

(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
2010年7月1日(01.07.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/073590 A1

(51) 国際特許分類:

B22F 3/00 (2006.01) C22C 38/00 (2006.01)
B22F 1/00 (2006.01) H01F 1/147 (2006.01)
B22F 1/02 (2006.01) H01F 1/22 (2006.01)
C22C 33/02 (2006.01) H01F 41/02 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2009/007070

(22) 国際出願日: 2009年12月21日(21.12.2009)

(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 2008-330597 2008年12月25日(25.12.2008) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三菱マテリアル株式会社(MITSUBISHI MATERIALS CORPORATION) [JP/JP]; 〒1008117 東京都千代田区大手町一丁目3番2号 Tokyo (JP). 株式会社ダイヤモンド(DIAMET CORPORATION) [JP/JP]; 〒9508640 新潟県新潟市東区小金町3-1-1 Niigata (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 渡辺宗明(WATANABE, Muneaki) [JP/JP]; 〒3110102 茨城県那珂市向山1002-14 三菱マテリアル株式会社 中央研究所内 Ibaraki (JP). 五十嵐和

則(IGARASHI, Kazunori) [JP/JP]; 〒3110102 茨城県那珂市向山1002-14 三菱マテリアル株式会社 中央研究所内 Ibaraki (JP).

(74) 代理人: 志賀正武, 外(SHIGA, Masatake et al.); 〒1006620 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

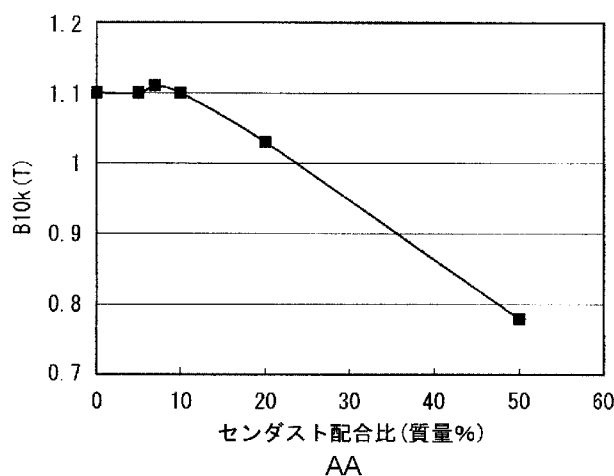
(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ,

[続葉有]

(54) Title: COMPOSITE SOFT MAGNETIC MATERIAL AND METHOD FOR PRODUCING SAME

(54) 発明の名称: 複合軟磁性材料とその製造方法

[図2]



AA SENDUST BLENDING RATIO (MASS%)

the composite soft magnetic material.

(57) 要約:

(57) Abstract: Disclosed is a composite soft magnetic material which is characterized by being obtained by mixing, compacting and firing an iron powder, which has been subjected to an insulating treatment, a Sendust alloy powder and a binder. The composite soft magnetic material is also characterized by comprising a main phase in which the iron powder and the Sendust alloy powder are compacted, and a grain boundary phase which is formed around the main phase and is mainly composed of the binder, and by having a ratio of the Sendust alloy in the main phase of 5% by mass or more, but less than 20% by mass, a saturation magnetic flux density at a magnetic field of 10 kA/m of 1 T or more, a coercivity of 260 A/m or less, and an iron loss (at 0.1 T, 10 kHz) of 20 W/kg or less. Consequently, the composite soft magnetic material has characteristics of the Sendust alloy, namely a high magnetic permeability, low coercivity and low iron loss, while maintaining a high saturation magnetic flux density which is intrinsic to an iron powder. Also disclosed is a method for producing

[続葉有]

WO 2010/073590 A1

CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, 添付公開書類:
TD, TG).

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

本発明は、絶縁処理された鉄粉末とセンダスト合金粉末とバインダーが混合圧密され、焼成されてなり、前記鉄粉末とセンダスト合金粉末が圧密された主相と、前記主相の周囲に形成されたバインダーを主体とする粒界相とが具備されてなり、前記主相に占めるセンダスト合金の割合が5質量%以上、20質量%未満であり、磁場10kA/m時の飽和磁束密度1T以上、保磁力260A/m以下、鉄損(0.1T、10kHz時)20W/kg以下であることを特徴とする複合軟磁性材料に関する。本発明によれば、鉄粉末が本来有する高い飽和磁束密度を維持しながら、センダスト合金が有する高透磁率、低保磁力、低鉄損失の特性を併せ持つ複合軟磁性材料およびその製造方法を提供することができる。

明 細 書

発明の名称： 複合軟磁性材料とその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、絶縁処理された鉄粉末とセンダスト合金粉末をバインダーとともに混合圧密し、焼成してなる複合軟磁性材料とその製造方法に関する。

本願は、２００８年１２月２５日に日本に出願された特願２００８－３３０５９７号に基づき優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] インバーターやトランスのコア、チョークコイルなどの電子機器用電磁気部品は、電子機器の小型化、高性能化に伴い、より厳しい材料特性が求められるようになってきている。このような部品に用いられる軟磁性材料として、従来、センダスト合金やケイ素鋼などの金属磁性材料、フェライトなどの酸化物磁性材料が使用されてきた。しかし、センダスト合金などの金属磁性材料は、粉末とした場合の硬度が高く、粉末成形により高密度化することが難しい問題がある。

例えば、粉末成形による高密度複合軟磁性材料の製造では、先ず、絶縁被膜を有する金属軟磁性粉末と、必要に応じて添加される潤滑剤粉末とバインダーからなる原料粉末を金型のキャビティに充填した後、加圧成形することによって目的の形状の圧粉体を作製し、その後、圧粉体を焼成することによって複合軟磁性材料が製造されている。

[0003] 従って、成形に用いる粉末自体の硬度が高い場合、圧粉体として高い圧密度を得ることが困難となり易い問題がある。例えば、センダスト合金は室温で加工する場合、塑性変形が極めて少なく、粉砕による微粉末化は可能であるが、板状には成形できないものである。従って、磁心などの磁気部品を製造するために、センダスト合金粉末を成形しても、ほとんど塑性変形しないから、センダスト合金粉末は添加した結合剤で単純に結びついている状態となっているのみであり、センダスト合金粉末自体の透磁率は高くとも、圧粉

