

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2019年2月14日(14.02.2019)



(10) 国際公開番号

WO 2019/031464 A1

- (51) 国際特許分類:
B22F 1/00 (2006.01) *H01F 1/153* (2006.01)
B22F 9/08 (2006.01) *C22C 38/00* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2018/029476
- (22) 国際出願日: 2018年8月6日(06.08.2018)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2017-152561 2017年8月7日(07.08.2017) JP
- (71) 出願人: 日立金属株式会社 (HITACHI METALS,LTD.) [JP/JP]; 〒1058224 東京都港区港南一丁目2番70号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 加藤 哲朗(KATO, Tetsuro); 〒1058224 東京都港区港南一丁目2番70号 日立金属株式会社内 Tokyo (JP). 千綿 伸彦(CHIWATA, Nobuhiko); 〒1058224 東京都港区港南一丁目2番70号 日立金属株式会社内 Tokyo (JP). 太田 元基(OHTA, Motoki); 〒1058224 東京都港区港南一丁目2番70号 日立金属株式会社内 Tokyo (JP). 野口 伸(NOGUCHI, Shin); 〒1058224 東京都港区港南一丁目2番70号 日立金属株式会社内 Tokyo (JP). 山中 修司(YAMANAKA, Shuji); 〒1058224 東京都港区港南一丁目2番70号 日立金属株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 中島 淳, 外 (NAKAJIMA, Jun et al.); 〒1600022 東京都新宿区新宿4丁目3番17号 HK新宿ビル7階 太陽国際特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: CRYSTALLINE Fe-BASED ALLOY POWDER AND METHOD FOR PRODUCING SAME

(54) 発明の名称: 結晶質 Fe 基合金粉末及びその製造方法

(57) Abstract: This crystalline Fe-based alloy powder is composed of Fe-based alloy particles containing, within the structure, crystalline nanoparticles having an average particle diameter of 30 nm or less. As found by laser diffractometry, a cumulative distribution curve showing the relationship between particle size and cumulative frequency from the small particle diameter side indicates that d50, which is the particle size corresponding to the cumulative frequency of 50 vol%, is 3.5-35.0 μm, and as found by laser diffractometry, the ratio of Fe-based alloy particles having a diameter of 2 μm or less to the total of the Fe-based alloy particles is 0-8 vol%.

(57) 要約: 組織内に平均粒径 30 nm 以下のナノ結晶粒を含有する Fe 基合金粒子からなり、レーザー回折法によって求められる、粒子径と小粒子径側からの積算頻度との関係を示す積算分布曲線において、積算頻度 50 体積%に対応する粒子径である d50 が、3.5 μm 以上 35.0 μm 以下であり、レーザー回折法によって求められる、前記 Fe 基合金粒子の全体に占める粒子径 2 μm 以下の Fe 基合金粒子の割合が、0 体積%以上 8 体積%以下である結晶質 Fe 基合金粉末。

WO 2019/031464 A1

明 細 書

発明の名称：結晶質 Fe 基合金粉末及びその製造方法

技術分野

[0001] 本開示は、結晶質 Fe 基合金粉末及びその製造方法に関する。

背景技術

[0002] 従来より、Fe 基合金粒子からなる Fe 基合金粉末が知られている。

例えば、特許文献 1 には、軟磁気特性（特に高周波磁気特性）に優れ、含浸や変形等による特性劣化の小さい低磁歪の Fe 基軟磁性合金として、一般式 $(Fe_{1-a}M_a)_{100-x-y-z-\alpha}Cu_xSi_yB_zM'_\alpha$ （ただし、M は Co 及び/又は Ni であり、M' は Nb、W、Ta、Zr、Hf、Ti 及び Mo からなる群から選ばれた少なくとも 1 種の元素であり、a、x、y、z 及び α はそれぞれ $0 \leq a \leq 0.5$ 、 $0.1 \leq x \leq 3$ 、 $0 \leq y \leq 30$ 、 $0 \leq z \leq 25$ 、 $5 \leq y + z \leq 30$ 及び $0.1 \leq \alpha \leq 30$ を満たす。）により表される組成を有し、組織の少なくとも 50% が微細な結晶粒からなることを特徴とする Fe 基軟磁性合金が開示されている。この特許文献 1 の第 9 ページには、この Fe 基軟磁性合金として、粉末状のものが開示されている。

特許文献 2 には、飽和電流、インダクタンス、透磁率、コアロス値に優れたパワーインダクタを製造するための FeSiBNbCu 系軟磁性金属粉末として、ナノ結晶粒が形成されている球形の FeSiBNbCu 系軟磁性金属粉末が開示されている。

特許文献 3 には、圧粉されたときに粒子間の高い絶縁性を確保し得る軟磁性粉末として、 $Fe_{100-a-b-c-d-e-f}Cu_aSi_bB_cM_dM'_eX_f$ （原子%）〔ただし、M は、Nb、W、Ta、Zr、Hf、Ti および Mo からなる群より選択される少なくとも 1 種の元素であり、M' は、V、Cr、Mn、Al、白金族元素、Sc、Y、Au、Zn、Sn および Re からなる群より選択される少なくとも 1 種の元素であり、X は、C、P、Ge、Ga、Sb、In、Be および As からなる群より選択される少なくとも 1 種の元素で

あり、 a 、 b 、 c 、 d 、 e および f は、 $0 < a \leq 3$ 、 $0 < b \leq 30$ 、 $0 < c \leq 25$ 、 $5 \leq b + c \leq 30$ 、 $0 < d \leq 30$ 、 $0 \leq e \leq 10$ および $0 \leq f \leq 10$ を満たす数である。]で表される組成を有し、粒径 1 nm 以上 30 nm 以下の結晶組織を 40 体積%以上含有し、目開き $45 \mu\text{m}$ のJIS標準ふるい、目開き $38 \mu\text{m}$ のJIS標準ふるい、および目開き $25 \mu\text{m}$ のJIS標準ふるいをこの順で用いる分級処理に供されたとき、目開き $45 \mu\text{m}$ のJIS標準ふるいを通過し、目開き $38 \mu\text{m}$ のJIS標準ふるいを通過しない粒子を第1粒子とし、目開き $38 \mu\text{m}$ のJIS標準ふるいを通過し、目開き $25 \mu\text{m}$ のJIS標準ふるいを通過しない粒子を第2粒子とし、目開き $25 \mu\text{m}$ のJIS標準ふるいを通過する粒子を第3粒子とすると、第1粒子の保磁力 H_{c1} 、第2粒子の保磁力 H_{c2} 、および第3粒子の保磁力 H_{c3} は、 H_{c2}/H_{c1} が 0.85 以上 1.4 以下であり、かつ、 H_{c3}/H_{c1} が 0.5 以上 1.5 以下であるという関係を満たすことを特徴とする軟磁性粉末が開示されている。

特許文献4には、磁気特性に優れる圧粉磁心の製造方法として、組織の少なくとも 50% 以上が結晶粒径 100 nm 以下のナノ結晶組織を有するナノ結晶磁性粉末、または熱処理により前記ナノ結晶組織を発現可能な組成の非晶質磁性粉末の何れかである磁性粉末を成形、固着する圧粉磁心の製造方法であって、磁性粉末は、水アトマイズ法により製造されてなり、一般式： $\text{Fe}_{(100-x-y-z-\alpha-\beta)}\text{B}_x\text{Si}_y\text{Cu}_z\text{M}_\alpha\text{M}'_\beta$ （原子%）（但し、 M は Nb 、 W 、 Ta 、 Zr 、 Hf 、 Ti 、 Mo からなる群から選ばれた少なくとも1種の元素、 M' は V 、 Cr 、 Mn 、 Al 、白金属元素、 Sc 、 Y 、 Au 、 Zn 、 Sn 、 Re 及び Ag からなる群から選ばれた少なくとも1種の元素であり、 x 、 y 、 z 、 α 、 β 、はそれぞれ $12 \leq x \leq 15$ 、 $0 < y \leq 15$ 、 $0.1 \leq z \leq 3$ 、 $0.1 \leq \alpha \leq 30$ 、 $0 \leq \beta \leq 10$ を満たす。）により表される組成であることを特徴とする圧粉磁心の製造方法が開示されている。

[0003] 特許文献1：特開昭64-079342号公報

特許文献2：特開2016-25352号公報

特許文献3：特開2017-110256号公報

特許文献4：特開2004-349585号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 本開示の一態様の課題は、保磁力が低減された結晶質Fe基合金粉末を提供することである。

本発明の別の態様の課題は、保磁力が低減された結晶質Fe基合金粉末を製造できる、結晶質Fe基合金粉末の製造方法を提供することである。

課題を解決するための手段

[0005] 上記課題を解決するための手段には、以下の態様が含まれる。

<1> 組織内に平均粒径30nm以下のナノ結晶粒を含有するFe基合金粒子からなり、

レーザー回折法によって求められる、粒子径と小粒子径側からの積算頻度との関係を示す積算分布曲線において、積算頻度50体積%に対応する粒子径である d_{50} が、 $3.5\mu\text{m}$ 以上 $35.0\mu\text{m}$ 以下であり、

レーザー回折法によって求められる、前記Fe基合金粒子の全体に占める粒子径 $2\mu\text{m}$ 以下のFe基合金粒子の割合が、0体積%以上8体積%以下である結晶質Fe基合金粉末。

<2> 前記積算分布曲線において、積算頻度10体積%に対応する粒子径を d_{10} とし、積算頻度90体積%に対応する粒子径を d_{90} とした場合に、 $(d_{90} - d_{10}) / d_{50}$ が、1.00以上4.00以下である請求項1に記載の結晶質Fe基合金粉末。

<3> 印加磁界 40kA/m における保磁力が、 190A/m 以下である<1>又は<2>に記載の結晶質Fe基合金粉末。

<4> 前記粒子径 $2\mu\text{m}$ 以下のFe基合金粒子の割合が、0体積%以上7体積%以下である前記<1>~<3>のいずれか1つに記載の結晶質Fe基合金粉末。

<5> 前記 d_{50} が、 $5.0\mu\text{m}$ 超 $35.0\mu\text{m}$ 以下であり、

レーザー回折法によって求められる、前記F e基合金粒子の全体に占める粒子径5 μ m以下のF e基合金粒子の割合が、0体積%以上8体積%以下である<1>~<4>のいずれか1つに記載の結晶質F e基合金粉末。

<6> 前記F e基合金粒子の全体に占める粒子径5 μ m以下のF e基合金粒子の割合が、0体積%以上5体積%以下である<5>に記載の結晶質F e基合金粉末。

<7> 前記F e基合金粒子の組成は、Cu、Si、及びB、並びに、Nb及びMoの少なくとも一方を含有し、残部がF e及び不純物を含有する組成である<1>~<6>のいずれか1つに記載の結晶質F e基合金粉末。

<8> 前記F e基合金粒子の組成は、Cu、Si、B、Nb、Mo、Cr、及びF eの総含有量を100原子%とした場合に、Cuの含有量が0.1原子%以上3.0原子%以下であり、Siの含有量が13.0原子%以上16.0原子%以下であり、Bの含有量が7.0原子%以上12.0原子%未満であり、Nb及びMoの合計含有量が0原子%超6.0原子%以下であり、Crの含有量が0原子%以上5.0原子%以下である<7>に記載の結晶質F e基合金粉末。

<9> Moの含有量が、0原子%超4.0原子%未満である<8>に記載の結晶質F e基合金粉末。

<10> 前記F e基合金粒子の形状が、曲面によって囲まれた形状である<1>~<9>のいずれか1つに記載の結晶質F e基合金粉末。

<11> 前記F e基合金粒子は、表層部に酸化被膜を含む<1>~<10>のいずれか1つに記載の結晶質F e基合金粉末。

<12> <1>~<11>のいずれか1つに記載の結晶質F e基合金粉末を製造する方法であって、

アトマイズ法により、非晶質F e基合金粒子からなる非晶質F e基合金粉末を得る工程と、

前記非晶質F e基合金粉末に対し、分級及び熱処理をこの順に施すか、又は、熱処理及び分級をこの順に施すことにより、前記結晶質F e基合金粉末

を得る工程と、

を含む結晶質 Fe 基合金粉末の製造方法。

< 1 3 > 前記分級は、篩を用いて行う第 1 分級と、前記第 1 分級後に遠心力型気流式分級機を用いて行う第 2 分級と、を含む< 1 2 >に記載の結晶質 Fe 基合金粉末の製造方法。

