

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号  
特許第4640097号  
(P4640097)

(45) 発行日 平成23年3月2日 (2011.3.2)

(24) 登録日 平成22年12月10日 (2010.12.10)

(51) Int.Cl.	F I
B 2 2 F 3/24 (2006.01)	B 2 2 F 3/24 B
B 2 2 F 3/00 (2006.01)	B 2 2 F 3/00 B
B 2 2 F 3/02 (2006.01)	B 2 2 F 3/02 L
C 2 1 D 6/00 (2006.01)	C 2 1 D 6/00 C
C 2 2 C 38/00 (2006.01)	C 2 2 C 38/00 3 0 3 T
請求項の数 4 (全 8 頁) 最終頁に続く	

(21) 出願番号	特願2005-297483 (P2005-297483)	(73) 特許権者	000005821
(22) 出願日	平成17年10月12日 (2005.10.12)		パナソニック株式会社
(65) 公開番号	特開2007-107031 (P2007-107031A)		大阪府門真市大字門真1006番地
(43) 公開日	平成19年4月26日 (2007.4.26)	(74) 代理人	100109667
審査請求日	平成20年9月18日 (2008.9.18)		弁理士 内藤 浩樹
		(74) 代理人	100109151
			弁理士 永野 大介
		(74) 代理人	100120156
			弁理士 藤井 兼太郎
		(72) 発明者	高橋 岳史
			大阪府門真市大字門真1006番地 パナソニックエレクトロニクス株式会社 社内
		審査官	浅井 雅弘
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 複合磁性体の製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

Siが8wt%以上12wt%以下、Alが4wt%以上6wt%以下であり、残りがFe及び不可避な不純物からなる軟磁性合金粉末に、シリコーン樹脂、シラン系カップリング剤、チタン系カップリング剤、クロム系カップリング剤、SiO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>のいずれか、からなる絶縁性結着材を添加し、加圧して成形体とした後、熱処理を施した複合磁性体の製造方法であり、前記熱処理は、前記軟磁性合金の相変態点より高温の温度帯である900 以上1100 以下で熱処理した後、前記相変態点より低温の温度帯である650 以上850 以下で熱処理を行う複合磁性体の製造方法。

【請求項2】

前記相変態点より低温での熱処理の、温度帯を850 から650 へ冷却する工程とし、且つ冷却速度を5 /min以下とする請求項1に記載の複合磁性体の製造方法。

【請求項3】

Fe、Si及びAlを含む軟磁性合金粉末の平均粒径が1 μm以上100 μm以下である請求項1または2に記載の複合磁性体の製造方法。

【請求項4】

前記熱処理は窒素雰囲気中で行う、請求項1に記載の複合磁性体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明はチョークコイルの圧粉磁芯などとして用いられる複合磁性体の製造方法に関するものである。

【背景技術】

【0002】

従来の複合磁性体の製造方法としては、Feを主成分としたFe-Al-Si型の軟磁性合金粉末表面にチタン系酸化被膜を絶縁膜として形成させ、粘性のある水ガラスを結着材として添加し、加圧して成形体とした後、500 から 1100 で熱処理することがあげられる。

【0003】

前記熱処理は、加圧成形時に生じる結晶歪を取り除くためのものであり、この結晶歪除去の効果は処理温度が高いほど有効である。ここで、従来の圧粉磁芯の製造方法で温度の上限が1100 となっているのは、あまりに高温になると絶縁膜であるチタン系酸化被膜が劣化し粒子間の絶縁が低下するため、絶縁膜の耐熱温度を処理温度の上限としたためである。また、温度の下限が500 となっているのは、一般的に金属材料の結晶歪の回復は融点の1/2以上の温度であることを考慮したためである。

【0004】

なお、この出願の発明に関連する先行技術文献としては、例えば特許文献1が知られている。

【特許文献1】特開平7-297016号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

しかしながら、前記従来の製造方法では、高透磁率を実現するには不十分であった。それは、前記熱処理工程において、結晶歪を取り除くために温度を上げていくと、Fe-Al-Si合金の相変態点より高温となってしまう、その結晶が規則相から不規則相へと相変態を起こし、そのまま冷却すれば残存した不規則相によって透磁率が低下するためである。また、このような不規則相への相変態を避けるため低温で熱処理を行うと、結晶歪を十分に取り除くことができず、この場合も結局透磁率が低下することとなる。すなわち、従来のように熱処理工程を一回で行う限り、高温にすれば不規則相によって透磁率は低下し、低温にすれば結晶歪によって透磁率は低下し、結局高い透磁率を得ることができないのであった。