磁心とした場合に高い透磁率を得ることができない問題がある。

[0004] そこで従来、酸化物磁性材料と金属磁性材料を混合し、複合化して、高性能化しようとする試みがなされている。

例えば、パーマロイなどの金属磁性粉末をフェライトなどの酸化物磁性材料で被覆し、その後に成形して熱処理する方法が知られている。（特許文献1 参照）

また、酸化被膜を有するセンダスト合金粉末と高圧縮性の軟磁性金属粉末とソフトフェライト粉末とバインダーを混合し、圧密後に焼成処理してなる複合磁性材料が知られている。（特許文献2 参照）

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開昭56－38402号公報

特許文献2：特開平6－236808号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 前記パーマロイなどの金属磁性粉末をフェライトなどの酸化物磁性材料で被覆して製造される軟磁性複合材料は、熱処理するとそれらの界面で金属とフェライトが反応し易いので、磁気特性が劣化するという問題を有していた。

また、センダスト合金粉末と他の軟磁性金属粉末を混合する方法にあっては、センダスト合金粉末が非常に硬いために、圧縮性の良好な軟磁性金属粉末を混合したとしても、20ton/cm²程度の高圧成形技術が必要となり、ダストコアなど、円筒形のような単純な形状の製品しか得られないという問題を有していた。

[0007] 本発明は、このような従来の事情に鑑みて提案されたものであり、その目的は、センダスト合金粉末に対して混合する鉄粉末の選定と、それらの添加量の範囲、それぞれの粒径範囲を好適に選択し、バインダーの条件等も加味

して最適な配合とすることにより、鉄粉末が本来有する高い飽和磁束密度を維持しながら、センダスト合金粉末が本来有する高透磁率、低保磁力、低鉄損失の特性を併せ持つことができるようにした複合軟磁性材料とその製造方法の提供を目的とする。

課題を解決するための手段

[0008] 上記目的を達成するために、本発明に係る複合軟磁性材料は、絶縁処理された鉄粉末とセンダスト合金粉末とバインダーが混合圧密され、焼成されてなり、前記鉄粉末とセンダスト合金粉末が圧密され焼成された主相と、前記主相の周囲に生成されたバインダーを主体とする粒界相とが具備されてなり、前記主相に占めるセンダスト合金の割合が5質量%以上、20質量%未満であり、磁場10kA/m時の飽和磁束密度1T以上、保磁力260A/m以下、鉄損（0.1T、10kHz時）20W/kg以下であることを特徴とする。

本発明に係る複合軟磁性材料において、前記鉄粉末を圧密し焼成してなる鉄主相の平均粒径を20～50 μ m、センダスト合金粉末を圧密し焼成してなる合金主相の平均粒径を50～120 μ mとすることができる。

本発明に係る複合軟磁性材料において、絶縁処理された鉄粉末として、Mg含有酸化物被膜を具備してなる純鉄粉末を用いることができる。

[0009] 本発明に係る複合軟磁性材料の製造方法は、絶縁処理された鉄粉末とセンダスト合金粉末とバインダーを少なくとも混合圧密し、焼成することにより、前記鉄粉末とセンダスト合金粉末を圧密してなる主相と、前記主相の周囲に形成されたバインダーを主体とする粒界相とを具備した複合軟磁性材料を製造するにあたり、絶縁処理された鉄粉末とセンダスト合金粉末の質量の総和に占めるセンダスト合金粉末の添加割合を5質量%以上、20質量%未満として、絶縁処理された鉄粉末およびセンダスト合金粉末を混合圧密し、焼成することにより、磁場10kA/m時の飽和磁束密度1T以上、保磁力260A/m以下、鉄損（0.1T、10kHz時）20W/kg以下の複合軟磁性材料を得ることを特徴とする。

本明細書において、特に断りのない限り、センダスト合金粉末の添加割合または配合比とは、Mg含有酸化物被膜等により絶縁処理された鉄粉末とセンダスト合金粉末の質量の総和に占めるセンダスト合金粉末の配合比（質量％）を意味する。

本発明に係る複合軟磁性材料の製造方法は、平均粒径 $20 \sim 50 \mu\text{m}$ の絶縁処理された鉄粉末を用い、平均粒径 $50 \sim 120 \mu\text{m}$ のセンダスト合金粉末を用いることを特徴とする。

本発明に係る複合軟磁性材料の製造方法は、絶縁処理された鉄粉末として、Mg含有酸化物被膜により絶縁処理された純鉄粉末を用いることを特徴とする。

発明の効果

[0010] 本発明によれば、絶縁処理した鉄粉末が有する高い飽和磁束密度を維持しながら、適量混合したセンダスト合金粉末が有する低鉄損と低い保磁力と少ない渦電流損失のような軟磁気特性を有効に得た複合軟磁性材料を提供することができる。さらに、本発明によれば、従来のセンダスト合金粉末の成形に必要としていた高い成形力を要することなく一般的な粉末成形に必要な程度の圧力で圧密成形が可能で上述の特性を発揮できる複合軟磁性材料を提供することができる。

また、本発明において、絶縁処理した鉄粉末として、Mg含有酸化物被膜により絶縁処理された純鉄粉末を用いることにより、高い飽和磁束密度と低鉄損と低い保磁力と少ない渦電流損失を確実に得ることが可能である。

図面の簡単な説明

[0011] [図1] 図1は、本発明に係る複合軟磁性材料の実施例において、センダスト合金粉末の配合比と比抵抗の関係を示す図である。

[図2] 図2は、本発明に係る複合軟磁性材料の実施例において、センダスト合金粉末の配合比と飽和磁束密度の関係を示す図である。

[図3] 図3は、本発明に係る複合軟磁性材料の実施例において、飽和磁束密度と損失の関係を示す図である。

[図4] 図4は、本発明に係る複合軟磁性材料の実施例において、センダスト合金粉末の配合比と損失との関係を示す図である。

[図5] 図5は、本発明に係る複合軟磁性材料の実施例において、センダスト合金粉末の配合比と機械強度との関係を示す図である。

発明を実施するための形態

[0012] 以下、本発明を適用した複合軟磁性材料とその製造方法について詳細に説明する。

本発明を用いて複合軟磁性材料を製造するには、例えばプレス成型機などの圧密装置を用い、複合軟磁性材料の原料粉末として例えばMg-O系絶縁被膜付き純鉄粉末と、センダスト合金粉末に、バインダーと必要に応じて潤滑剤を添加し混合した混合粉末を圧密装置の金型のキャビティに充填した後に、加圧成形することによって所定形状の圧粉体を得ることができる。その後、得られた圧粉体を所定の温度範囲で焼成することにより目的の形状の複合軟磁性材料を得ることができる。