発明の効果

[0006] 本開示の一態様によれば、保磁力が低減された結晶質 Fe 基合金粉末が提供される。

本発明の別の態様によれば、保磁力が低減された結晶質 Fe 基合金粉末を製造できる、結晶質 Fe 基合金粉末の製造方法を提供することである。

図面の簡単な説明

[0007] [図1]本開示の実施例中、熱処理後の試料 No. 25 (結晶質 Fe 基合金粉末) を、5000 倍の倍率で撮影した SEM 写真である。

[図2]本開示の実施例中、試料 No. 1 ~ No. 25 (ただし、試料 No. * 4 及び試料 No. * 8 を除く) における、粒子径 2 μ m 以下の粒子の割合と、保磁力と、の関係を示すグラフである

[図3]本開示の実施例中、試料 No. 1 ~ No. 25 (ただし、試料 No. * 4 及び試料 No. * 8 を除く) における、粒子径 5 μ m 以下の粒子の割合と、保磁力と、の関係を示すグラフである。

[図4]本開示の実施例中、試料 No. 9、試料 No. 10、試料 No. 11、試料 No. 12、及び、試料 No. * 13 (比較例) の粒度分布図である。

発明を実施するための形態

[0008] 本明細書において、「~」を用いて示された数値範囲は、「~」の前後に記載される数値をそれぞれ最小値及び最大値として含む範囲を意味する。

本明細書において、「工程」との用語は、独立した工程だけではなく、他の工程と明確に区別できない場合であってもその工程の所期の目的が達成されれば、本用語に含まれる。

[0009] [結晶質 Fe 基合金粉末]

本開示の結晶質 Fe 基合金粉末は、組織内に平均粒径 30 nm 以下のナノ結晶粒を含有する Fe 基合金粒子からなり、レーザー回折法によって求められる、粒子径と小粒子径側からの積算頻度との関係を示す積算分布曲線において、積算頻度 50 体積%に対応する粒子径である d_{50} が、 $3.5 \mu\text{m}$ 以上 $35.0 \mu\text{m}$ 以下であり、レーザー回折法によって求められる、上記 Fe 基合金粒子の全体に占める粒子径 $2 \mu\text{m}$ 以下の Fe 基合金粒子の割合が、0 体積%以上 8 体積%以下である。

[0010] 本明細書において、結晶質 Fe 基合金粉末とは、結晶相及び非晶質相の両方を含む Fe 基合金粉末を意味する。ここでいう結晶相の概念には、上記平均粒径 30 nm 以下のナノ結晶粒も包含される。

また、本明細書では、結晶質 Fe 基合金粉末を構成する Fe 基合金粒子を、結晶質 Fe 基合金粒子と称することがある。

[0011] 本開示の結晶質 Fe 基合金粉末では、保磁力が低減されている。

このため、本開示の粉末は、良好な軟磁気特性を有する。

保磁力低減の効果が奏される理由は明らかではないが、以下のように推測される。但し、本開示の結晶質 Fe 基合金粉末は、以下の理由によって限定されることはない。

[0012] 本開示の結晶質 Fe 基合金粉末は、上述のとおり、組織内に平均粒径 30 nm 以下のナノ結晶粒を含有する Fe 基合金粒子からなる。このナノ結晶粒が、Fe 基合金粒子全体（即ち、結晶質 Fe 基合金粉末）の磁気特性向上に寄与している。

一方、Fe 基合金粒子の表層近傍には、Fe 以外の元素（例えば、Si、B、Cu）が偏析した偏析領域が生じ得ると考えられる。このような偏析領域は、実質的に非磁性であるか、又は、Fe 基合金と比較して磁性に劣る。このため、上記偏析領域は、Fe 基合金粒子（即ち、結晶質 Fe 基合金粉末）の磁気特性の劣化の要因となり得る。

粒子径 $2 \mu\text{m}$ 以下の Fe 基合金粒子は、粒子径 $2 \mu\text{m}$ 超の Fe 基合金粒子と比較して、ナノ結晶粒が存在する領域の体積割合が小さく、かつ、偏析領

域が占める体積割合が大きい。従って、結晶質 Fe 基合金粉末が、粒子径 2 μm 以下の Fe 基合金粒子を含有することは、結晶質 Fe 基合金粉末の全体の磁気特性を劣化させる要因となり得ると考えられる。

本開示の結晶質 Fe 基合金粉末では、Fe 基合金粒子の全体に占める粒子径 2 μm 以下の Fe 基合金粒子の割合が、0 体積%以上 8 体積%以下にまで低減されている。これにより、粒子径 2 μm 以下の Fe 基合金粒子に起因する磁気特性の劣化が抑制され、その結果、結晶質 Fe 基合金粉末の全体において保磁力が低減されることが考えられる。

[0013] 従来、Fe 基合金粉末の磁気特性向上に関し、粒子径が大きい Fe 基合金粒子が注目されることがあったが、粒子径が小さい Fe 基合金粒子についてはほとんど注目されてこなかった。

本開示の結晶質 Fe 基合金粉末は、粒子径が小さい Fe 基合金粒子（具体的には、粒子径 2 μm 以下の Fe 基合金粒子）に注目し、見出されたものである。

[0014] 上述したとおり、本開示の結晶質 Fe 基合金粉末では、保磁力が低減されている。

本開示の結晶質 Fe 基合金粉末において、印加磁界 40 k A/m における保磁力は、好ましくは 190 A/m 以下であり、より好ましくは 130 A/m 以下であり、更に好ましくは 60 A/m 以下であり、更に好ましくは 40 A/m 以下である。

印加磁界 40 k A/m における保磁力の下限には特に制限はないが、本開示の結晶質 Fe 基合金粉末の製造適性の観点から、下限は、5 A/m であってもよく、また、10 A/m であってもよい。

なお、印加磁界 40 k A/m は、印加磁界 5000 e に相当する。

[0015] <ナノ結晶粒>

本開示の結晶質 Fe 基合金粉末は、組織内に平均粒径 30 nm 以下のナノ結晶粒を含有する Fe 基合金粒子からなる。

ここでいう「組織」とは、Fe 基合金粒子の組織を意味する。

ナノ結晶粒の平均粒径が30 nm以下であることにより、結晶質Fe基合金粉末の保磁力を低減させる効果が奏される。

一方、ナノ結晶粒の平均粒径は、好ましくは5 nm以上である。ナノ結晶粒の平均粒径が5 nm以上である場合には、結晶質Fe基合金粉末の磁気特性をより向上させることができる。

[0016] 本明細書において、結晶質Fe基合金粉末が、組織内に平均粒径30 nm以下のナノ結晶粒を含有するFe基合金粒子からなることは、以下の方法によって求められたナノ結晶粒の平均粒径が30 nm以下であることを意味する。

ナノ結晶粒は微細な結晶構造を有し、一つのナノ結晶粒が、単結晶であると考えられる。このため、本明細書では、結晶子の大きさを、ナノ結晶粒の平均粒径として扱う。

具体的には、まず、本開示の結晶質Fe基合金粉末を圧粉し、平坦面を有するX線回折用試料を作製する。作製したX線回折用試料の平坦面について、粉末X線回折を行い、X線回折スペクトルを得る。

粉末X線回折は、Cu-K α 線源のX線回折装置（例えば、リガク製RINT2000）を用い、0.02 deg/step及び2 step/secの条件で、2 θ が20~60 $^{\circ}$ の範囲にて行う。

得られたX線回折スペクトルにおける、bccFe-Si〔回折面(110)〕のピークを用い、以下に示すシェラー（Scherrer）の式により、結晶子の大きさDを求める。

得られた結晶子の大きさDを、ナノ結晶粒の平均粒径とする。

[0017] $D = (K \cdot \lambda) / (\beta \cos \theta)$ … シェラーの式

[Dは、結晶子の大きさを表し、Kは、シェラー定数を表し、具体的には0.9であり、 λ は、X線の波長を表し、 β は、回折面(110)のピークの半値全幅を表し、 θ はブラッグ角（Bragg angle：回折角2 θ の半分）を表す。]

[0018] 後述する実施例では、いずれの試料においても、X線回折スペクトルにお

ける回折最大強度であるメインピークは、 $2\theta = 45^\circ$ 付近にあり、bcc Fe-Si〔回折面(110)〕のピークであった。

[0019] 本開示の結晶質Fe基合金粉末を構成するFe基合金粒子は、組織内における結晶相の含有率が、好ましくは30体積%以上である。ここでいう結晶相の概念には、前述したナノ結晶粒が包含される。

Fe基合金粒子の組織内における結晶相の含有率が30体積%以上である場合には、結晶質Fe基合金粉末の磁歪をより低減できる。Fe基合金粒子の組織内における結晶相の含有率は、より好ましくは50体積%以上である。

Fe基合金粒子の組織内における結晶相の含有率の上限には特に制限はない。磁歪は、結晶相と非晶質相とのバランスにも影響される場合がある。この点を考慮すると、合金組織中の結晶相の含有率の上限は、例えば95体積%であってもよく、90体積%以下であってもよい。

[0020] ナノ結晶粒は、好ましくはbcc Fe-Siを含む。

ナノ結晶粒は、更に、FeB系の化合物を含んでいてもよい。

[0021] Fe基合金粒子の組織内における結晶相の含有率(CP)は、前述した粉末X線回折によるX線回折スペクトルにおいて、非晶質相に由来するブロードな回折パターンの面積(AA)及び結晶相に由来する回折最大強度であるメインピーク的面積(AC)に基づき、下記式によって算出することができる。

$$\text{含有率 (CP) (体積\%)} = AC / (AC + AA) \times 100$$

[0022] $\langle d50 \rangle$

本開示の結晶質Fe基合金粉末は、レーザー回折法によって求められる、粒子径と小粒子径側からの積算頻度との関係を示す積算分布曲線において、積算頻度50体積%に対応する粒子径であるd50が、 $3.5\mu\text{m}$ 以上 $35.0\mu\text{m}$ 以下である。

d50が $3.5\mu\text{m}$ 以上であると、本開示の結晶質Fe基合金粉末を用いて製造された磁心(例えば、圧粉磁心、メタルコンポジットコア等)におい

て、Fe基合金粒子の占積率を向上させることができ、これにより、上記磁心の飽和磁束密度及び透磁率を向上させることができる。結晶質Fe基合金粉末のd50は、好ましくは5.0μm超であり、より好ましくは8.0μm以上である。

d50が35.0μm以下であると、本開示の結晶質Fe基合金粉末を用いて製造された磁心において、渦電流損失を低減できる。これにより、例えば、上記磁心を500kHz以上といった高周波条件で用いた場合における磁心損失を低減できる。結晶質Fe基合金粉末のd50は、好ましくは28.0μm以下であり、より好ましくは19.0μm以下である。

[0023] 本明細書中において、結晶質Fe基合金粉末のd50は、レーザー回折法によって求められる、粒子径と小粒子径側からの積算頻度との関係を示す積算分布曲線において、積算頻度50体積%に対応する粒子径である。

即ち、結晶質Fe基合金粉末のd50は、レーザー回折法によって求められる、Fe基合金粒子の体積基準のメジアン径である。

以下、結晶質Fe基合金粉末のd50の測定方法の一例を示す。

本開示の結晶質Fe基合金粉末の全体について、レーザー回折法により、粒子径(μm)と、小粒子径側からの積算頻度(体積%)と、の関係を示す積算分布曲線を求める。装置としては、例えば、レーザー回折散乱式粒度分布測定装置(例えば、堀場製作所製LA-920)を用いる。

得られた積算分布曲線において、積算頻度50体積%に対応する粒子径を読み取り、この粒子径を、結晶質Fe基合金粉末のd50とする。

[0024] $\langle (d90 - d10) / d50 \rangle$

本開示の結晶質Fe基合金粉末は、上述した積算分布曲線において、積算頻度10体積%に対応する粒子径をd10とし、積算頻度90体積%に対応する粒子径をd90とした場合に、 $(d90 - d10) / d50$ が、1.00以上4.00以下であることが好ましい。