【0006】

そこで本発明は、高透磁率の複合磁性体を製造することを目的としたものである。

【課題を解決するための手段】

【0007】

そしてこの目的を達成するために、本発明は、Siが8wt%以上12wt%以下、Alが4wt%以上6wt%以下であり、残りがFe及び不可避な不純物からなる軟磁性合金粉末に、シリコーン樹脂、シラン系カップリング剤、チタン系カップリング剤、クロム系カップリング剤、SiO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>のいずれか、からなる絶縁性結着材を添加し、加圧して成形体とした後、熱処理を施した複合磁性体の製造方法であり、前記熱処理は、前記軟磁性合金の相変態点より高温の温度帯である900 以上1100 以下で熱処理した後、前記相変態点より低温の温度帯である650 以上850 以下で熱処理を行うことを特徴とするものである。

【発明の効果】

【0008】

上記構成によれば、最初の熱処理では、相変態点より高温にするため、結晶歪が取り除かれる一方で規則相が不規則相へと相変態を起こすが、その後の相変態点より低温での第二熱処理を行えば、不規則相が再び規則相へと相変態を起こし、各構成元素が秩序立って配列された結晶構造とすることができる。したがって、高い透磁率を実現することができる。

10

20

30

40

50

## 【発明を実施するための最良の形態】

## 【0009】

以下本発明を実施するための最良の形態について説明する。

## 【0010】

(実施の形態1)

本発明における複合磁性体として外径15mm、内径10mm、高さ3mm程度のトロイダルコアを例にあげ、請求項1乃至4に記載の実施例を以下に説明する。

## 【0011】

まず、組成が重量%で9.3wt%Si-5.5wt%Al-bal.Feであり、平均粒径が22 $\mu$ mの軟磁性合金粉末に、シリコン樹脂を添加し混練・分散し乾燥させて、平均粒径100 $\mu$ mから200 $\mu$ m程度の二次粒子を作製した。次にこの二次粒子を12ton/cm<sup>2</sup>にて加圧成形を行い、その後アルゴン雰囲気において(表1)記載の温度条件にて2段階の熱処理を行った。前記シリコン樹脂と軟磁性合金粉末の重量比は1.2:100とした。

10

## 【0012】

なお、本発明に用いられる軟磁性合金粉末の組成は、前記の比率に限定されるのではないが、Siが8wt%以上12wt%以下、Alの含有量が4wt%以上6wt%以下であり、残りがFe及び不可避な不純物からなることが好ましい。これは、Fe-Al-Si合金の場合、各構成元素の含有量をこの組成範囲とすることで高い透磁率と低い保磁力が得られるからである。

20

## 【0013】

本実施形態における熱処理雰囲気としてはアルゴンを用いたが、その他窒素、水素ガス雰囲気等の非酸化性雰囲気でもよい。しかし、酸化性雰囲気では軟磁性合金粉末の表面に分厚い酸化被膜が形成され、透磁率が低下するため好ましくない。

## 【0014】

本実施形態における絶縁性結着材としてはシリコン樹脂を用いたが、例えばシラン系、チタン系、クロム系等カップリング剤、又SiO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>等酸化物粉末などでもよく、より好ましくは安価で分散性の良い、シラン系、チタン系、クロム系等カップリング剤、シリコン樹脂が良い。また、熱処理は非常に高温で行われるため、これらの絶縁性結着材は熱分解すると考えられるが、シリコン樹脂のように熱分解しても酸化物として軟磁性合金粉末表面に残存するものが好ましい。軟磁性合金粉末間の絶縁性と成形体強度とを確保するためである。

30

## 【0015】

また、絶縁性結着材の粘性を上げ成形しやすくしたり、圧縮時における成形体強度をさらに増強したりするため、軟磁性合金粉末と絶縁性結着材とを混合した後、副成分として、例えばエポキシ樹脂やアクリル樹脂、またはブチラル樹脂などをして添加し混練することも可能である。

## 【0016】

本発明における加圧成形方法は特に限定されるものではなく、通常の加圧成形法が用いられる。成形圧力としては5~20ton/cm<sup>2</sup>の範囲が好ましい。5ton/cm<sup>2</sup>より低いと金属磁性粉末の充填率が低くなり、高い透磁率が得られないためである。一方、20ton/cm<sup>2</sup>より高いと加圧成形時の金型強度を確保するため金型が大型化し、また、成形圧力を確保するためプレス機も大型化してしまう。したがって、金型およびプレス機の大型化により生産性が低くなり、コストアップにつながる。