[0013] 本発明において用いる絶縁処理済みの純鉄粉末とは、例えば、(Mg, Fe)-Oを含むMg-Fe-O三元系酸化物堆積膜が純鉄粒子の表面に被覆形成されたMg含有酸化物被覆純鉄粉末、もしくはリン酸塩被覆純鉄粉末、またはシリカのゾルゲル溶液（シリケート）もしくはアルミナのゾルゲル溶液などの湿式溶液を添加し混合して純鉄粉末表面に被覆したのち乾燥して焼成した酸化ケイ素もしくは酸化アルミニウム被覆純鉄粉末などを用いることができるが、これらに限られるものではなく、絶縁被覆層で純鉄粉末を被覆した構造の絶縁処理済み純鉄粉末を広く適用することができる。

[0014] 前記Mg-Fe-O三元系酸化物堆積膜を被覆したMg含有酸化物被覆純鉄粉末は、例えば以下の(A)、(B)、(C)または(D)の製造方法にて得ることができる。

(A) 純鉄粉末に酸化雰囲気中で室温～500℃に保持する酸化処理を施した後、この粉末にMg粉末を添加し混合して得られた混合粉末を温度：150～1100℃、圧力： 1×10^{-12} ～ 1×10^{-1} MPaの不活性ガス雰囲気

気または真空雰囲気中で加熱し、さらに必要に応じて酸化雰囲気中、温度： $50 \sim 400^{\circ}\text{C}$ で加熱すると、純鉄粉末表面にMgを含む酸化絶縁被膜を有するMg含有酸化物被覆純鉄粒子が得られる。

(B) 純鉄粉末に前述の酸化処理を施した後、一酸化ケイ素粉末を添加し混合した後、または混合しながら、真空雰囲気中、温度： $600 \sim 1200^{\circ}\text{C}$ 保持の条件で加熱し、さらにMg粉末を添加し混合した後または混合しながら真空雰囲気中、温度： $400 \sim 800^{\circ}\text{C}$ 保持の条件で加熱すると、純鉄粉末の表面にMg-Si含有酸化膜が形成されたMg-Si含有酸化物被膜純鉄粉末が得られる。

[0015] (C) 純鉄粉末に前述の酸化処理を施した後、一酸化ケイ素粉末およびMg粉末を同時に添加し混合した後、または混合しながら、真空雰囲気中、温度： $400 \sim 1200^{\circ}\text{C}$ 保持の条件で加熱すると、純鉄粉末の表面にMg-Si含有酸化物膜が形成されたMg-Si含有酸化物被膜軟磁性粉末が得られる。

(D) 純鉄粉末に前述の酸化処理を施した後、Mg粉末を添加し混合した後、または混合しながら、真空雰囲気中、温度： $400 \sim 800^{\circ}\text{C}$ 保持の条件で加熱すると純鉄粉末の表面にMg含有酸化膜が形成されたMg含有酸化物被覆純鉄粉末が得られる。

この粉末にさらに一酸化ケイ素粉末を添加し混合した後、または混合しながら、真空雰囲気中、温度： $600 \sim 1200^{\circ}\text{C}$ 保持の条件で加熱すると、純鉄粉末の表面にMg-Si含有酸化物膜が形成されたMg-Si含有酸化物被覆軟磁性粉末が得られる。

前記一酸化ケイ素粉末の添加量は $0.01 \sim 1$ 質量%の範囲内にすることができ、前記Mg粉末の添加量を $0.05 \sim 1$ 質量%の範囲内にすることができる。前記真空雰囲気は圧力： $1 \times 10^{-12} \sim 1 \times 10^{-1} \text{MPa}$ の真空雰囲気とすることができる。

[0016] これらの製造方法により得られたMg含有酸化物被覆純鉄粒子は、(Mg, Fe)Oを含むMg-Fe-O三元系酸化物堆積膜の被覆密着性が格段に優

れたものとなり、この粒子をプレス成形して圧粉体を作製しても絶縁被膜が破壊され剥離することが少ない。

前述の酸化物被覆純鉄粉末は平均粒径：20～50 μm の範囲内にある粉末を使用することが好ましい。その理由は、平均粒径が小さすぎると、粉末の圧縮性が低下し、飽和磁束密度の値が低下するので好ましくなく、一方、平均粒径が大きすぎると、軟磁性粉末内部の渦電流が増大して高周波における透磁率が低下するおそれを生じやすいことによるものである。

[0017] 前記酸化物被覆純鉄粉末に加え、センダスト合金（例えば、組成比：10質量％Si－6質量％Al－残Fe）粉末を用意する。このセンダスト合金粉末として50～120 μm の粒径範囲の粉末を用いることができる。

これらの粉末を用意したならば、酸化物被覆純鉄粉末とセンダスト合金粉末にそれぞれバインダー材としてのシリコンレジンなどのSiを含むバインダー材を個々に混合し、それぞれの粉末をシリコン樹脂被覆粉末とする。

酸化物被覆純鉄粉末にバインダー材を被覆するには、0.01～1質量％程度のバインダー材を添加して攪拌混合被覆した後、150～250℃の範囲、より好ましくは200～250℃の範囲に加熱して焼付け被覆することができる。センダスト合金粉末にバインダー材を被覆するには、0.05～3質量％程度のバインダー材を添加して攪拌混合被覆した後、80～250℃の範囲、より好ましくは100～200℃の範囲に加熱して焼付け被覆することができる。

[0018] 酸化物被覆純鉄粉末にバインダー材を被覆して焼き付ける場合、焼付け温度として、150～250℃の範囲を選択できるが、この範囲を外れると150℃以下では成形時にバインダー材が剥離し、酸化物絶縁被覆を損傷することが原因と思われる比抵抗の低下が見られ、また、250℃を越えるとバインダー材が硬くなり、成形時の充填密度に低下が見られるので望ましくない。また、この範囲内であっても、より高い密度と比抵抗を得るために、200～250℃の範囲の焼付け温度がより好ましい。