$(d90 - d10) / d50$ は、数値が小さい程、粒子径のバラつきが小さいことを意味する。

($d_{90} - d_{10}$) / d_{50} が 1.00 以上である場合には、結晶質 Fe 基合金粉末を用いて製造された磁心（例えば、圧粉磁心、メタルコンポジットコア等）において、Fe 基合金粒子の占積率がより向上する。

($d_{90} - d_{10}$) / d_{50} が 4.00 以下である場合には、結晶質 Fe 基合金粉末中に占める、相対的に粒子径が大きい粒子の割合が低減され、その結果、所望とする磁気特性が得られやすくなる。この点について詳述すると、後述する熱処理前の非晶質 Fe 基合金粒子において、相対的に粒子径が大きい粒子には、組織内に粗大な結晶相が形成され易い。そのような粒子に熱処理を施しても組織にナノ結晶粒の結晶相は得られにくく、所望の磁気特性が得られない場合がある。この点に関し、($d_{90} - d_{10}$) / d_{50} が 4.00 以下である場合には、結晶質 Fe 基合金粉末中に占める、相対的に粒子径が大きい粒子の割合が低減されるので、所望とする磁気特性が得られ易くなる。

ここで、 d_{50} の意味については前述のとおりである。

d_{10} は、レーザー回折法によって求められる、粒子径と小粒子径側からの積算頻度との関係を示す積算分布曲線において、積算頻度 10 体積% に対応する粒子径を意味する。

d_{90} は、上述した積算分布曲線において、積算頻度 90 体積% に対応する粒子径を意味する。

d_{10} 及び d_{90} の測定方法の一例は、それぞれ、積算頻度 10 体積% に対応する粒子径及び積算頻度 90 体積% に対応する粒子径を読み取ること以外は、 d_{50} の測定方法の一例と同様である。

[0025] <粒子径 2 μ m 以下の Fe 基合金粒子の割合>

本開示の結晶質 Fe 基合金粉末において、レーザー回折法によって求められる、Fe 基合金粒子の全体に占める粒子径 2 μ m 以下の Fe 基合金粒子の割合（以下、単に「粒子径 2 μ m 以下の Fe 基合金粒子の割合」ともいう）は、0 体積% 以上 8 体積% 以下である。

これにより、結晶質 Fe 基合金粉末の保磁力が低減される。

[0026] 粒子径 $2\ \mu\text{m}$ 以下の Fe 基合金粒子の割合は、好ましくは 0 体積%以上 7 体積%以下である。

これにより、Fe 基合金粉末の保磁力がより低減される。このため、例えば、印加磁界 $40\ \text{kA/m}$ における保磁力が $130\ \text{A/m}$ 以下であることを達成し易い。

[0027] 本明細書中において、Fe 基合金粒子の全体に占める粒子径 $2\ \mu\text{m}$ 以下の Fe 基合金粒子の割合（体積%）は、レーザー回折法によって求められた値を意味する。

以下、レーザー回折法による粒子径 $2\ \mu\text{m}$ 以下の Fe 基合金粒子の割合（体積%）の測定方法の一例を示す。

本開示の結晶質 Fe 基合金粉末の全体について、 d_{50} の測定方法の一例と同様にして、積算分布曲線を求める。

得られた積算分布曲線において、粒子径 $2\ \mu\text{m}$ に対応する積算頻度を読み取り、この積算頻度を、Fe 基合金粒子の全体に占める粒子径 $2\ \mu\text{m}$ 以下の Fe 基合金粒子の割合とする。

[0028] <粒子径 $5\ \mu\text{m}$ 以下の Fe 基合金粒子の割合>

本開示の結晶質 Fe 基合金粉末において、レーザー回折法によって求められる、Fe 基合金粒子の全体に占める粒子径 $5\ \mu\text{m}$ 以下の Fe 基合金粒子の割合（以下、単に「粒子径 $5\ \mu\text{m}$ 以下の Fe 基合金粒子の割合」ともいう）は、好ましくは 0 体積%以上 8 体積%以下であり、より好ましくは 0 体積%以上 5 体積%以下である。これにより、結晶質 Fe 基合金粉末の保磁力がより低減される。

[0029] 本明細書中において、Fe 基合金粒子の全体に占める粒子径 $5\ \mu\text{m}$ 以下の Fe 基合金粒子の割合（体積%）は、レーザー回折法によって求められた値を意味する。

レーザー回折法による粒子径 $5\ \mu\text{m}$ 以下の Fe 基合金粒子の割合（体積%）の測定方法の一例は、積算分布曲線において粒子径 $5\ \mu\text{m}$ に対応する積算頻度を読み取ること以外は、前述したレーザー回折法による粒子径 $2\ \mu\text{m}$ 以

下のF e基合金粒子の割合（体積％）の測定方法の一例と同様である。

[0030] 本開示の結晶質F e基合金粉末において、d 5 0と、粒子径5 μ m以下のF e基合金粒子の割合と、の好ましい組み合わせとして、d 5 0が5. 0 μ m超3 5. 0 μ m以下であり、かつ、粒子径5 μ m以下のF e基合金粒子の割合が0体積％以上8体積％以下である組み合わせが挙げられる。

この組み合わせであると、結晶質F e基合金粉末の保磁力をより低減できる。このため、例えば、印加磁界4 0 k A / mにおける保磁力が6 0 A / m以下であることを達成し易い。

上記組み合わせにおいて、粒子径5 μ m以下のF e基合金粒子の割合が0体積％以上5体積％以下であることがより好ましい。この場合には、結晶質F e基合金粉末の保磁力を更に低減できるので、例えば、印加磁界4 0 k A / mにおける保磁力が4 0 A / m以下であることを達成し易い。

[0031] <F e基合金>

本明細書中において、F e基合金とは、主成分としてF e（鉄）を含む合金を意味する。

ここで、主成分とは、含有比率（質量％）が最も高い成分を指す。

F e基合金におけるF eの含有比率は、好ましくは5 0質量％以上である。

[0032] F e基合金の組成として、好ましくは、C u（銅）、S i（ケイ素）、及びB（ホウ素）、並びに、N b（ニオブ）及びM o（モリブデン）の少なくとも一方を含有し、残部がF e及び不純物を含有する組成である。

かかる好ましい組成は、更に、C r（クロム）等を含有してもよい。

[0033] F e基合金の組成として、より好ましくは、C u、S i、B、N b、M o、C r、及びF eの総含有量を1 0 0原子％とした場合に、C uの含有量が0. 1原子％以上3. 0原子％以下であり、S iの含有量が1 3. 0原子％以上1 6. 0原子％以下であり、Bの含有量が7. 0原子％以上1 2. 0原子％未満であり、N b及びM oの合計含有量が0原子％超6. 0原子％以下であり、C rの含有量が0原子％以上5. 0原子％以下である。

Fe 基合金の組成が上記組成である場合には、結晶質 Fe 基合金粒子において、保磁力をより低減でき、飽和磁化を向上させることができ（例えば、飽和磁化を 110 emu/g 以上とすることができ）、磁歪定数をより低減できる。

[0034] 以下、Fe 基合金の組成に含有され得る各元素、及び、これらの元素の好ましい含有量について説明する。

以下に示す各元素の好ましい含有量（原子%）は、Cu、Si、B、Nb、Mo、Cr、及びFeの総含有量を100原子%とした場合の原子%である。

[0035] Cuは、微細な（具体的には、平均粒径30nm以下の）ナノ結晶粒の形成に寄与する元素である。

Cuの含有量は、好ましくは0.1原子%以上3.0原子%以下である。

Cuの含有量が0.1原子%以上である場合には、上述した効果がより効果的に奏される。

Cuの含有量が3.0原子%以下である場合には、粉末を構成する粒子の飽和磁束密度がより向上し、また、粉末を構成する粒子の脆化が抑制される。

[0036] Cuの含有量は、好ましくは1.5原子%以下であり、より好ましくは1.2原子%以下である。

Cuの含有量が1.5原子%以下である場合には、結晶質Fe基合金粉末の原料として非晶質Fe基合金粉末を用い、非晶質Fe基合金粉末を構成する粒子の組織の一部をナノ結晶化させて結晶質Fe基合金粉末を得る場合において、原料である非晶質Fe基合金中の結晶相の割合を低減させ易い。これにより、結晶質Fe基合金粉末において、より良好な軟磁気特性が得られる。

[0037] Siは、Fe基合金の非晶質化を促進する効果を有し、かつ、Feに固溶し、磁歪及び磁気異方性の低減に寄与する元素である。

Siの含有量は、好ましくは13.0原子%以上16.0原子%以下であ

る。

Siの含有量が13.0原子%以上16.0原子%以下である場合には、原料として非晶質Fe基合金粉末を用いる場合において、例えば後述するアトマイズ法により、非晶質Fe基合金粉末を製造し易い。その結果、結晶質Fe基合金粉末において、より良好な軟磁気特性が得られる。

[0038] Bは、Fe基合金の非晶質化を促進する効果を有する。

Bの含有量は、好ましくは7.0原子%以上12.0原子%未満である。

Bの含有量が7.0原子%以上である場合には、原料として非晶質Fe基合金粉末を用いる場合において、例えば後述するアトマイズ法により、非晶質Fe基合金粉末を製造し易い。その結果、結晶質Fe基合金粉末において、より良好な軟磁気特性が得られる。

Bの含有量が12.0原子%未満である場合には、磁性元素であるFeの含有量がより多く確保されるので、結晶質Fe基合金粉末における飽和磁化がより向上する。

[0039] Nb及びMoの合計含有量は、好ましくは0原子%超6.0原子%以下である。

Nb及びMoの合計含有量が6.0原子%以下である場合には、結晶質Fe基合金粉末における飽和磁化がより向上する。かかる効果の観点から、Nb及びMoの合計含有量は、より好ましくは4.0原子%未満であり、更に好ましくは3.5原子%以下である。

Nb及びMoの合計含有量が0原子%超である場合には、Fe基合金の非晶質化、及び、ナノ結晶粒の粒径の均一性向上（及び、これによる磁歪及び磁気異方性の低減）の点で有利である。かかる効果の観点から、Nb及びMoの合計含有量は、より好ましくは0.1原子%以上であり、更に好ましくは0.5原子%以上である。

特に、Moの含有量が0原子%超である場合には、Fe基合金の非晶質化の点でより有利である。かかる効果の観点から、Moの含有量は、好ましくは0原子%超であり、より好ましくは0.1原子%以上であり、更に好まし

くは0.5原子%以上である。また、Moの含有量は、好ましくは4.0原子%未満であり、更に好ましくは3.5原子%以下である。

[0040] Crの含有量は、好ましくは0原子%以上5.0原子%以下である。

Crの含有量が5.0原子%以下である場合には、結晶質Fe基合金粉末における飽和磁化がより向上する。

Crの含有量は、0原子%であってもよいし、0原子%超であってもよい。

Crの含有量が、0原子%超である場合には、結晶質Fe基合金粉末の耐食性向上、及び、結晶質Fe基合金粉末の保磁力低減の点で有利である。

[0041] Feは、Fe基合金の主成分であり、飽和磁化等の磁気特性に影響を与える元素である。

Feの含有量（原子%）は、他の元素の含有量とのバランスによって定まる。Feの含有量（原子%）は、結晶質Fe基合金粉末の飽和磁化をより向上させる観点から、好ましくは70原子%以上である。

また、結晶質Fe基合金粉末の原料として非晶質Fe基合金粉末を用い、非晶質Fe基合金粉末を構成する粒子の組織の一部をナノ結晶化させて結晶質Fe基合金粉末を得る場合、Feの含有量は、好ましくは79.9原子%未満である。Feの含有量が79.9原子%未満である場合には、原料として非晶質Fe基合金粉末において、非晶質Fe基合金中の結晶相の割合をより低減させることができる。これにより、結晶質Fe基合金粉末において、より良好な軟磁気特性が得られる。

