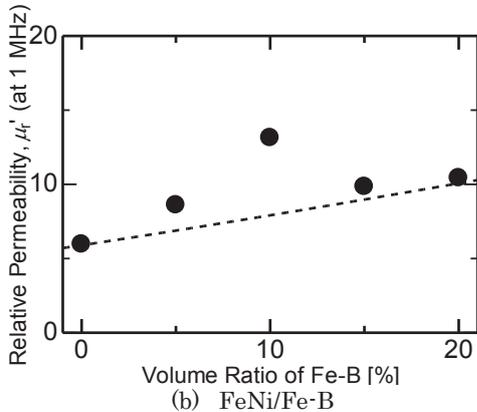
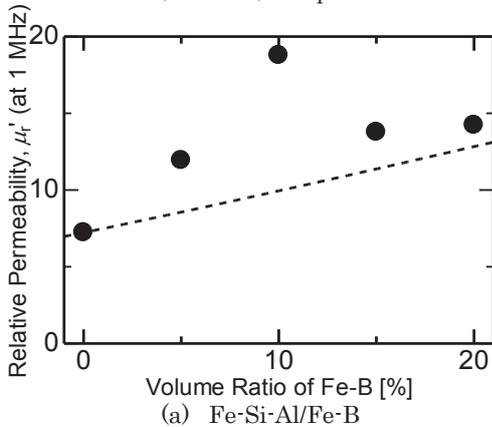


Fig. 6 Fe-B ratio dependence of relative permeability for composites with complex oriented structure.

とりわけ Fe-B 微粒子の充填率が 10 vol.% のとき 18.8 で最大となった。これは、複合配向化によって Fe-Si-Al 微粒子の反磁界が低減したことによるものと考えられる。このような Fe-B 微粒子との複合配向化によって μ_r' が増加し 10 vol.% のとき最大となる傾向は、FeNi/Fe-B 複合微粒子コンポジット材においても同様に確認された(Fig. 6(b))。また、Fe-Si-Al/Fe-B および FeNi/Fe-B 複合微粒子コンポジット材では、 μ_r' が向上する Fe-B 微粒子の充填率の範囲が Fe/Fe-B と比較して狭くなった原因としては、 μm 径の微粒子間に生じる磁束の強さの違いによるものと考えられる。すなわち、Fe-Si-Al および FeNi 微粒子のように、Fe と比較して飽和磁束密度が低い場合、微粒子間隔が広がると磁束の流れが弱まり、複合配向化の効果が得られにくくなるものと考えられる。なお、Fe 微粒子のように飽和磁束密度が高い場合には、微粒子間に生じる磁束の流れは強く、Fe 微粒子の間隔が広がっても Fe-B 微粒子を引き寄せることが可能であると考えられる。そのため、Fe/Fe-B 微粒子コンポジット材の複合配向化による μ_r' の増加が、Fig.3 に示したように 5 vol.% 以上でほぼ一定になったと考えられる。

以上の結果から、Fe-Si-Al/Fe-B、FeNi/Fe-B 複合微粒子コンポジット材において、適切な充填率であれば飽和磁束密度および μ_r' が向上することがわかった。また、これらの結果は Fe-B 微粒子が低い充填率であれば、 μm 径微粒子の飽和磁束密度によらず複合配向化の効果が十分に得られることを示唆している。受動素子を構成する新たな軟磁性材料の開発に向けて、さらに飽和磁束密度および μ_r' を向上させるには、 μm 径微粒子を最大まで充填し、その間に流れる磁束に最適な比率で Fe-B 微粒子を配向させることが必要である。しかしながら、本研究で用いたコンポジット材の合成法では、充填率の向上は困難であるため、新たなコンポジット材の合成法を検討する必要がある。

4. まとめ

μm 径の Fe、Fe-Si-Al、FeNi 微粒子とサブ μm 径の Fe-B アモルファス微粒子とをそれぞれ複合配向化し、それらの構造および磁気特性の Fe-B 微粒子の充填率による変化について検討し、以下の知見を得た。

構造に関しては、いずれの複合微粒子コンポジット材においても、複合配向化によって μm 径微粒子の隙間に Fe-B 微粒子が詰められている様子が確認された。

磁気特性に関しては、複合配向化によって充填率が増すと、飽和磁束密度が高くなった。いずれの複合微粒子コンポジット材においても初透磁率領域を越えて μ_r' が向上し、 μm 径微粒子の飽和磁束密度が低くなるほどこの範囲は広がった。また、Fe 微粒子に対して 5 vol.%、Fe-Si-Al および FeNi 微粒子に対して 10 vol.% の Fe-B 微粒子を複合配向化させることで、 μ_r' が μm 径微粒子の μ_i に近い値まで向上した。

以上の結果から、最適な比率で μm 径微粒子と Fe-B 微粒子とを複合配向化させることによって飽和磁束密度および

μ_r を向上させる効果があることがわかった。また、 μm 径微粒子とサブ μm 径のFe-B微粒子とを複合配向化させた微粒子コンポジット材は、次世代パワーエレクトロニクス用の受動素子を構成する軟磁性材料の候補の一つとして提案できる。

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、東北大学先端スピントロニクス研究開発センター(CSIS)、東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター(CSRN)の支援のもとで行われました。

References

- 1) J. Millan, P. Godignon, X. Perpina, A. Perez-Tomas, J. Rebollo: *IEEE Trans. Power Electron.*, **29** (5), 2155, (2014).
- 2) H. Yamaguchi: *IEEE Trans. Power and Energy*, **132** (3), 209, (2012).
- 3) H. Matsumori, T. Shimizu: *IEEE Journal*, **141** (10), 621, (2021).
- 4) D. J. Perreault et al., *Twenty-Fourth Annual IEEE Applied Power Electron. Conference and Exposition*, 1, (2009).
- 5) P. A. Kyaw, A. L. F. Stein, C. R. Sullivan: *IEEE Trans. Power Electron.*, **33** (12), 10708, (2018).
- 6) M. S. Rylko, B. J. Lyons, J. G. Hayes, M. G. Egan: *IEEE Trans. Power Electron.*, **26** (8), 2112, (2011).
- 7) H-I. Hsiang: *J. Mater. Sci.: Materials in Electronics*, **31**, 16089, (2020).
- 8) M. Sugimoto: *J. Am. Ceram. Soc.*, 82 (2), 269-280, (1999).
- 9) H. Shokrollahi, K. Janghorban: *J. Mater. Processing Technology*, **189**, 1, (2007).
- 10) K. J. Sunday, M. L. Taheri: *Metal Powder Report*, **72** (6), 425, (2017).
- 11) Y. Shimada, M. Yamaguchi, S. Okamoto, O. Kitakami, G. W. Qin, K. Oikawa: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **30**, 540, (2006).
- 12) Y. Shimada, Y. Endo, M. Yamaguchi, S. Okamoto, O. Kitakami: *J. Magn. Soc. Jpn.*, **33**, 95, (2009).
- 13) Y. Shimada, Y. Endo, M. Yamaguchi, S. Okamoto, O. Kitakami, Y. Imano, H. Matsumoto, S. Yoshida: *IEEE Trans. Magn.*, **45** (10), 4298, (2009).
- 14) K. Murata, T. Miyazaki, H. Masumoto, Y. Endo: *T. Magn. Soc. Jpn. (Special Issues)*, **5**, 1 (2021).
- 15) R. Ramprasad, P. Zurcher, M. Petras, M. Miller: *J. Appl. Phys.*, **96** (1), 519, (2004).

2022年11月6日受理, 2023年1月26日採録