40

## 【0017】

また、得られたサンプルについて直流を重畳して流したときの透磁率(以下直流重畳特性という。)を測定した。さらに、圧粉磁芯の磁気特性の一つであるコア損失についても評価を行った。直流重畳特性については、印加磁場450e、周波数120kHzにおける透磁率をLCRメータにて測定し評価した。コア損失は交流B-Hカーブ測定機を用いて測定周波数120kHz、測定磁束密度0.1Tで測定を行った。得られた結果を(表

50

1) に示す。

【 0 0 1 8 】

【 表 1 】

試料No	熱処理条件				透磁率 (45Oe)	コア損失 (kW/m³)	
	第一熱処理		第二熱処理				
	温度/℃	時間/min	温度/℃	時間/min			
1	900	20	850	35	71	210	実施例
2	950	30	680	30	62	500	実施例
3	1000	18	750	25	67	440	実施例
4	1100	5	700	40	65	470	実施例
5	900	25	650	240	54	605	実施例
6	1000	20	800	60	69	360	実施例
7	1100	15	650	300	59	570	実施例
8	1050	10	820	50	75	180	実施例
9	1100	10	850	40	69	330	実施例
10	1200	20	700	35	36	3800	比較例
11	900	15	600	120	42	980	比較例

10

20

30

40

【 0 0 1 9 】

(表1)より請求項1乃至4記載の発明において第一熱処理の温度範囲が900～1100であり、かつ第二熱処理の温度範囲が650～850の場合に、高い透磁率を達成できることがわかる。

【 0 0 2 0 】

この理由は、以下のように考えられる。

【 0 0 2 1 】

本発明における軟磁性合金粉末における規則 - 不規則変態点は850～900の範囲

50

に存在していると考えられる。900 以上で行う第一の熱処理では、十分高温のため、結晶歪を取り除くことができる一方で、相変態点を超える温度域のため、Fe-Al-Si合金の規則相が不規則相へと相変態する。

【0022】

しかし、その後の850 以下で行う第二の熱処理は変態点より低い温度域であるから、残留した不規則相を再び相変態させ、規則化の度合いを高めることができる。よって本発明における2段階熱処理では結晶歪が少なく且つ規則化度合いの高い状態とすることが可能であり、高い透磁率を実現し得る。また、結晶歪が少ないと保磁力が低下し、ヒステリシス損失を減少させることができる。

【0023】

なお、結晶歪とは本来原子があるべき位置の原子が抜けている場合（空孔）や、本来は原子が存在しないところに原子がある場合（格子間原子）、または転位があることをいい、不規則相とは、結晶構造における元素の位置は正しいが、合金の各構成元素の原子配置が不規則であることをいう。

【0024】

（実施の形態2）

本発明における複合磁性体として外径15mm、内径10mm、高さ3mm程度のトロイダルコアを例にあげ、請求項5に記載の実施例を以下に説明する。

【0025】

まず、組成が重量%で8.6wt%Si-5.9wt%Al-bal.Feであり、平均粒径が24μmの軟磁性合金粉末に、シランカップリング剤とブチラル樹脂を添加し混練・分散し、乾燥させて、平均粒径100μmから200μm程度の粒子を作製した。次にこの粒子を15ton/cm<sup>2</sup>にて加圧成形を行い、その後窒素雰囲気において（表2）記載の温度条件にて2段階の熱処理を行った。前記シランカップリング剤と軟磁性合金粉末の重量比は0.8：100であり、前記シリコン樹脂と軟磁性合金粉末の重量比は1.2：100とした。

【0026】

得られたサンプルについて直流重畳特性、コア損失について評価を行った。直流重畳特性については、印加磁場500e、周波数120kHzにおける透磁率をLCRメータにて測定し評価した。コア損失は交流B-Hカーブ測定機を用いて測定周波数120kHz、測定磁束密度0.1Tで測定を行った。得られた結果を（表2）に示す。

【0027】

10

20

30

【表 2】

試料No	熱処理条件			透磁率 (50Oe)	コア損失 (kW/m <sup>3</sup> )	
	温度/°C	時間/min	冷却速度/°C・min <sup>-1</sup>			
12	900	30	5	52	580	実施例
13	1020	25	2.5	70	220	実施例
14	1000	20	3	65	450	実施例
15	1100	10	5	68	350	実施例
16	900	35	0.5	66	390	実施例
17	1000	15	2	72	170	実施例
18	1200	25	6	31	4300	比較例
19	950	30	15	40	1040	比較例