センダスト合金粉末にバインダー材を被覆して焼き付ける場合、焼付け温度として、 $80 \sim 250^{\circ}\text{C}$ の範囲を選択できるが、この範囲を外れると 80°C 以下であると成形時に密度の低下やばらつきが見られること、 250°C を超える温度では比抵抗の低下が見られるので望ましくない。また、この範囲内であっても、より高い密度と比抵抗を得るために、 $100 \sim 200^{\circ}\text{C}$ の範囲の焼付け温度がより好ましい。

[0019] これらのバインダー材を被覆した酸化物被覆純鉄粉末とバインダー材を被覆したセンダスト合金粉末の質量の総和に占める、バインダー材を被覆したセンダスト合金粉末の質量の割合が5質量%以上、20質量%未満となるよう、これら粉末を混合し、圧密装置の金型に収容して金型温度 $80 \sim 150^{\circ}\text{C}$ にて $8 \sim 10 \text{ Ton/cm}^2$ 程度の成形圧力で目的の形状に温間成形して圧密体とする。

ここで用いる $8 \sim 10 \text{ Ton/cm}^2$ 程度の成形圧力は、センダスト合金粉末の圧密に使用する従来の 20 Ton/cm^2 程度の成形圧力よりも格段に低く、一般的な粉末成形法に利用する圧密力と同等レベルなので、一般的な成形圧力であってもセンダスト合金粉末を利用して本発明に係る優れた複合軟磁性材料の製造に利用できる。

その後、この圧密体を $500^{\circ}\text{C} \sim 800^{\circ}\text{C}$ の温度で1時間程度、真空雰囲気あるいは不活性ガス雰囲気 (Ar 、 N_2) 中、または、非酸化雰囲気 (H_2 雰囲気) において焼成して目的の複合軟磁性材料を得ることができる。

前述の圧密処理と焼成処理によって、絶縁処理を施した純鉄粉末は圧密されて鉄主相となり、センダスト合金粉末は圧密されてセンダスト合金主相となり、それらの鉄主相とセンダスト合金主相とが構成する主相に対してそれらの粒界に存在するようにバインダー材が焼成された結果として生成する粒界相が存在する組織を呈し、目的の複合軟磁性材料を得ることができる。

[0020] 以上説明の如く製造された複合軟磁性材料は、高周波域 ($10 \sim 20 \text{ kHz}$) において低損失であり、鉄損、ヒステリシス損、保磁力が低く、渦電流損失が少なく、比抵抗が高いという優れた軟磁気特性を有する。これは、本

発明の複合軟磁性材料が、純鉄粉末を絶縁性、密着性共に優れた前述の (Mg, Fe) O を含む Mg-Fe-O 三元系酸化物堆積膜の被膜で覆い、好適な粒径範囲とした純鉄粉末に対し、好適な粒径範囲の適量のセンダスト合金粉末を混合し、圧密し、焼成して複合軟磁性材料としているので、圧密体として焼成した状態であっても、純鉄粉末が有する高い飽和磁束密度を維持しながら、センダスト合金が有する高透磁率、低保磁力、低鉄損失の特性を発揮できるからである。

なお、純鉄粉末の絶縁処理は、前述の (Mg, Fe) O を含む Mg-Fe-O 三元系酸化物堆積膜による被膜に限られるものではなく、リン酸塩被覆純鉄粉末など、他の絶縁処理を施した被膜によっても同様の複合軟磁性材料を得ることができる。

[0021] 前記の如く純鉄粉末とセンダスト合金粉末を混合して圧密焼成してなる複合軟磁性材料は、センダスト合金に比べて軟質の純鉄粉末を適切な配合比で混合し、圧密し、焼成してなるので、 $8 \sim 10 \text{ Ton/cm}^2$ 程度の成形圧力で十分な磁気特性を発揮することができる。

本発明の複合軟磁性材料は、センダスト合金粉末の添加割合を 5 質量%以上、20 質量%未満の範囲としたことにより、センダスト合金粉末が本来有する高周波域 ($10 \sim 20 \text{ kHz}$) において低損失であり、鉄損、ヒステリシス損、保磁力が低く、渦電流損失が少なく、比抵抗が高いという優れた軟磁気特性を得ることができる。センダスト合金粉末の添加割合が前述の範囲を下回るとこれらの特性を有効に発揮することができなくなる。また、センダスト合金粉末の添加割合が多すぎると純鉄粉末の量が少なくなるので、高い飽和磁束密度を得難くなるとともに、成形時に必要な圧力が高くなり、前述の範囲の成形圧力では良好な密度が得難くなる。

[0022] 本発明の複合軟磁性材料を用いて構成される電磁気回路部品として、例えば、磁心、電動機コア、発電機コア、ソレノイドコア、イグニッションコア、リアクトルコア、トランスコア、チョークコイルコアまたは磁気センサコアなどが挙げられ、これらは、いずれにおいても優れた特性を発揮し得る電

磁気回路部品である。

これら電磁気回路部品を組み込んだ電気機器には、電動機、発電機、ソレノイド、インジェクタ、電磁駆動弁、インバータ、コンバータ、変圧器、継電器、または磁気センサシステム等がある。本発明の複合軟磁性材料は、これら電気機器の高効率高性能化や小型軽量化に寄与するという効果を有する。

実施例

[0023] 以下、実施例により本発明の効果をより明らかなものとする。なお、本発明は、以下の実施例に限定されるものではなく、その要旨を変更しない範囲で適宜変更して実施することができる。

[0024] Mg 酸化物被覆純鉄粉末として粒径 D50 ($=20\mu\text{m}\sim50\mu\text{m}$) の粉末と、センダスト合金（組成比：10質量%Si－6質量%Al－残Fe）粉末粒径としてD50 ($=50\mu\text{m}\sim120\mu\text{m}$) の粉末を用意した。粒径の測定には、LEED&NORTHROP社製のMICROTRAC FRAを使用した。

Mg 酸化物被覆純鉄粉末として、純鉄粉末に対して大気中220℃にて加熱処理を行って表面に酸化膜を形成し、この軟磁性粉末に対して0.3質量%のMg粉末を配合し、この配合粉末を造粒転動攪拌混合装置によって、真空中、650℃にて1時間転動することにより膜厚30nmの(Mg, Fe)Oで示されるMg含有酸化物被膜を形成した絶縁処理済み純鉄粉末を用いた。

他の絶縁被覆純鉄粉末として、ヘガネスジャパン製リン酸鉄被覆鉄粉S110iを用意し、比較例試料として、上記と同等の粒径を有する、被覆を施していない純鉄粉末を用意した。

