

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6865860号
(P6865860)

(45) 発行日 令和3年4月28日(2021.4.28)

(24) 登録日 令和3年4月8日(2021.4.8)

(51) Int.Cl.	F I					
C 2 2 C 38/00 (2006.01)	C 2 2 C	38/00	3 0 3 S			
B 2 2 F 1/00 (2006.01)	B 2 2 F	1/00	Y			
H O 1 F 1/153 (2006.01)	H O 1 F	1/153	1 0 8			
B 2 2 F 3/00 (2021.01)	H O 1 F	1/153	1 3 3			
	H O 1 F	1/153	1 5 8			
請求項の数 9 (全 43 頁) 最終頁に続く						

(21) 出願番号	特願2019-568414 (P2019-568414)	(73) 特許権者	000001258
(86) (22) 出願日	令和1年7月25日(2019.7.25)		J F E スチール株式会社
(86) 国際出願番号	PCT/JP2019/029302		東京都千代田区内幸町二丁目2番3号
(87) 国際公開番号	W02020/026949	(73) 特許権者	000134257
(87) 国際公開日	令和2年2月6日(2020.2.6)		株式会社トーキン
審査請求日	令和1年12月11日(2019.12.11)		宮城県仙台市太白区郡山6丁目7番1号
(31) 優先権主張番号	特願2018-144278 (P2018-144278)	(74) 代理人	100147485
(32) 優先日	平成30年7月31日(2018.7.31)		弁理士 杉村 憲司
(33) 優先権主張国・地域又は機関	日本国(JP)	(74) 代理人	230118913
			弁護士 杉村 光嗣
		(74) 代理人	100165696
			弁理士 川原 敬祐
		(74) 代理人	100195785
			弁理士 市枝 信之
最終頁に続く			

(54) 【発明の名称】 軟磁性粉末、Fe基ナノ結晶合金粉末、磁性部品、および圧粉磁芯

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

不可避不純物を除き組成式 $Fe_a Si_b B_c P_d Cu_e M_f$ で表される組成を有する軟磁性粉末であって、

前記組成式中のMは、Nb、Mo、Zr、Ta、W、Hf、Ti、V、Cr、Mn、C、Al、S、O、およびNからなる群から選ばれる少なくとも1つの元素であり、

79at% $a < 84.5at\%$ 、

0at% $b < 6at\%$ 、

0at% $c < 10at\%$ 、

4at% $d < 11at\%$ 、

0.2at% $e < 0.53at\%$ 、

0at% $f < 4at\%$ 、かつ

$a + b + c + d + e + f = 100at\%$ であり、

粒径が1mm以下であり、かつ、

結晶化度が体積比で10%以下であり、残部が非晶質相であり、

前記軟磁性粉末を構成する粒子の円形度の中央値が0.40以上、1.0以下、

Rosin-Rammleer式における均等数nが0.30以上、30以下である、軟磁性粉末。

【請求項2】

請求項1に記載の軟磁性粉末であって、

e < 0.4 at % である軟磁性粉末。

【請求項 3】

請求項 1 または 2 に記載の軟磁性粉末であって、

b 2 at % である軟磁性粉末。

【請求項 4】

請求項 1 ~ 3 のいずれか一項に記載の軟磁性粉末であって、

e 0.3 at % である軟磁性粉末。

【請求項 5】

請求項 4 に記載の軟磁性粉末であって、

e 0.35 at % である軟磁性粉末。

10

【請求項 6】

請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載の軟磁性粉末であって、

前記結晶化度が体積比で 3 % 以下である軟磁性粉末。

【請求項 7】

請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載の組成を有し、

結晶化度が体積比で 30 % より高く、かつ、

Fe 結晶子径が 50 nm 以下、

断面における 700 nm × 700 nm の領域において、結晶相に接する楕円形状の非晶質相の短径の最大値が 60 nm 以下である、Fe 基ナノ結晶合金粉末。

【請求項 8】

20

請求項 7 に記載の Fe 基ナノ結晶合金粉末を備える磁性部品。

【請求項 9】

請求項 7 に記載の Fe 基ナノ結晶合金粉末を備える圧粉磁芯。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、軟磁性粉末に関し、特に、トランス、インダクタ、モータの磁芯などの磁性部品を製造する際の出発原料として好適に用いることができる軟磁性粉末に関する。また、本発明は、Fe 基ナノ結晶合金粉末、磁性部品、および圧粉磁芯に関する。

【背景技術】

30

【0002】

絶縁被覆された軟磁性粉末を加圧成形して製造される圧粉磁芯は、電磁鋼板を積層して製造されるコア材に比べて形状の自由度が高く、また、高周波領域での磁気特性に優れるなど、多くの利点を有している。そのため、圧粉磁芯は、トランス、インダクタ、モータのコアなど、様々な用途で用いられている。