[0042] Fe基合金の組成は、B及び／又はSiの一部に代えて、C（炭素）を含有していてもよい。

Fe基合金の組成は、Bの一部に代えて、P（燐）を含有してもよい。

[0043] Fe基合金の組成は、不純物を含有し得る。

不純物としては、S（硫黄）、O（酸素）、N（窒素）等が挙げられる。

Sの含有量は、好ましくは200質量ppm以下である。

Oの含有量は、好ましくは5000質量ppm以下である。

Nの含有量は、好ましくは1000質量ppm以下である。

[0044] <Fe基合金粒子の形状>

Fe基合金粒子の形状は、好ましくは、曲面によって囲まれた形状である。

粒子の形状が曲面によって囲まれた形状であることは、その粒子が、アトマイズ法によって形成された粒子であることを意味する。

これに対し、リボン（薄帯）形態のFe基合金を粉砕加工することによって形成される粒子の形状は、「曲面によって囲まれた形状」とはならない。

[0045] 曲面によって囲まれた形状としては、球形状、球形状に近似した形状、ティアドロップ型形状、ひょうたん型形状等が挙げられる。

Fe基合金からなる粒子は、球形状、又は、球形状に近似した形状を有する粒子を含むことが好ましい。

[0046] Fe基合金粒子の形状が、曲面によって囲まれた形状である場合（言い換えれば、Fe基合金からなる粒子が、アトマイズ法によって形成された粒子である場合）、本開示の粉末による効果がより効果的に奏される。

アトマイズ法の好ましい態様については後述する。

[0047] <酸化被膜>

Fe基合金粒子は、表層部に酸化被膜を含んでもよい。

Fe基合金粒子が、表層部に酸化被膜を含む場合には、保磁力低減の効果がより効果的に奏される。この理由は、以下のとおりと考えられる。

酸化被膜は、実質的に非磁性であるか、又は、Fe基合金と比較して磁性に劣る。

粒子径2 μ m以下のFe基合金粒子は、粒子径2 μ m超のFe基合金粒子と比較して、酸化被膜が占める体積割合が大きい。このため、Fe基合金粒子が表層部に酸化被膜を含む態様においては、粒子径2 μ m以下のFe基合金粒子（即ち、表層部に酸化被膜を含むFe基合金粒子）による磁気特性の劣化がより著しくなる。

従って、Fe基合金粒子が表層部に酸化被膜を含む態様においては、粒子

径 $2\mu\text{m}$ 以下のFe基合金粒子（即ち、表層部に酸化被膜を含むFe基合金粒子）の割合を0体積%以上8体積%以下とすることによる、保磁力の低減幅（即ち、改善幅）がより大きくなると考えられる。

[0048] Fe基合金の組成が、Cu、Si、B、並びに、Nb及びMoの少なくとも一方を含有し、残部がFe及び不純物を含有する組成である場合、酸化被膜は、Fe、Si、Cu、及びBを含むことが好ましい。

[0049] 酸化被膜の厚さは、好ましくは 2nm 以上である。

酸化被膜の厚さが 2nm 以上である場合には、粒子径 $2\mu\text{m}$ 以下のFe基合金粒子（即ち、表層部に酸化被膜を含むFe基合金粒子）の割合を0体積%以上8体積%以下とすることによる、保磁力の低減幅（即ち、改善幅）がより大きくなる。

酸化被膜の厚さが 2nm 以上である場合には、Fe基合金粒子の防錆性向上、Fe基合金粒子同士の絶縁性向上、Fe基合金粒子の酸化抑制等の観点からみても有利である。

酸化被膜の厚さの上限には特に制限はない。本開示の結晶質Fe基合金粉末を用いて磁心を製造する場合の成形性の観点から、酸化被膜の厚さの上限は、例えば 50nm である。

[0050] <好ましい用途>

以上で説明した、本開示の結晶質Fe基合金粉末は、磁心用の材料として特に好適である。

磁心としては、圧粉磁心、メタルコンポジットコア等が挙げられる。

[0051] 本開示の結晶質Fe基合金粉末を用いて得られた磁心は、インダクタ、ノイズフィルタ、チョークコイル、トランス、リアクトルなどに好適に用いられる。

[0052] 本開示の結晶質Fe基合金粉末を圧粉磁心用の材料として用いる場合、例えば、本開示の結晶質Fe基合金粉末を、バインダーと混合して使用する。

バインダーとしては、エポキシ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、フェノール樹脂、キシレン樹脂、ジアリルフタレート樹脂、シリコーン樹脂、ポリア

ミドイミド、ポリイミド、水ガラス等などが挙げられるが、これらに限定されるものではない。

[0053] 圧粉磁心は、例えば、以下の方法によって製造できる。

本開示の結晶質 Fe 基合金粉末とバインダーとの混合物を成形金型内に充填し、油圧プレス成形機等で 1 ~ 2 GPa 程度の成形圧力にて加圧することにより、成形体を得る。混合物は、更に、ステアリン酸亜鉛等の潤滑剤を含んでもよい。

得られた成形体を、例えば、200℃~結晶化温度未満の温度で1時間程度熱処理することにより、成形歪みを除去すると共にバインダーを硬化させて圧粉磁心を得る。

この場合の熱処理雰囲気は不活性雰囲気でも酸化雰囲気でもよい。

得られる圧粉磁心の形状には特に制限はなく、目的に応じて適宜選択される。

圧粉磁心の形状としては、環形状（例えば、円環形状、矩形枠形状等）、棒形状、等が挙げられる。

[0054] 本開示の結晶質 Fe 基合金粉末とバインダーとの混合物において、バインダーの含有量は、本開示の結晶質 Fe 基合金粉末とバインダーとの合計量に対し、1質量%~5質量%であることが好ましい。

この範囲であれば、バインダーの機能（たとえば、Fe 基合金粒子同士を結着させる結着材としての機能、Fe 基合金粒子間を絶縁する機能、強度保持の機能等）がより効果的に発揮される。

[0055] メタルコンポジットコアは、例えば、本開示の結晶質 Fe 基合金粉末とバインダーとの混合物中にコイルを埋没させて一体成形することにより製造できる。

バインダーとして、熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂を選択した場合には、射出成形等の公知の成形手段により、コイルを封止したメタルコンポジットコアを容易に製造できる。

[0056] また、本開示の結晶質 Fe 基合金粉末を磁心用の材料として用いる場合、

本開示の結晶質 Fe 基合金粉末を単独で用いてもよいし、他の金属粉末と混合して用いてもよい。

他の金属粉末としては、軟磁性粉末が挙げられ、具体的には、非晶質 Fe 基合金粉末、純 Fe 粉末、Fe-Si 合金粉末、Fe-Si-Cr 合金粉末、等が挙げられる。

他の金属粉末の d50 は、本開示の結晶質 Fe 基合金粉末の d50 に対し、小さくても大きくても同等であってもよく、目的に応じて適宜選定することができる。

[0057] [結晶質 Fe 基合金粉末の製造方法（製法 A）]

以下、本開示の結晶質 Fe 基合金粉末を製造するための製造方法の一例（以下、「製法 A」とする）を示す。

製法 A は、前述した本開示の結晶質 Fe 基合金粉末を製造する方法であって、

アトマイズ法により、非晶質 Fe 基合金粒子からなる非晶質 Fe 基合金粉末を得る工程と、

非晶質 Fe 基合金粉末に対し、分級及び熱処理をこの順に施すか、熱処理及び分級をこの順に施すことにより、上記結晶質 Fe 基合金粉末を得る工程と、

を含む。

製法 A は、必要に応じ、その他の工程を含んでいてもよい。

[0058] <非晶質 Fe 基合金粉末を得る工程>

製法 A は、アトマイズ法により、非晶質 Fe 基合金粒子からなる非晶質 Fe 基合金粉末を得る工程を含む。

アトマイズ法は、非晶質 Fe 基合金粉末の原料である Fe 基合金溶湯（以下、「原料溶湯」ともいう）を粉砕して粉末状とし、得られた粉末状の Fe 基合金溶湯を冷却することにより、非晶質 Fe 基合金粒子からなる非晶質 Fe 基合金粉末を得る方法である。

[0059] アトマイズ法によれば、表層部に酸化被膜を含む非晶質 Fe 基合金粒子が

形成されやすい。表層部に酸化被膜を含む非晶質 Fe 基合金粒子は、結晶質 Fe 基合金粉末を得る工程（即ち、分級及び熱処理）を経て、表層部に酸化被膜を含む結晶質 Fe 基合金粒子に転化される。

従って、製法 A によれば、前述した表層部に酸化被膜を含む態様の結晶質 Fe 基合金粒子からなる結晶質 Fe 基合金粉末（即ち、保磁力低減の効果がより効果的に奏される結晶質 Fe 基合金粉末）を製造し易い。

[0060] また、アトマイズ法によれば、曲面によって囲まれた形状（例えば、球形状、球形状に近似した形状、ティアドロップ型形状、ひょうたん型形状等）を有する非晶質 Fe 基合金粒子が得られる。曲面によって囲まれた形状を有する非晶質 Fe 基合金粒子は、結晶質 Fe 基合金粉末を得る工程（即ち、分級及び熱処理）を経て、前述した、曲面によって囲まれた形状を有する態様の結晶質 Fe 基合金粒子に転化される。

[0061] アトマイズ法としては特に制限はなく、ガスアトマイズ法、水アトマイズ法、ディスクアトマイズ法、高速回転水流アトマイズ法、高速燃焼炎アトマイズ法等の公知の方法を適用できる。

アトマイズ法としては、非晶質 Fe 基合金を得やすい点で、原料溶湯の微粉化性能に優れ、かつ、 $10^3\text{°C}/\text{秒}$ 以上（より好ましくは $10^5\text{°C}/\text{秒}$ 以上）の速度で冷却可能なアトマイズ法が好ましい。

[0062] 水アトマイズ法は、流下する原料溶湯を、ノズルから噴射した高圧水によって飛沫させて粉末状とし、かつ、この高圧水により、粉末状の原料溶湯の冷却も行うことにより、非晶質 Fe 基合金粉末（以下、単に「粉末」ともいう）を得る方法である。

ガスアトマイズ法は、ノズルより噴射した不活性ガスにより原料溶湯を粉末状とし、粉末状とされた原料溶湯を冷却することにより、粉末を得る方法である。ガスアトマイズ法における冷却としては、高圧水による冷却、アトマイズ装置の下部に設けた水槽による冷却、流水中に落下させることによる冷却、等が挙げられる。

高速回転水流アトマイズ法は、内周面が円筒面である冷却容器を用い、冷

却液を内周面に沿って旋回させながら流下させて層状に冷却液層を形成し、冷却液層に原料溶湯を落下させることによって粉末化させ、かつ、冷却させて粉末を得る方法である。

高速燃焼炎アトマイズ法は、高速燃焼器によって火炎を超音速または音速に近い速度でフレームジェットとして噴射することによって原料溶湯を粉末状とし、粉末状とされた原料溶湯を、水等を冷却媒体とする急速冷却機構により冷却させて粉末を得る方法である。高速燃焼炎アトマイズ法については、例えば、特開2014-136807号を参照できる。

[0063] アトマイズ法としては、冷却効率に優れ、比較的容易に非晶質Fe基合金を得ることができる点で、ディスクアトマイズ法、高速回転水流アトマイズ法、又は高速燃焼炎アトマイズ法が好ましい。

また、水アトマイズ法又はガスアトマイズ法を適用する場合には、50MPaを超える高圧水を用いることが好ましい。

[0064] 本工程で得られる非晶質Fe基合金粒子（即ち、非晶質Fe基合金粉末）は、非晶質相以外に、結晶相を含有していてもよい。

結晶質Fe基合金粉末を得る工程（即ち、分級及び熱処理）において、より優れた磁気特性を有する結晶質Fe基合金粉末を得る観点から、非晶質Fe基合金粒子における結晶相の含有率は、好ましくは2体積%以下であり、より好ましくは1体積%以下であり、特に好ましくは、実質的に0体積%である。

非晶質Fe基合金粒子における結晶相の含有率の測定方法は、前述した、結晶質Fe基合金粒子の組織内における結晶相の含有率の測定方法と同様である。

[0065] 非晶質Fe基合金粒子を構成する非晶質Fe基合金の組成の好ましい態様、及び、原料溶湯の組成の好ましい態様は、それぞれ、前述した結晶質Fe基合金粒子を構成するFe基合金の組成の好ましい態様と同様である。