[0025] これらの粉末にバインダー材としてのシリコーン樹脂を0.5質量%添加混合し、250℃にて焼き付け、また、センダスト合金粉末にはシリコーン樹脂を1質量%添加混合し、150℃に加熱して焼き付けを行った。引き続いてこれらの各粉末のうち、Mg 酸化物被覆純鉄粉末とセンダスト合金粉末

を、センダスト合金粉末の割合において、0質量%、5質量%、7質量%、10質量%、20質量%、および50質量%の割合で各々混合し分けた試料を準備し、これらの各試料を成形温度150°C、8 Ton/cm²の成形圧力で外形35mm、内径25mm、高さ5mmのリング形状に圧密し、各試料を作成した。

[0026] 得られた試料について、センダスト合金粉末の配合比（酸化物被覆純鉄粉末とセンダスト合金粉末の質量の総和に占めるセンダスト合金粉末の配合比、質量%）を表1に表示するとともに、各試料の水中密度（g/cm³）、比抵抗（ $\mu\Omega\text{m}$ ）、 μ_{max} 、磁場10kA/m時の飽和磁束密度（ $B_{10\text{kA/m}} : \text{T}$ ）、保磁力（ $H_c : \text{A/m}$ ）、鉄損（全損、ヒステリシス損、渦電流損失）、機械強度（圧環強度： N/mm^2 ）を測定した結果を表1に併せて示す。

[0027]

[表1]

成形: 150°C、8Ton/cm³
 焼成: 650°C、N²中

センダスト配合比 (質量%)	水中密度 (g/cm ³)	比抵抗 ($\mu\Omega\text{m}$)	μmax	B _{10kA/m} (T)	H _c (A/m)	鉄損		W ₁ /10k(W/kg)	渦電流損失	機械強度(N/mm ²)	
						全鉄損	ヒステリシス損失			圧環	
0	7.14	14000	136	1.10	265	21.0		17.1	3.7		41.4
5	7.14	570000	147	1.10	250	19.0		16.4	2.5		50.6
7	7.10	330000	151	1.11	240	18.5		15.6	2.7		56.8
10	7.05	120000	150	1.10	235	18.2		15.1	2.8		51.5
20	7.03	50000	142	1.03	220	15.3		14.4	1.2		—
50	6.69	5800	105	0.78	160	13.4		12.3	0.1		—

[0028] 図1は表1に示すセンダスト合金粉末の配合比と比抵抗の関係をプロットした図である。図1に示す結果によれば、センダスト合金粉末の配合比において、0質量%では著しく比抵抗の値が低い、センダスト合金粉末を5質量%添加した試料で比抵抗の値が急激に高くなる。また、配合比が20質量%以上になると比抵抗の低下割合が大きくなる。従って、センダスト合金粉末の配合比は5質量%以上、20質量%未満が好ましい。

[0029] 図2は表1に示すセンダスト合金粉末の配合比と飽和磁束密度の関係をプロットした図である。図2に示す結果によれば、飽和磁束密度については配合比20質量%以上になると急激に低下する。従って、酸化物被覆純鉄粉末に対するセンダスト合金粉末の配合比は、磁場10kA/m時の飽和磁束密度1T以上とするためには、5質量%以上、20質量%未満が好ましく、磁場10kA/m時の飽和磁束密度1.1Tを得るためには5質量%以上、10質量%以下がより好ましい。

[0030] 図3は表1に示す磁場10kA/m時の磁束密度と鉄損（磁束密度0.1T、周波数10kHz時）の関係をプロットした図である。図3に示す結果によれば、センダスト合金粉末の配合により磁束密度を低下させることなく、鉄損を低減することができる。

図4は表1に示すセンダスト合金粉末の配合比と損失との関係をプロットした図である。図4に示す結果によれば、配合比20質量%未満が損失については好ましい。また、センダスト合金粉末の配合比において5質量%以上、20質量%未満において、鉄損（磁束密度0.1T、周波数10kHz時）20W/kg以下を実現できる。

[0031] 図5は表1に示すセンダスト合金粉末の配合比と機械強度との関係をプロットした図である。図5に示す結果によれば、圧環強度については配合比5～10質量%の間に機械強度のピークを有することが明らかであるが、センダスト合金粉末の配合比について実用域で問題のない強度であることが判る。

[0032] 次に、純鉄粉末にシリコーン樹脂を0.5質量%混合して250℃で焼き

付けたシリコーン樹脂被覆純鉄粉末に対し、シリコーン樹脂を 1 質量%混合して 200℃で焼き付けたシリコーン樹脂被覆センダスト合金粉末を、シリコーン樹脂被覆純鉄粉末とシリコーン樹脂被覆センダスト合金粉末の質量の総和に占める、シリコーン樹脂被覆センダスト合金粉末の配合比が 7 質量%となるように配合した。これらを混合して成形温度 150℃、8 Ton/cm²の成形圧力で圧密し、その後、500℃あるいは650℃にて焼成して各試料を作成した。各試料の比抵抗の測定値を以下の表 2 に示す。

[0033] [表2]

センダスト合金粉末7質量%配合 絶縁鉄粉 シリコーン樹脂0.5%(焼付け250℃)
センダスト合金粉末 シリコーン樹脂1%(焼付け200℃)
成形150℃、8トン/cm²

鉄粉種	比抵抗 ($\mu\Omega\text{m}$)	
	焼成500℃	焼成650℃
リン酸鉄被覆鉄粉	90000	120
Mg酸化物被覆鉄粉	1000000	100000
被覆なし純鉄粉	120	100

[0034] 表 2 に示す結果によれば、良好な鉄損（数値が小）とし、ヒステリシス損を下げるためには、焼成温度は高い方が好ましく、焼成温度 500℃にて良好な比抵抗が得られるが、より良好な鉄損を得るには、650℃の焼成温度が好ましい。

[0035] 次に、センダスト合金粉末にシリコーン樹脂を 1 質量%混合して 150℃で焼き付けたシリコーン樹脂被覆センダスト合金粉末に対し、シリコーン樹脂を 0.5 質量%混合して、150℃、200℃、250℃、および 270℃で、それぞれ焼き付けたシリコーン樹脂被覆絶縁鉄粉を、そのシリコーン樹脂被覆センダスト合金粉末とシリコーン樹脂被覆絶縁鉄粉の質量の総和に占める、シリコーン樹脂被覆センダスト合金粉末の配合比が 7 質量%になるように配合した。これらをそれぞれ成形温度 150℃、8 Ton/cm²の成形圧力で圧密し、その後、650℃にて焼成して各試料を作成した。各試料の密度、比抵抗および鉄損の測定値を以下の表 3 に示す。