10

20

30

## 【0028】

(表2)より本発明の請求項5に記載の発明において第一熱処理の温度範囲が900～1100であり、かつ第二熱処理では850から650へと、5/minの冷却速度で冷却しながら処理をする場合に、高い透磁率を達成できることがわかる。また、結晶歪が少ないと保磁力が低下し、ヒステリシス損失を減少させることができる。

40

## 【0029】

実施の形態1で示したような2段階の熱処理では、第一熱処理の後温度を下げる必要があり、この時の冷却速度は透磁率に大きく影響する。すなわち、650～850の範囲では、不規則相の規則化が進むため、冷却速度を5/min以下に制御すれば金属磁性粉末を規則化度合いの高い状態とすることが可能である。また冷却過程において上記温度範囲外の冷却速度を5/min以下に制御する必要はなく、熱処理時間の短縮によるコストダウンにつながる。

## 【0030】

50

## (実施の形態3)

本発明における複合磁性体として外径15mm、内径10mm、高さ3mm程度のトロイダルコアを例にあげ、請求項6に記載の実施例を以下に説明する。まず、組成が重量%で9.9wt%Si-4.9wt%Al-bal.Feであり、平均粒径が(表3)記載の軟磁性合金粉末に、チタンカップリング剤とアクリル樹脂を添加し混練・分散し乾燥させて、平均粒径100 $\mu$ mから200 $\mu$ m程度の粒子を作製した。次にこの粒子を14ton/cm<sup>2</sup>にて加圧成形を行い、その後アルゴン雰囲気において970 $^{\circ}$ Cで一時間第一熱処理をし、その後800 $^{\circ}$ Cで第二熱処理を行った。前記チタンカップリング剤と軟磁性合金粉末の重量比は0.9:100であり、前記アクリル樹脂と軟磁性合金粉末の重量比は0.9:100とした。

10

## 【0031】

得られたサンプルについて直流重畳特性、コア損失について評価を行った。直流重畳特性については、印加磁場400e、周波数120kHzにおける透磁率をLCRメータにて測定し評価した。コア損失は交流B-Hカーブ測定機を用いて測定周波数110kHz、測定磁束密度0.1Tで測定を行った。得られた結果を(表3)に示す。

## 【0032】

## 【表3】

試料No	平均粒径( $\mu$ m)	透磁率(400e)	コア損失(kW $\cdot$ m <sup>3</sup> )	
20	0.5	37	610	比較例
21	1	51	420	実施例
22	3	62	290	実施例
23	20	75	190	実施例
24	50	81	300	実施例
25	60	90	440	実施例
26	100	109	710	実施例
27	120	118	1090	比較例

20

## 【0033】

(表3)より本発明の請求項6記載の発明において、Fe-Al-Si合金粉末は、平均粒径が1 $\mu$ mから100 $\mu$ mのものが好ましいことがわかる。これは粒径が1 $\mu$ mより小さいと成形密度が低くなり、透磁率が低下してしまうからである。また、100 $\mu$ mより大きいと透磁率は高くなるが、高周波での過電流損失が大きくなってしまいうため好ましくない。実際には、透磁率と損失との兼ね合いを考慮し、Fe-Al-Si合金粉末としては3~60 $\mu$ mのものがより好ましい。

30

## 【産業上の利用可能性】

## 【0034】

本発明にかかる複合磁性体の製造方法は、高い透磁率を達成できるため、特にトランスコア、チョークコイル、あるいは磁気ヘッド等に用いられる磁性材料として有用である。

40

---

 フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I	
<b>B 2 2 F</b>	<b>1/00</b>	<b>(2006.01)</b>	B 2 2 F 1/00 Y
<b>H 0 1 F</b>	<b>41/02</b>	<b>(2006.01)</b>	H 0 1 F 41/02 D

(56)参考文献 特開 2 0 0 3 - 2 4 3 2 1 5 ( J P , A )  
 特開 2 0 0 1 - 3 0 7 9 1 4 ( J P , A )  
 特開平 0 7 - 2 1 1 5 3 2 ( J P , A )

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

B 2 2 F	1 / 0 0 -	8 / 0 0
C 2 2 C	1 / 0 4 ,	1 / 0 5
C 2 2 C 3 3	/ 0 2	
H 0 1 F 4 1	/ 0 2	