なお、製法Aにおける各工程の操作は、Fe基合金の組成にほとんど影響を及ぼさない。

従って、製法Aによって得られる結晶質Fe基合金粒子（即ち、結晶質Fe基合金粉末）を構成するFe基合金の組成は、原料溶湯の組成、及び、非晶質Fe基合金の組成と実質的に同一であるとみなすことができる。

[0066] <結晶質Fe基合金粉末を得る工程>

製法Aは、非晶質Fe基合金粉末に対し、分級及び熱処理をこの順に施すか、又は、熱処理及び分級をこの順に施すことにより、結晶質Fe基合金粉末を得る工程を含む。

本工程では、熱処理により、非晶質Fe基合金粉末を構成する非晶質Fe基合金粒子の組織内に、前述した平均粒径30nm以下のナノ結晶粒を形成させ、結晶質Fe基合金粉末を得る。

更に、本工程では、分級により、前述した範囲のd50及び前述した範囲の粒子径2μm以下のFe基合金粒子の割合を有する結晶質Fe基合金粉末を得る。

[0067] 本工程において、分級は、熱処理の前に行っても熱処理の後に行っても構わない。分級を熱処理の前に行う場合、熱処理の後にも分級を行っても構わない（即ち、分級、熱処理、及び分級をこの順に行っても構わない）。

前述した範囲のd50及び前述した範囲の粒子径2μm以下のFe基合金粒子の割合を有する結晶質Fe基合金粉末をより効率よく得る観点から、分級は、熱処理の前に行うことが好ましい。即ち、本工程の好ましい態様は、非晶質Fe基合金粉末に対し、分級及び熱処理をこの順に施す態様である。

なお、熱処理は、d50、及び、粒子径2μm以下のFe基合金粒子の割合には、ほとんど影響を及ぼさない。

従って、非晶質Fe基合金粉末に対し、分級及び熱処理をこの順に施す態様において、熱処理後の粉末である結晶質Fe基合金粉末における、d50、及び、粒子径2μm以下のFe基合金粒子の割合は、それぞれ、分級後であって熱処理前の粉末（非晶質Fe基合金粉末）における、d50、及び、粒子径2μm以下のFe基合金粒子の割合と同一であるとみなすことができる。粒子径5μm以下のFe基合金粒子の割合についても同様である。

[0068] (分級)

分級の条件は、分級後の粒子において、 d_{50} 、及び、粒子径 $2 \mu\text{m}$ 以下の粒子の割合が、それぞれ前述した範囲となる条件に適宜調整される。

ここで、分級後の粒子とは、分級及び熱処理をこの順に行う場合には、非晶質 Fe 基合金を意味し、熱処理及び分級をこの順に行う場合には、結晶質 Fe 基合金を意味する（以下、同様とする）。

分級の方法としては、篩を用いて行う方法、分級装置を用いて行う方法、これらを組み合わせた方法、等が挙げられる。

分級装置としては、例えば、遠心力型気流式分級機、電磁式のふるい振とう器、等の公知の分級装置が挙げられる。

遠心力型の気流式分級機では、例えば、分級ローターの回転数及び風量の調整により、 d_{50} 、粒子径 $2 \mu\text{m}$ 以下の粒子の割合、等を調整する。

電磁式のふるい振とう器では、例えば、ふるいのメッシュを適宜選択することにより、 d_{50} 、粒子径 $2 \mu\text{m}$ 以下の粒子の割合、等を調整する。

[0069] 遠心力型気流式分級機を用いた粉末の分級では、分級の対象である粉末が、高速回転する分級ローターにより形成される渦流による遠心力と、外部のブロアーから供給される気流の抗力と、を受ける。これにより、上記粉末が、遠心力が大きく作用する大粒子の群と、抗力が大きく作用する小粒子の群と、に分けられる。

遠心力は、分級ローターの回転数を変えることによって調整でき、抗力は、ブロアーからの風量を変えることによって容易に調整することができる。遠心力と抗力とのバランスを調整することにより、上記粉末を、所定の粒度に分級することができる。

上記小粒子の群を回収した場合には、上記粉末から大粒子の群が除かれる。以下、この態様の分級を、「オーバーカット」ともいう。

上記大粒子の群を回収した場合には、上記粉末から小粒子の群が除かれる。以下、この態様の分級を「アンダーカット」ともいう。

[0070] 分級は、篩を用いて第1分級と、第1分級後に遠心力型気流式分級機を用

いて行う第2分級と、を含むことが好ましい。

この態様における第2分級は、オーバーカットを含むことが好ましく、オーバーカット及びアンダーカットを両方含むことがより好ましく、オーバーカット及びアンダーカットをこの順に行う操作を含むことが更に好ましい。

[0071] 第1分級における篩の目開きは適宜選択できる。

目開きは、第1分級の要する時間をより低減する観点から、例えば $90\ \mu\text{m}$ 以上、好ましくは $150\ \mu\text{m}$ 以上、更に好ましくは $212\ \mu\text{m}$ 以上である。

目開きの上限は、第2分級に用いる装置にかかる負荷をより低減する観点から、例えば $300\ \mu\text{m}$ 、好ましくは $250\ \mu\text{m}$ である。

本明細書にいう目開きは、JIS Z8801-1で規定される公称目開きを意味する。

第2分級において、遠心力型気流式分級機の分級ローターの回転数としては、例えば $500\ \text{rpm}$ (revolution per minute) 以上、好ましくは $1000\ \text{rpm}$ 以上である。分級ローターの回転数の上限は遠心力型気流式分級機の性能にもよるが、回転数が大きいほど粉末中に小径の粒子が多くなるため、例えば $5000\ \text{rpm}$ 、好ましくは $4000\ \text{rpm}$ 、更に好ましくは $3000\ \text{rpm}$ である。

第2分級において、遠心力型気流式分級機に供給する粉末の供給速度は、例えば $0.5\ \text{kg/h}$ 以上であり、好ましくは $1\ \text{kg/h}$ 以上であり、更に好ましくは $2\ \text{kg/h}$ 以上である。粉末の供給速度の上限は遠心力型気流式分級機の分級処理能力による。

第2分級において、遠心力型気流式分級機中の気流の風量は、例えば $0.5\ \text{m}^3/\text{s}$ 以上であり、好ましくは $1.0\ \text{m}^3/\text{s}$ 以上であり、更に好ましくは $2.0\ \text{m}^3/\text{s}$ 以上である。気流の風量の上限は遠心力型気流式分級機のブロー能力による。

[0072] (熱処理)

熱処理の条件は、熱処理によって得られた結晶質Fe基合金粒子において

、ナノ結晶粒の平均粒径が30nm以下となる条件に適宜調整される。

熱処理は、例えば、バッチ式の電気炉、メッシュベルト式の連続電気炉、等の公知の加熱炉を用いて実施することができる。

[0073] 熱処理の条件の調整は、例えば、昇温速度、最高到達温度（保持温度）、最高到達温度での保持時間、等を調整することにより行う。

昇温速度は、例えば1℃/h～200℃/hであり、好ましくは3℃/h～100℃/hである。

最高到達温度（保持温度）は、非晶質Fe基合金の結晶化温度にもよるが、例えば450℃～560℃であり、好ましくは470℃～520℃である。

最高到達温度での保持時間は、例えば1分～3時間であり、好ましくは30分～2時間である。

[0074] 非晶質Fe基合金の結晶化温度は、示差走査熱量分析装置（DSC：Differential Scanning Calorimeter）を用い、室温（RT）から600℃の温度範囲にて、600℃/hの昇温速度で熱分析を行うことによって求めることができる。

[0075] 熱処理を行う雰囲気については特に制限はない。

熱処理を行う雰囲気としては、大気雰囲気、不活性ガス（窒素、アルゴン等）雰囲気、真空雰囲気、等が挙げられる。

[0076] 熱処理によって得られた結晶質Fe基合金粉末を冷却する方法については特に制限はない。

冷却する方法としては、炉冷、空冷、等が挙げられる。

また、熱処理によって得られた結晶質Fe基合金粉末に対し、不活性ガスを吹きつけて強制的に冷却してもよい。

実施例

[0077] 以下、本開示の実施例を示すが、本開示は以下の実施例には限定されない。

[0078] [試料No. 1～20]

<インゴットの作製>

Fe、Cu、Si、B、Nb、Mo、及びCrを秤量し、アルミナの坩堝の中に入れて高周波誘導加熱装置の真空チャンバー内に配置し、真空チャンバー内を真空引きした。次いで減圧状態で、不活性雰囲気（Ar）中にて、高周波誘導加熱により各原料を溶解させ、次いで冷却することにより、以下の合金組成A～Eを有するインゴットを得た。

各インゴットの組成は、ICP発光分析法によって分析した。

(合金組成)

A : Fe_{70.5}Cu_{1.0}Si_{13.5}B_{11.0}Nb_{3.0}Cr_{1.0}

B : Fe_{74.4}Cu_{1.0}Si_{13.5}B_{7.6}Nb_{2.5}Cr_{1.0}

C : Fe_{72.5}Cu_{1.0}Si_{13.5}B_{9.0}Mo_{3.0}Cr_{1.0}

D : Fe_{72.5}Cu_{1.0}Si_{13.5}B_{11.0}Mo_{1.0}Cr_{1.0}

E : Fe_{72.5}Cu_{1.0}Si_{13.5}B_{9.0}Nb_{3.0}Cr_{1.0}

[0079] なお、これより後の工程の操作は、Fe基合金の組成にほとんど影響を及ぼさない。

従って、インゴットの組成は、最終的に得られる結晶質Fe基合金粉末においてもそのまま維持されているとみなすことができる。

[0080] <非晶質Fe基合金粉末の製造>

インゴットを1300～1700℃で再溶解し、得られた合金溶湯を、水アトマイズ法によって粉末化することにより、非晶質Fe基合金粒子からなる非晶質Fe基合金粉末を得た。

水アトマイズ法において、噴霧媒体である水の温度は20℃とし、上記水の噴射圧は100MPaとした。

[0081] <分級>

上記で得られた非晶質Fe基合金粉末（分級前の非晶質Fe基合金粉末）を、以下のようにして分級し、表1中の各試料を得た。

表1において、「*」付きの試料番号（No.）の試料は、比較例であり、「*」が無い試料番号（No.）の試料は、実施例である。

試料No. 1、*4、及び9は、下記第1分級のみを施した試料である。

試料No. *2、*3、5~*8、及び10~*20は、下記第1分級及び下記第2分級をこの順に施した試料である。

なお、試料No. 10及びNo. 14~17は、同じ非晶質Fe基合金粉末である。

[0082] (篩を用いた分級(第1分級))

まず、全試料に共通する第1分級として、上記で得られた分級前の非晶質Fe基合金粉末を、目開き250 μ mの篩に通すことにより、非晶質Fe基合金粉末から粗大な粒子群を除去した。

[0083] 第1分級後の非晶質Fe基合金粉末と樹脂とを混合し、得られた混合物を硬化させた。得られた硬化物に対し、研磨及びイオンミリングを施すことにより、平滑面を形成した。得られた平滑面における非晶質Fe基合金粒子が存在する箇所を、透過型電子顕微鏡(TEM: Transmission Electron Microscope)によって50万倍で観察し、かつ、組成マッピングを行った。

その結果、いずれの試料における非晶質Fe基合金粒子においても、粒子の表層部に厚さ2nm以上30nm以下の酸化被膜が存在することが確認された。

また、オージェ電子分光法(日本電子製JAMP-7830F)により、酸化被膜の同定を行ったところ、いずれの試料における酸化被膜も、Fe、Si、Cu、及びBを含んでいた。

[0084] (遠心力型気流式分級機による分級(第2分級))

試料No. *2、*3、5~*8、及び10~*20では、第1分級後の非晶質Fe基合金粉末に対し、遠心力型気流式分級機(日清エンジニアリング製TC-15)を用い、第2分級を施した。

詳細には、ブローアの風量、分級ローターの回転数、及び粉末供給速度を、表1に示すように調整し、オーバーカットの態様の第2分級により、第1分級後の非晶質Fe基合金粉末から大粒子の群を除去した。