[0036]

[表3]

センダスト合金粉末7質量%配合 センダスト合金粉末 シリコン樹脂1%(焼付け150℃)
成形150℃、8トン/cm²
焼成650℃

絶縁鉄粉	シリコン樹脂焼付け温度			
	150℃	200℃	250℃	270℃
密度(g/m ³)	7.13	7.14	7.13	6.93
比抵抗($\mu\Omega\text{m}$)	2000	100000	200000	100000
全鉄損(0.1T、10kHz時)	18.2	17.2	17	17.6

[0037] 表3に示す試験結果によれば、純鉄粉末に対するシリコン樹脂の焼付け温度は150～250℃の範囲を選択できるが、より好ましくは、200～250℃の範囲である。

[0038] 純鉄粉末にシリコン樹脂を0.5質量%混合して250℃で焼き付けたシリコン樹脂被覆純鉄粉末と、シリコン樹脂を1質量%混合して、50℃、80℃、100℃、150℃、200℃、250℃、および270℃で、それぞれ焼き付けたシリコン樹脂被覆センダスト合金粉末を、そのシリコン樹脂被覆純鉄粉末とシリコン樹脂被覆センダスト合金粉末の質量の総和に占める、シリコン樹脂被覆センダスト合金粉末の配合比が7質量%になるように配合した。これらをそれぞれ成形温度150℃、8トン/cm²の成形圧力で圧密し、その後、650℃にて焼成して各試料を作成した。各試料の密度、比抵抗および鉄損の測定値を以下の表4に示す。

[0039] [表4]

センダスト合金粉末7質量%配合 絶縁鉄粉 シリコン樹脂0.5%(焼付け250℃)
成形150℃、8トン/cm²
焼成650℃

センダスト合金粉末	シリコン樹脂焼付け温度						
	50℃	80℃	100℃	150℃	200℃	250℃	270℃
密度(g/m ³)	6.71	7.02	7.1	7.13	7.11	7.11	7.01
比抵抗($\mu\Omega\text{m}$)	1000	90000	120000	200000	100000	1000	1000
全鉄損(0.1T、10kHz時)	19.8	17.7	17.1	17	17.1	17.3	19

[0040] 表4に示す試験結果によれば、センダスト合金粉末におけるシリコン樹脂の焼付け温度は80～250℃の範囲を選択できるが、より好ましくは、100～200℃の範囲である。

[0041] 以上説明の試験結果から、本発明を実施することで、純鉄粉末にセンダス

ト合金粉末を添加し、 $8\text{ T} \cdot \text{on} / \text{cm}^2$ の成形圧力で圧密することによって、磁場 $10\text{ kA} / \text{m}$ 時の飽和磁束密度 1 T 以上、保磁力 $260\text{ A} / \text{m}$ 以下、鉄損 (0.1 T 、 10 kHz 時) $20\text{ W} / \text{kg}$ 以下である優れた軟磁気特性の複合軟磁性材料を製造できることが明らかになった。

産業上の利用可能性

[0042] 本発明によれば、絶縁処理した鉄粉末が有する高い飽和磁束密度を維持しながら、適量混合したセンダスト合金粉末が有する低鉄損と低い保磁力と少ない渦電流損失のような軟磁気特性を有効に得た複合軟磁性材料を提供することができる。