[0085] <各種測定>

各試料について、前述した方法により、 d_{10} 、 d_{50} 、 d_{90} 、 $(d_{90} - d_{10}) / d_{50}$ 、粒子径 $2 \mu\text{m}$ 以下の粒子の割合（体積%）、及び粒子径 $5 \mu\text{m}$ 以下の粒子の割合（体積%）を求めた。

また、各試料について、前述の「粒子の組織内における結晶相の含有率」の測定方法において示した条件で、粉末X線回折によるX線回折スペクトルを測定した。X線回折スペクトルにおいて、結晶相に由来する回折ピークが存在する場合には、結晶相「有」と判断し、結晶相に由来する回折ピークが存在しない場合には、結晶相「無」と判断した。

以上の結果を表1に示す。

[0086]

[表1]

No.	組成 (原子%)							Fe基合金中の結晶相の有無	分級 (オーバーカット)			2μm以下の粒子の割合 (体積%)	5μm以下の粒子の割合 (体積%)	粒度 (μm)			(d90-d10)/d50
	Fe	Cu	Si	B	Nb	Mo	Cr		重量 (m ³ /s)	ローター回転数 (rpm)	粉末供給速度 (kg/h)			d10	d50	d90	
1	70.5	1.0	13.5	11.0	3.0	0.0	1.0	無	目開き250μm篩返し	0.97	7.55	5.7	17.7	42.5	2.07		
*2								無	2.5 4000 3	13.53	84.83	1.8	3.3	5.6	1.15		
*3	74.4	1.0	13.5	7.6	2.5	0.0	1.0	無	2.5 5000 3	21.51	86.86	1.5	2.9	5.5	1.37		
*4								無	目開き250μm篩返し	0.65	10.33	4.9	13.3	35.6	2.31		
5								無	2.5 2000 3	2.28	19.96	3.6	9.1	23.9	2.22		
6	72.5	1.0	13.5	9.0	0.0	3.0	1.0	無	2.5 3000 3	7.22	55.66	2.3	4.7	8.6	1.35		
*7								無	2.5 4000 3	14.41	78.94	1.8	3.4	6.3	1.32		
*8								無	2.5 1000 3	1.41	11.29	4.7	16.6	60.7	3.37		
9								無	目開き250μm篩返し	2.01	12.14	4.5	16.9	65.4	3.61		
10								無	2.5 1000 3	1.41	11.29	4.7	16.6	60.7	3.37		
11								無	2.5 2000 3	3.01	21.67	3.4	8.9	21.0	1.99		
12	72.5	1.0	13.5	11.0	0.0	1.0	1.0	無	2.5 3000 3	7.35	52.91	2.3	4.8	10.6	1.75		
*13								無	2.5 4000 3	18.85	81.78	1.6	3.2	6.1	1.44		
14								無	2.5 1000 3	1.41	11.29	4.7	16.6	60.7	3.37		
15								無	2.5 1000 3	1.41	11.29	4.7	16.6	60.7	3.37		
16								無	2.5 1000 3	1.41	11.29	4.7	16.6	60.7	3.37		
17								無	2.5 1000 3	1.41	11.29	4.7	16.6	60.7	3.37		
18								無	2.5 2000 3	1.44	18.00	3.9	9.3	21.9	1.94		
19	72.5	1.0	13.5	9.0	3.0	0.0	1.0	無	2.5 3000 3	4.92	45.58	2.6	5.3	12.7	1.91		
*20								無	2.5 4000 3	12.81	82.68	1.8	3.4	5.8	1.16		

[0087] また、走査型顕微鏡（SEM：Scanning Electron Microscope、日立製作所製S-4700）を用い、分級後の各試料（即ち、分級された非晶質Fe基合金粒子）を、100～5000倍で観察した。

その結果、各試料における各粒子の形状は、曲面によって囲まれた形状であった。詳細には、いずれの試料も、球形状の粒子、球形状に近似した形状の粒子、ティアドロップ型形状の粒子、及びひょうたん型形状の粒子を含んでいた。

[0088] 示差走査熱量分析装置（リガク製DSC8270）を用い、分級後の各試料（即ち、分級された非晶質Fe基合金粒子）を10℃/分の速度で昇温し、DSC曲線を得た。

得られたDSC曲線から、各試料の結晶化温度を求めた。

結果を表2に示す。

[0089] なお、以下の熱処理は、粒子の粒度分布にほとんど影響を及ぼさない。

従って、分級後の各試料の粒度分布（詳細には、d10、d50、d90、粒子径2μm以下の粒子の割合、及び、粒子径5μm以下の粒子の割合）は、熱処理後の各試料においても、そのまま維持されているとみなすことができる。

[0090] <熱処理>

分級後の各試料（但し、試料No. *8を除く）に対し、電気熱処理炉を用い、表2に示す条件（昇温速度、保持温度KT、保持時間、雰囲気、及び酸素濃度）の熱処理を施した。この熱処理は、10gの各試料（但し、試料No. *8を除く）をアルミナ製のるつぼに入れ、このるつぼを電気熱処理炉に入れた状態で行った。

ここで、保持温度KTとは、熱処理における最高到達温度を意味し、保持時間とは、最高到達温度（即ち、保持温度KT）で保持する時間を意味する。

。

N₂雰囲気での熱処理は、電気熱処理炉内にN₂ガスを導入しながら行った。

。

酸素濃度は、熱処理の雰囲気中の酸素濃度（体積％）を意味する。酸素濃度は、電気熱処理炉内に配置された酸素濃度計によって測定した。

N₂雰囲気中の酸素濃度は、電気熱処理炉内に導入するN₂ガス流量を調整することによって調整した。

熱処理後（詳細には、保持時間後）、電気熱処理炉での加熱を停止し、各試料（但し、試料No. * 8を除く）を炉冷した。

[0091] 以上により、熱処理後の試料として、結晶質Fe基合金粉末を得た。

分級後の試料No. * 8（即ち、非晶質Fe基合金粉末）に対しては、上記熱処理を行わなかった。

[0092] <ナノ結晶粒の平均粒径の測定>

熱処理後の試料（但し、試料No. * 8を除く）の各々について、前述した方法により、粒子の組織内に含まれるナノ結晶粒の平均粒径（nm）を測定した。

結果を表2に示す。

[0093] また、熱処理後の試料の各々について、前述した方法により、Fe基合金粒子の組織内における結晶相の含有率を測定した。

その結果、いずれの試料においても、Fe基合金粒子の組織内における結晶相の含有率は、50～80体積％の範囲であった。

[0094] <飽和磁化及び保磁力の測定>

熱処理後の各試料の各々について、磁化測定を行ってヒステリシスループを得、得られたヒステリシスループから、印加磁界800kA/mにおける飽和磁化（emu/g）、及び、印加磁界40kA/mにおける保磁力（A/m）をそれぞれ求めた。

磁化測定は、VSM（Vibrating Sample Magnetometer（振動試料型磁力計））、東英工業製VSM-5）を用いて行った。

結果を表2に示す。

[0095]

[表2]

No.	組成	熱処理			結晶化温度 (°C)	雰囲気	酸素濃度 (体積%)	保磁力 (A/m)	飽和磁化 (emu/g)	ナノ結晶粒の平均粒径 (nm)
		昇温速度 (°C/hr)	保持温度 KT(°C)	保持時間 (hr)						
1	A	100 (RT~KT)	550	1	540	N ₂	0.005	55	116	12
*2	B	100 (RT~KT)	500	1	500	N ₂	0.005	331	130	22
*3								457	129	23
*4								1274	128	42
5	C	100 (RT~KT)	500	1	500	N ₂	0.005	89	125	15
6								158	124	14
*7								262	124	15
*8	D	なし	なし	なし	500	なし	なし	318	137	非晶質
9		100 (RT~KT)	490	1	500	N ₂	0.005	116	135	22
10								81	135	23
11								95	135	21
12								185	134	21
*13		278	133	21						
14		100 (RT~KT)	490	1	500	N ₂	0.3	86	135	23
15		100 (RT~KT)	490	1	500	大気	20.4	86	135	23
16	510		1	500	大気	20.4	71	133	25	
17	100(RT~390°C) 20(390°C~KT)	490	1	500	N ₂	0.005	82	135	25	
18	E	100 (RT~KT)	520	1	520	N ₂	0.005	106	124	11
19								129	125	10
*20								248	125	11

[0096] [試料No. 21~25]

水アトマイズ法による合金溶湯の粉末化を、高速燃焼炎アトマイズ法による合金溶湯の粉末化に変更し、かつ、分級の条件を調整したこと以外は、分級後であって熱処理前の試料No. 1と同様の方法により、分級後であって熱処理前の試料No. 21~25を得た。

高速燃焼炎アトマイズ法において、噴射手段から噴射するフレームジェットの温度を1300°Cとし、原料である合金溶湯の垂下速度を5kg/minとした。冷却媒体として水を使用し、この冷却媒体（水）を、冷却手段により液体ミストにして噴射した。合金溶湯の冷却速度は、水の噴射量を4.5リットル/min~7.5リットル/minとすることにより調整した。

[0097] <分級>

試料No. 21~25における分級の条件は以下のとおりである。

[0098] (篩を用いた分級 (第1分級))

試料No. 1と同様に、分級前の非晶質Fe基合金粉末を、目開き250

μm の篩に通すことにより、非晶質Fe基合金粉末から粗大な粒子群を除去した。

[0099] (遠心力型気流式分級機による分級(第2分級))

試料No. 21、22、24、及び25では、第1分級後の非晶質Fe基合金粉末に対し、遠心力型気流式分級機(日清エンジニアリング製TC-15)を用い、表3に示す条件の第2分級(オーバーカット)及び表3に示す条件の第2分級(アンダーカット)をこの順に施した。即ち、第1分級後の非晶質Fe基合金粉末に対し、まず、第2分級(オーバーカット)を施すことにより大粒子の群を除去し、次に、第2分級(オーバーカット)が施された非晶質Fe基合金粉末に対し第2分級(アンダーカット)を施すことにより、小粒子の群を除去した。

試料No. 23では、第1分級後の非晶質Fe基合金粉末に対し、遠心力型気流式分級機(日清エンジニアリング製TC-15)を用い、表3に示す条件の第2分級(オーバーカット)のみを施した(即ち、第2分級(アンダーカット)は施さなかった)。

[0100] <各種測定>

分級後であって熱処理前の試料No. 21~25における、 d_{10} 、 d_{50} 、 d_{90} 、 $(d_{90} - d_{10}) / d_{50}$ 、粒子径 $2\mu\text{m}$ 以下の粒子の割合(体積%)、及び粒子径 $5\mu\text{m}$ 以下の粒子の割合(体積%)の各々を、前述した方法によって測定した。

結果を表3に示す。

[0101] <熱処理>

分級後であって熱処理前の試料No. 21に対し、試料No. 1に対する熱処理と同様の条件の熱処理を施すことにより、熱処理後の試料No. 21を得た。

熱処理後の試料No. 21について、熱処理後の試料No. 1に対する測定方法と同様の測定方法により、ナノ結晶粒の平均粒径の測定、並びに、飽和磁化及び保磁力の測定をそれぞれ行った。

結果を表4に示す。

[0102] また、分級後であって熱処理前の試料No. 22～25に対し、保持温度を表4に示すように変更したこと以外は、分級後であって熱処理前の試料No. 21に対する操作（熱処理及び各測定）と同様の操作を行った。

結果を表4に示す。

[0103]

[表3]

No.	組成	Fe基合金中の 結晶相の 有無	第2分級 (オーバーカト)			第2分級 (アンダーカト)			粒子径 5μm以下の 粒子の割合 (体積%)	粒子径 2μm以下の 粒子の割合 (体積%)	粒度 (μm)			(d90-d10) /d50
			風量 (m ³ / s)	ローター 回転数 (rpm)	粉末 供給速度 (kg/h)	風量 (m ³ / s)	ローター 回転数 (rpm)	粉末 供給速度 (kg/h)			d10	d50	d90	
21		無	2.5	1000	3	2.5	2800	3	0.00	0.85	8.7	19.6	38.2	1.50
22		無	2.8	1000	3	2.8	2000	3	0.00	0.00	16.4	26.1	44.0	1.06
23	A	無	2.5	3000	3	-	-	-	6.84	72.05	2.2	4.0	6.5	1.08
24		無	2.8	2000	3	2.5	3000	3	0.00	2.44	6.4	10.1	17.8	1.12
25		無	2.8	1000	3	2.5	2000	3	0.00	0.00	15.8	26.0	44.6	1.11

[0104] [表4]

No.	組成	熱処理			結晶化温度 (°C)	雰囲気	酸素濃度 (体積%)	保磁力 (A/m)	飽和磁化 (emu/g)	ナノ結晶粒の平均粒径 (nm)
		昇温速度 (°C/hr)	保持温度 KT(°C)	保持時間 (hr)						
21	A	100 (RT~KT)	550	1	540	N ₂	0.005	35	120	12
22								10	117	13
23			530					105	117	14
24								18	117	13
25								14	117	14

[0105] 表1~4に示すように、組織内に平均粒径30nm以下のナノ結晶粒を含有するFe基合金粒子からなり、d50が3.5μm以上35.0μm以下であり、粒子径2μm以下の粒子の割合が0体積%以上8体積%以下である結晶質Fe基合金粉末である、実施例の熱処理後の各試料（詳細には、試料No. 1、5、6、9~12、14~19、及び21~25）では、保磁力が低減されていた。より詳細には、実施例の熱処理後の各試料では、印加磁界40kA/mにおける保磁力が190A/m以下であった。

これに対し、ナノ結晶粒の平均粒径が30nmを超える試料No. *4では、保磁力が増大した（表2参照）。

また、粒子径2μm以下の粒子の割合が8体積%超である、試料No. *2、*3、*7、*13、及び*20においても、保磁力が増大した（表2参照）。

また、非晶質Fe基合金粉末である試料No. *8においても、保磁力が増大した（表2参照）。

[0106] 粒子径2μm以下の粒子の割合が0体積%以上7体積%以下である、試料No. 1、5、9~11、14~19、及び21~25では、保磁力が更に低減されていた。具体的には、これらの試料では、保磁力が130A/m以下であった。

[0107] d50が5.0μm超35.0μm以下であり、かつ、粒子径5μm以下の粒子の割合が0体積%以上8体積%以下である、試料No. 1、21、22、24、及び25では、保磁力が更に低減されていた。具体的には、これらの試料では、保磁力が60A/m以下であった。

これらの試料のうち、粒子径5μm以下の粒子の割合が0体積%以上5体

積%以下である、試料No. 21、22、24、及び25では、保磁力が更に低減されていた。具体的には、これらの試料では、保磁力が40 A/m以下であった。

[0108] また、合金組成及び粒子径が同等であり、かつ、熱処理の条件（温度条件、雰囲気）が異なる試料No. 10及び14～17では、飽和磁化に実質的に差異は見られなかった。試料No. 10及び14～17のうち、保持温度が高いNo. 16では、保磁力が顕著に低減された。

より詳細には、試料No. 10及び14～17のうち、酸素を含む大気雰囲気で熱処理を行った試料No. 15及び16における飽和磁化は、酸素をほとんど含まないN₂雰囲気で熱処理を行った試料No. 10、14、及び17における飽和磁化と実質的に同等であった。この理由は、非晶質Fe基合金粉末を構成する非晶質Fe基合金粒子の表層部に存在する酸化被膜が、熱処理に対する保護膜として機能し、これにより、熱処理時の酸化の進行が抑制されたためと考えられる。

酸素を含む大気雰囲気で熱処理が可能であることは、熱処理における雰囲気を制御する必要がないことを意味する。従って、酸素を含む大気雰囲気で熱処理が可能であることは、結晶質Fe基合金粉末の生産性向上及び製造コスト低減に寄与する。

[0109] また、走査型顕微鏡（SEM、日立製作所製S-4700）を用い、熱処理後の各試料（即ち、結晶質Fe基合金粉末）を、100～5000倍で観察した。

その結果、各試料における各粒子の形状は、曲面によって囲まれた形状であった。詳細には、いずれの試料も、球形状の粒子、球形状に近似した形状の粒子、ティアドロップ型形状の粒子、及びひょうたん型形状の粒子を含んでいた。

[0110] 図1は、熱処理後の試料No. 25（結晶質Fe基合金粉末）を、5000倍の倍率で撮影したSEM写真である。

図1に示すように、試料No. 25は、球形状の粒子及び球形状に近似し

た形状の粒子を主体として構成されており、かつ、ティアドロップ型形状の粒子及びひょうたん型形状の粒子を含んでいた。

[0111] 図2は、試料No. 1～No. 25（ただし、試料No. *4及び試料No. *8を除く）における、粒子径2 μ m以下の粒子の割合と、保磁力との関係を示すグラフである。図2では、Fe基合金の組成ごとにプロットの種類を変えている。

図2から、いずれの組成においても、粒子径2 μ m以下の粒子の割合が小さくなると（具体的には、0体積%以上8体積%以下であると）、保磁力が低下する傾向があることがわかる。

[0112] 図3は、試料No. 1～No. 25（ただし、試料No. *4及び試料No. *8を除く）における、粒子径5 μ m以下の粒子の割合と、保磁力との関係を示すグラフである。図3でも、Fe基合金の組成ごとにプロットの種類を変えている。

図3から、いずれの組成においても、粒子径5 μ m以下の粒子の割合が小さくなると（具体的には、0体積%以上8体積%以下であると）、保磁力が低下する傾向があることがわかる。

[0113] 図4は、同一の合金組成を有する、試料No. 9、10、11、12、及びNo. *13の粒度分布図である。

粒度分布が似ている試料No. 9及び10に注目し、表2において、これらの試料の保磁力を比較すると、2 μ m以下の粒子径の割合が小さい試料No. 10の保磁力は、2 μ m以下の粒子径の割合が大きい試料No. 9の保磁力よりも小さいことがわかる。

また、粒度分布が大きく異なり、 $(d_{90}-d_{10})/d_{50}$ （表1参照）が大きく異なる試料No. 10～12に注目し、表2において、これらの試料の保磁力を比較すると、 $(d_{90}-d_{10})/d_{50}$ と保磁力との間には、明確な相関関係は見られない。試料No. 10～12においても、2 μ m以下の粒子径の割合が小さい試料No. 10及び11の保磁力が、2 μ m以下の粒子径の割合が大きい試料No. 12の保磁力よりも小さいことがわ

かる。

[0114] また、同じ組成の試料間では、熱処理条件が異なる場合でも、飽和磁化に実質的な差異は見られなかった。

[0115] <磁歪定数の評価>

粉末について、磁歪定数を直接的に測定することは困難である。

そこで、熱処理後の各試料（粉末）の磁歪定数を推測するための代用試験として、熱処理後の各試料の組織と同様の組織を有する薄帯について、磁歪定数を測定した。

詳細には、前述の各合金組成を有するインゴットを用い、単ロール法により、厚さ15 μm、幅5 mmの非晶質Fe基合金薄帯を作製した。単ロール法における急冷は、Arガス中で行った。得られた非晶質Fe基合金薄帯を、表5に示す条件にて熱処理することにより、結晶質Fe基合金薄帯を得た。

[0116] [表5]

組成	熱処理		
	昇温速度 (°C/hr)	保持温度 KT(°C)	保持時間 (hr)
A Fe _{70.5} Cu _{1.0} Si _{13.5} B _{11.0} Nb _{3.0} Cr _{1.0}	100 (RT~KT)	550	1
B Fe _{74.4} Cu _{1.0} Si _{13.5} B _{7.6} Nb _{2.5} Cr _{1.0}	100 (RT~KT)	500	1
C Fe _{72.5} Cu _{1.0} Si _{13.5} B _{9.9} Mo _{3.0} Cr _{1.0}	100 (RT~KT)	500	1
D Fe _{72.5} Cu _{1.0} Si _{13.5} B _{11.6} Mo _{1.0} Cr _{1.0}	100 (RT~KT)	490	1
E Fe _{72.5} Cu _{1.0} Si _{13.5} B _{9.6} Nb _{3.0} Cr _{1.0}	100 (RT~KT)	520	1

[0117] 得られた各結晶質Fe基合金薄帯は、いずれも、組織内に、平均粒径30 nm以下のナノ結晶粒を含んでいた。

各結晶質Fe基合金薄帯の磁歪定数を測定した結果、いずれの結晶質Fe基合金薄帯も、磁歪定数は、0~+2×10⁻⁶の範囲内であった。

従って、熱処理後の各試料（即ち、結晶質Fe基合金粉末）も、同様の磁歪定数を有すると推察される。

[0118] 上述のような磁気特性（磁歪定数）に優れる熱処理後の各試料（即ち、結晶質Fe基合金粉末）は、磁心（たとえば、圧粉磁心、メタルコンポジット

コア等) の材料として好適である。

即ち、熱処理後の各試料(即ち、結晶質 Fe 基合金粉末) は、上記の磁心を用いた、インダクタ、ノイズフィルタ、チョークコイル、トランス、又はリアクトルの特性向上に寄与することが期待される。

[0119] 2017年8月7日に出願された日本国特許出願2017-152561号の開示は、その全体が参照により本明細書に取り込まれる。

本明細書に記載された全ての文献、特許出願、及び技術規格は、個々の文献、特許出願、及び技術規格が参照により取り込まれることが具体的かつ個々に記された場合と同程度に、本明細書に参照により取り込まれる。

請求の範囲

- [請求項1] 組織内に平均粒径30nm以下のナノ結晶粒を含有するFe基合金粒子からなり、
- レーザー回折法によって求められる、粒子径と小粒子径側からの積算頻度との関係を示す積算分布曲線において、積算頻度50体積%に対応する粒子径である d_{50} が、 $3.5\mu\text{m}$ 以上 $35.0\mu\text{m}$ 以下であり、
- レーザー回折法によって求められる、前記Fe基合金粒子の全体に占める粒子径 $2\mu\text{m}$ 以下のFe基合金粒子の割合が、0体積%以上8体積%以下である結晶質Fe基合金粉末。
- [請求項2] 前記積算分布曲線において、積算頻度10体積%に対応する粒子径を d_{10} とし、積算頻度90体積%に対応する粒子径を d_{90} とした場合に、 $(d_{90} - d_{10}) / d_{50}$ が、1.00以上4.00以下である請求項1に記載の結晶質Fe基合金粉末。
- [請求項3] 印加磁界 40kA/m における保磁力が、 190A/m 以下である請求項1又は請求項2に記載の結晶質Fe基合金粉末。
- [請求項4] 前記粒子径 $2\mu\text{m}$ 以下のFe基合金粒子の割合が、0体積%以上7体積%以下である請求項1～請求項3のいずれか1項に記載の結晶質Fe基合金粉末。
- [請求項5] 前記 d_{50} が、 $5.0\mu\text{m}$ 超 $35.0\mu\text{m}$ 以下であり、
- レーザー回折法によって求められる、前記Fe基合金粒子の全体に占める粒子径 $5\mu\text{m}$ 以下のFe基合金粒子の割合が、0体積%以上8体積%以下である請求項1～請求項4のいずれか1項に記載の結晶質Fe基合金粉末。
- [請求項6] 前記Fe基合金粒子の全体に占める粒子径 $5\mu\text{m}$ 以下のFe基合金粒子の割合が、0体積%以上5体積%以下である請求項5に記載の結晶質Fe基合金粉末。
- [請求項7] 前記Fe基合金粒子の組成は、Cu、Si、及びB、並びに、Nb

及びMoの少なくとも一方を含有し、残部がFe及び不純物を含有する組成である請求項1～請求項6のいずれか1項に記載の結晶質Fe基合金粉末。

[請求項8] 前記Fe基合金粒子の組成は、Cu、Si、B、Nb、Mo、Cr、及びFeの総含有量を100原子%とした場合に、Cuの含有量が0.1原子%以上3.0原子%以下であり、Siの含有量が13.0原子%以上16.0原子%以下であり、Bの含有量が7.0原子%以上12.0原子%未満であり、Nb及びMoの合計含有量が0原子%超6.0原子%以下であり、Crの含有量が0原子%以上5.0原子%以下である請求項7に記載の結晶質Fe基合金粉末。