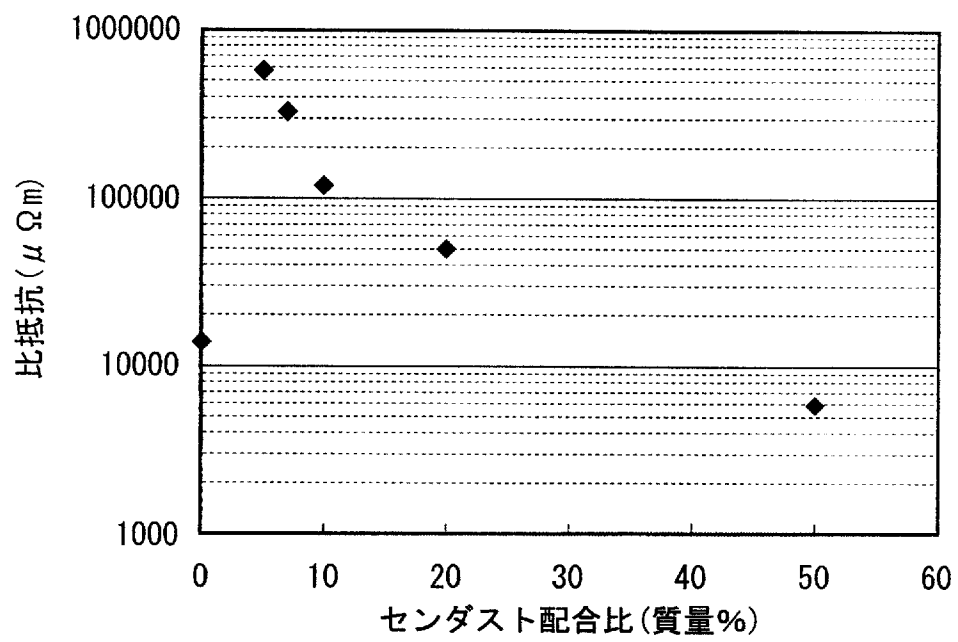
請求の範囲

- [請求項1] 絶縁処理された鉄粉末とセンダスト合金粉末とバインダーが混合圧密され、焼成されてなり、前記鉄粉末とセンダスト合金粉末が圧密され焼成された主相と、前記主相の周囲に生成されたバインダーを主体とする粒界相とが具備されてなり、前記主相に占めるセンダスト合金の割合が5質量%以上、20質量%未満であり、磁場10kA/m時の飽和磁束密度1T以上、保磁力260A/m以下、鉄損（0.1T、10kHz時）20W/kg以下であることを特徴とする複合軟磁性材料。
- [請求項2] 絶縁処理された鉄粉末とセンダスト合金粉末が圧密され焼成された主相において、鉄主相の平均粒径が20～50 μ m、センダスト合金主相の平均粒径が50～120 μ mであることを特徴とする請求項1に記載の複合軟磁性材料。
- [請求項3] 絶縁処理された鉄粉末が、Mg含有酸化物被膜を具備してなる純鉄粉末であることを特徴とする請求項1または2に記載の複合軟磁性材料。
- [請求項4] 絶縁処理された鉄粉末とセンダスト合金粉末とバインダーを少なくとも混合圧密し、焼成することにより、前記鉄粉末とセンダスト合金粉末を圧密し焼成してなる主相と、前記主相の周囲に生成されたバインダーを主体とする粒界相とを具備した複合軟磁性材料を製造するにあたり、
絶縁処理された鉄粉末とセンダスト合金粉末の質量の総和に占めるセンダスト合金粉末の添加割合を5質量%以上、20質量%未満として、絶縁処理された鉄粉末およびセンダスト合金粉末を混合圧密し、焼成することにより、磁場10kA/m時の飽和磁束密度1T以上、保磁力260A/m以下、鉄損（0.1T、10kHz時）20W/kg以下の複合軟磁性材料を得ることを特徴とする複合軟磁性材料の製造方法。

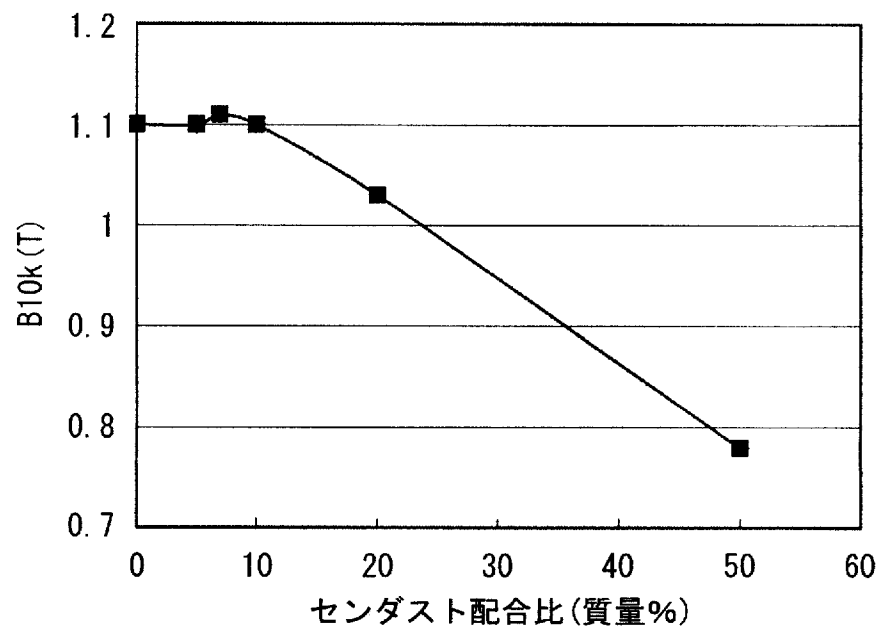
[請求項5] 平均粒径 $20 \sim 50 \mu\text{m}$ の絶縁処理された鉄粉末を用い、平均粒径 $50 \sim 120 \mu\text{m}$ のセンドスト合金粉末を用いることを特徴とする請求項4に記載の複合軟磁性材料の製造方法。

[請求項6] 絶縁処理された鉄粉末として、Mg含有酸化物被膜により絶縁処理された純鉄粉末を用いることを特徴とする請求項4または5に記載の複合軟磁性材料の製造方法。

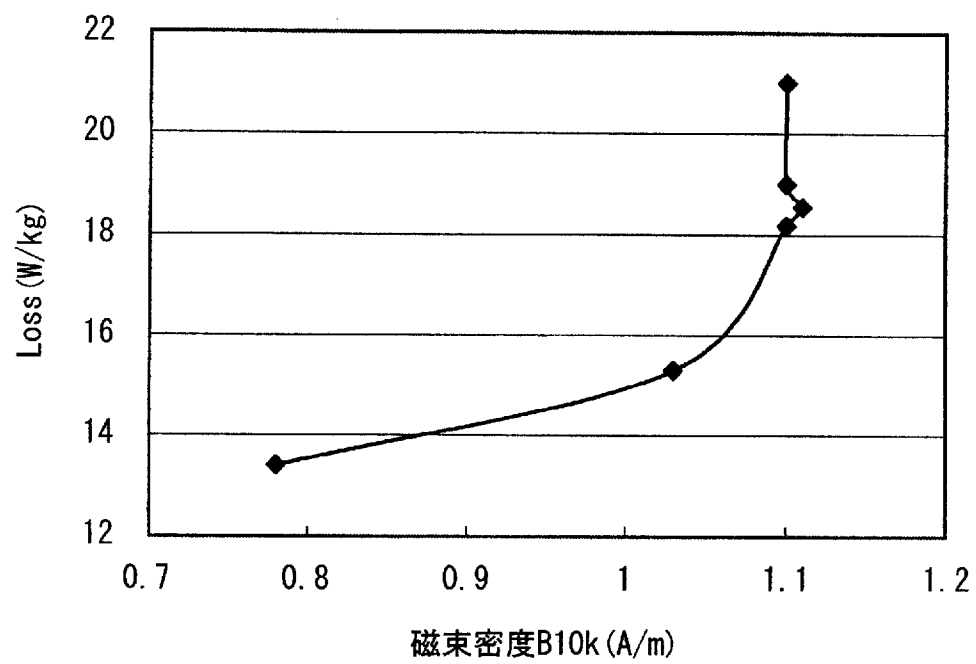
[図1]