[請求項9] Moの含有量が、0原子%超4.0原子%未満である請求項8に記載の結晶質Fe基合金粉末。

[請求項10] 前記Fe基合金粒子の形状が、曲面によって囲まれた形状である請求項1～請求項9のいずれか1項に記載の結晶質Fe基合金粉末。

[請求項11] 前記Fe基合金粒子は、表層部に酸化被膜を含む請求項1～請求項10のいずれか1項に記載の結晶質Fe基合金粉末。

[請求項12] 請求項1～請求項11のいずれか1項に記載の結晶質Fe基合金粉末を製造する方法であって、

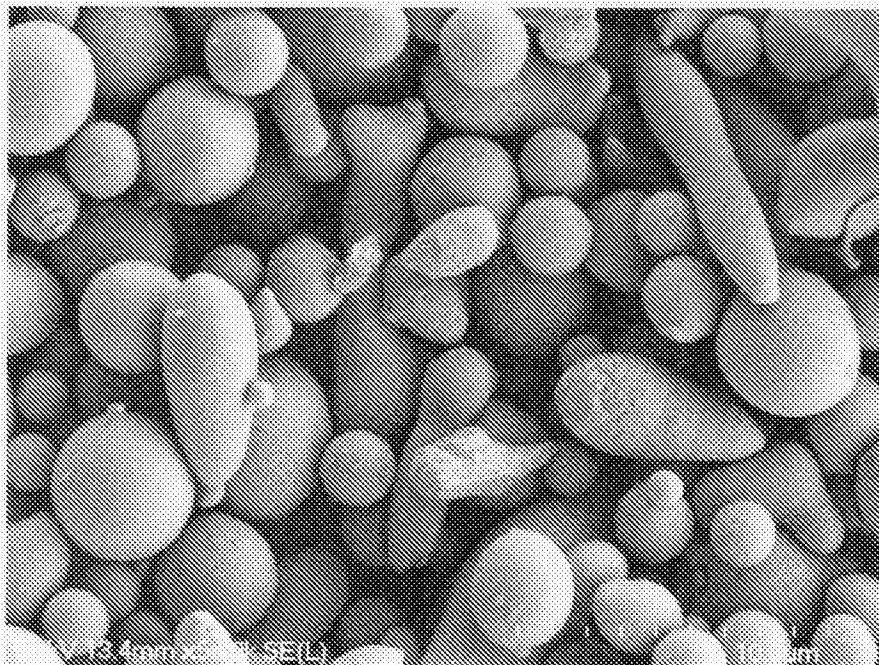
アトマイズ法により、非晶質Fe基合金粒子からなる非晶質Fe基合金粉末を得る工程と、

前記非晶質Fe基合金粉末に対し、分級及び熱処理をこの順に施すか、又は、熱処理及び分級をこの順に施すことにより、前記結晶質Fe基合金粉末を得る工程と、

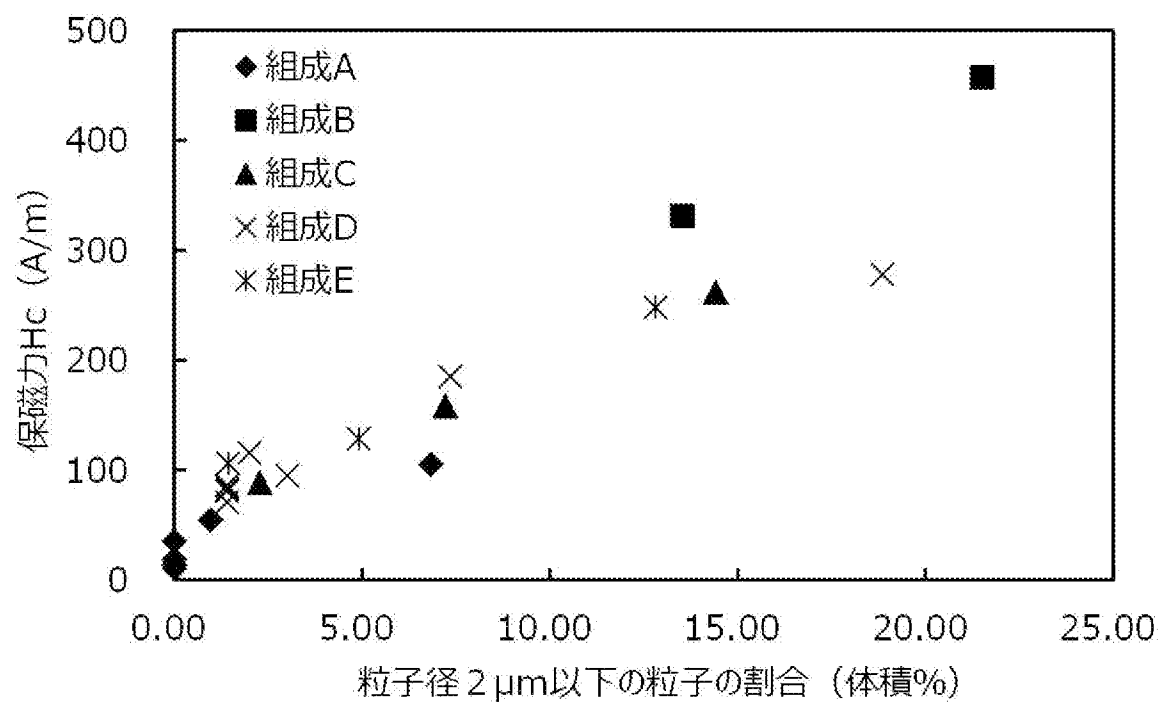
を含む結晶質Fe基合金粉末の製造方法。

[請求項13] 前記分級は、篩を用いて行う第1分級と、前記第1分級後に遠心力型気流式分級機を用いて行う第2分級と、を含む請求項12に記載の結晶質Fe基合金粉末の製造方法。

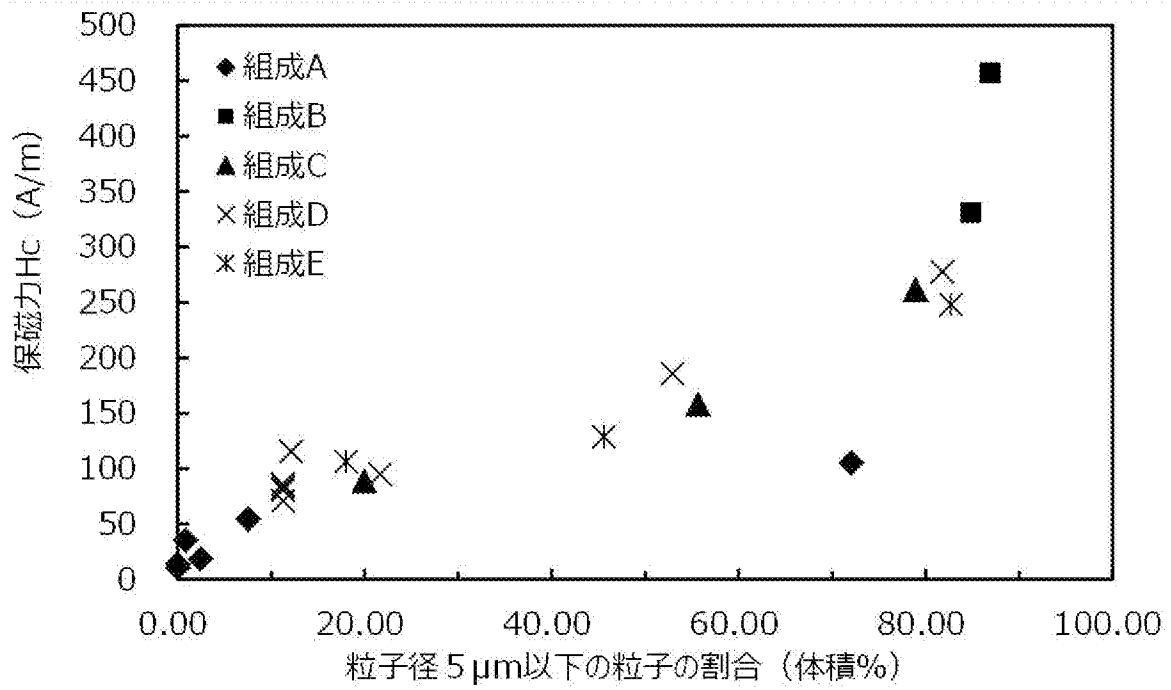
[図1]



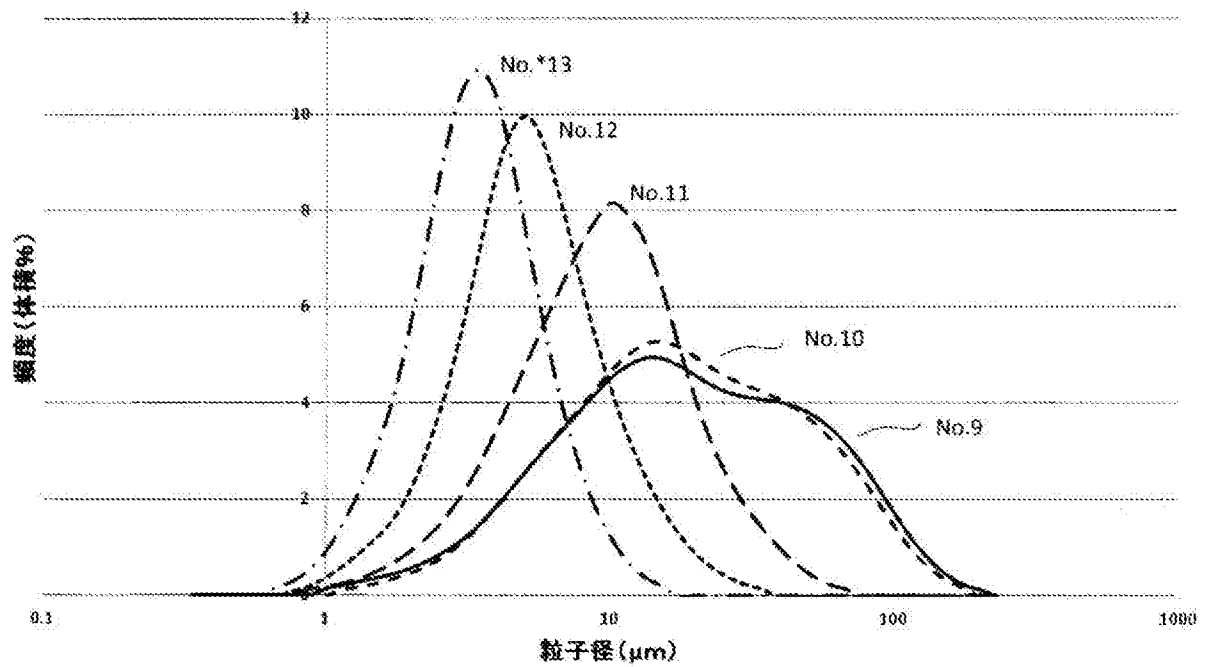
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/029476

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. B22F1/00 (2006.01) i, B22F9/08 (2006.01) i, H01F1/153 (2006.01) i,
C22C38/00 (2006.01) n

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl. B22F1/00, B22F9/08, H01F1/153, C22C38/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2018
Registered utility model specifications of Japan	1996-2018
Published registered utility model applications of Japan	1994-2018

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2001-196216 A (HUTACHI FERRITE ELECTRONICS, LTD.) 19 July 2001, claims, paragraph [0019], fig. 2 (Family: none)	1-4, 7-13 5-6

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
 “E” earlier application or patent but published on or after the international filing date
 “L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
 “O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
 “P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“I” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
 “X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
 “Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
 “&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
10 October 2018 (10.10.2018)

Date of mailing of the international search report
23 October 2018 (23.10.2018)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. B22F1/00(2006.01)i, B22F9/08(2006.01)i, H01F1/153(2006.01)i, C22C38/00(2006.01)n

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. B22F1/00, B22F9/08, H01F1/153, C22C38/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2018年
日本国実用新案登録公報	1996-2018年
日本国登録実用新案公報	1994-2018年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X A	JP 2001-196216 A (日立フェライト電子株式会社) 2001.07.19, 特許請求の範囲、第0019段落、図2 (ファミリーなし)	1-4, 7-13 5-6

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

10.10.2018

国際調査報告の発送日

23.10.2018

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

米田 健志

電話番号 03-3581-1101 内線 3425

4E

8924