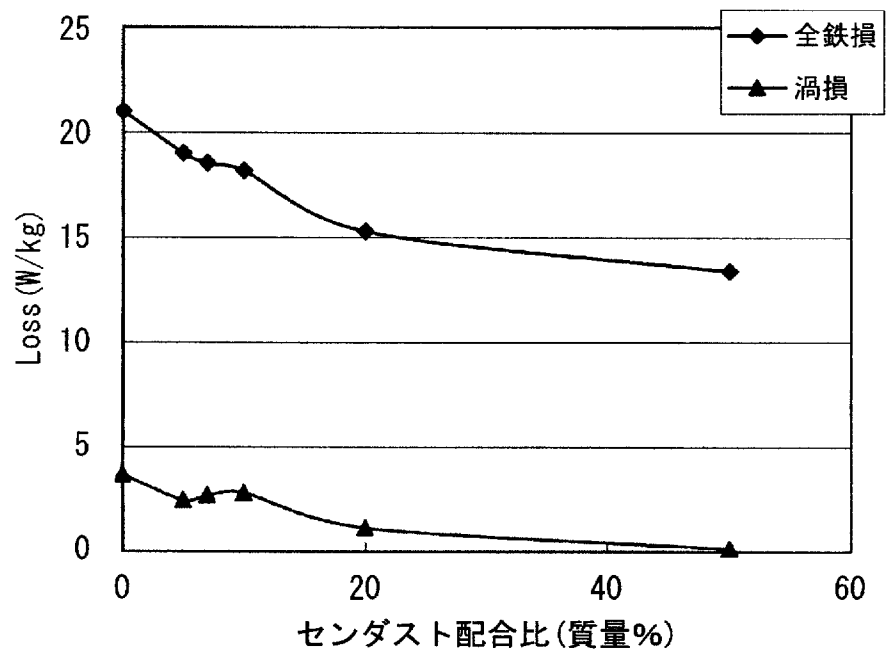
[図2]



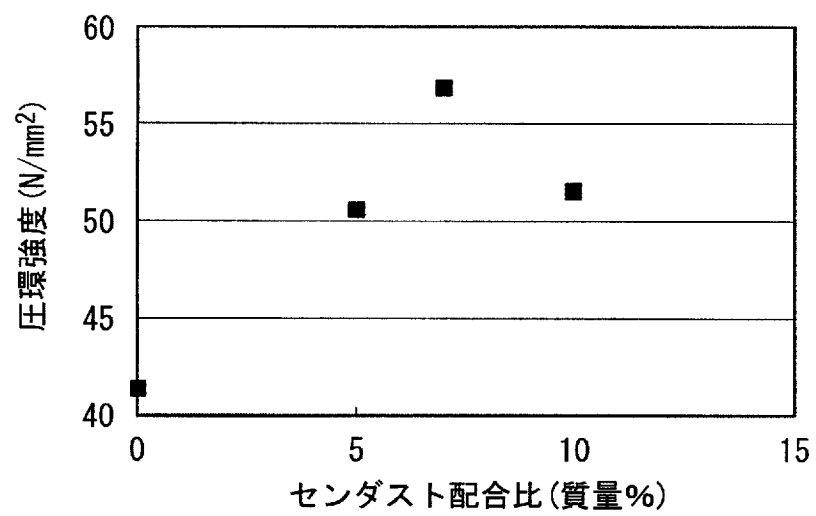
[図3]



[図4]



[図5]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/007070

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B22F3/00(2006.01)i, B22F1/00(2006.01)i, B22F1/02(2006.01)i, C22C33/02(2006.01)i, C22C38/00(2006.01)i, H01F1/147(2006.01)i, H01F1/22(2006.01)i, H01F41/02(2006.01)i

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)

B22F1/00-8/00, C22C33/02, C22C38/00, H01F1/12-1/375

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2010
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010

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 Y	JP 2005-303006 A (Sumitomo Electric Industries, Ltd.), 27 October 2005 (27.10.2005), claims 1, 6, 7; paragraphs [0006], [0025], [0026], [0034], [0056]; table 1, no.2-5; fig. 2 (Family: none)	1, 4 2, 3, 5, 6
X Y	JP 2002-093612 A (Daido Steel Co., Ltd.), 29 March 2002 (29.03.2002), claim 1; paragraphs [0005], [0009], [0011], [0012]; table 2, example 12; fig. 1 (Family: none)	1, 4 2, 3, 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

"T" 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
11 March, 2010 (11.03.10)

Date of mailing of the international search report
23 March, 2010 (23.03.10)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/007070

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 06-236808 A (Kawasaki Steel Corp.), 23 August 1994 (23.08.1994), claims 1 to 3; paragraphs [0017] to [0021]; tables 1, 3; fig. 1 (Family: none)	1, 4 2, 3, 5, 6
Y	JP 2005-093350 A (Toyota Central Research and Development Laboratories, Inc., Toyota Motor Corp., Fine Sinter Co., Ltd.), 07 April 2005 (07.04.2005), paragraph [0032] (Family: none)	2, 5
Y	JP 2006-332524 A (Mitsubishi Materials PMG Corp.), 07 December 2006 (07.12.2006), claim 1; paragraphs [0002], [0003] (Family: none)	3, 6

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. B22F3/00(2006.01)i, B22F1/00(2006.01)i, B22F1/02(2006.01)i, C22C33/02(2006.01)i, C22C38/00(2006.01)i, H01F1/147(2006.01)i, H01F1/22(2006.01)i, H01F41/02(2006.01)i

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 (I P C))

Int.Cl. B22F1/00-8/00, C22C33/02, C22C38/00, H01F1/12-1/375

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 0 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 0 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 0 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 Y	JP 2005-303006 A(住友電気工業株式会社)2005.10.27, 請求項 1, 6, 7, 【0006】, 【0025】, 【0026】, 【0034】, 【0056】, 表 1 の No.2-5, 図 2 (ファミリーなし)	1, 4 2, 3, 5, 6
X Y	JP 2002-093612 A(大同特殊鋼株式会社)2002.03.29, 請求項 1, 【0005】, 【0009】, 【0011】, 【0012】, 表 2 の実施例 12, 図 1 (ファミリーなし)	1, 4 2, 3, 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

1 1 . 0 3 . 2 0 1 0

国際調査報告の発送日

2 3 . 0 3 . 2 0 1 0

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

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)

河口 展明

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 3 5

4 K

3 7 7 0

C (続き) . 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 Y	JP 06-236808 A(川崎製鉄株式会社)1994.08.23, 請求項 1-3, 【0017】 - 【0021】, 表 1, 3, 図 1 (ファミリーなし)	1, 4 2, 3, 5, 6
Y	JP 2005-093350 A(株式会社豊田中央研究所、トヨタ自動車株式会社、 株式会社ファインシンター)2005.04.07, 【0032】 (ファミリーなし)	2, 5
Y	JP 2006-332524 A(三菱マテリアル PMG 株式会社)2006.12.07, 請求 項 1, 【0002】, 【0003】 (ファミリーなし)	3, 6