【0003】

そして、圧粉磁芯の性能向上のため、圧粉磁芯の製造に用いられる磁性粉末にはさらなる磁気特性の向上が求められている。

【0004】

例えば、電気自動車の技術分野においては、1回の充電あたりの航続距離を向上させるため、さらに優れた磁気特性（低コアロス、高飽和磁束密度）を有する圧粉磁芯が求められている。

40

【0005】

そして、このような要求に応えるため、圧粉磁芯の製造に使用される軟磁性粉末に関する様々な技術が提案されている。

【0006】

例えば、特許文献 1 では、組成式 $Fe_a B_b Si_c P_x C_y Cu_z$ で表される合金組成物が提案されている。前記合金組成物は、連続薄帯形状または粉末形状を有しており、粉末形状を有する前記合金組成物（軟磁性粉末）は、例えば、アトマイズ法によって製造することができ、アモルファス相（非晶質相）を主相としている。この軟磁性粉末に所定の

50

条件での熱処理を施すことにより、体心立方構造を有するFe (b c c F e) のナノ結晶が析出し、その結果、Fe基ナノ結晶合金粉末が得られる。

【0007】

また、特許文献2では、端面が丸みを帯びた形状を有する第1の軟磁性粉末と、前記第1の軟磁性粉末より平均粒径が小さい第2の軟磁性粉末とを含む複合磁性粉末を用いて圧粉磁芯を製造することが提案されている。さらに特許文献2では、前記第1の軟磁性粉末および第2の軟磁性粉末の平均粒径や円形度を特定の範囲に制御することも提案されている。丸みを帯びた形状を有する粉末を用いることにより、粒子のエッジによって絶縁樹脂の被膜が破られ、絶縁性能が低下することを防止できる。また、端部が丸みを帯びた形状をしているため、粒子間の空隙が広がり、その空隙に小さい粒径の粒子が入り込むことで圧粉磁芯の密度を高めることができる。

10

【先行技術文献】

【特許文献】

【0008】

【特許文献1】特開2010-070852号公報

【特許文献2】特開2014-138134号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

特許文献1で提案されている技術によれば、特定の組成を有する合金組成物を用いることにより、高い飽和磁束密度と高い透磁率を有するFe基ナノ結晶合金粉末を得ることができる。そして、特許文献1によれば、前記Fe基ナノ結晶合金粉末を用いることにより、優れた磁気特性を有する圧粉磁芯を製造することができる。

20

【0010】

しかし、依然としてその磁気特性は十分とはいえず、さらなるコアロスの低減と磁束密度の向上が求められている。

【0011】

また、特許文献2で提案されているように複数種類の軟磁性粉末を混合して用いる技術では、粒径や形状が異なる複数の粉末を製造し、制御された比率で混合する必要がある。そのため、生産性が低いことに加え、製造コストがかさむという問題があった。

30

【0012】

さらに、粒径の異なる粉末を混合した混合粉では、粒径の近い粒子同士で偏析する場合がある。偏析が生じた混合粉を使用した場合には大粒径の粒子間に小粒径の粒子が十分入り込まないため、該混合粉を用いて作製した圧粉磁芯の密度は、粒径が均一な軟磁性粉末から作製した圧粉磁芯よりも低くなり、かえって磁気特性が劣るという課題があった。

【0013】

本発明は、上述した課題を解決することを目的としたものであり、優れた磁気特性（低コアロス、高飽和磁束密度）を有する圧粉磁芯を製造することができる軟磁性粉末およびFe基ナノ結晶合金粉末を提供することを目的とする。さらに本発明は、優れた磁気特性（低コアロス、高飽和磁束密度）を有する磁性部品、特に圧粉磁芯を提供することを目的とする。

40

【課題を解決するための手段】

【0014】

発明者らは、上記課題を解決するために、鋭意検討を行った結果、下記(1)~(3)の知見を得た。

【0015】

(1)さらなる磁気特性の向上のためには、特許文献1のような組成の制御のみでは不十分であり、粒子形状や粒度分布が圧粉体の密度に及ぼす影響を考慮する必要がある。

【0016】

(2)また、圧粉磁芯の成形後強度や磁気特性には軟磁性粉末全体の粒度分布や円形度が

50

大きく影響を及ぼす。よって、さらなる磁気特性の向上のためには、特許文献2のように混合粉に含まれる個々の粉末の粒径や円形度ではなく、軟磁性粉末全体の特性を表す指標を制御すべきである。

【0017】

(3) 軟磁性粉末全体の特性を表す指標として、軟磁性粉末を構成する粒子の円形度の中央値を特定の範囲に制御することにより、圧粉磁芯の磁気特性を効果的に向上させることができる。

【0018】

本発明は、上記知見に立脚するものであり、その要旨構成は次のとおりである。

【0019】

1. 不可避不純物を除き組成式 $F e_a S i_b B_c P_d C u_e M_f$ で表される組成を有する軟磁性粉末であって、

前記組成式中のMは、Nb、Mo、Zr、Ta、W、Hf、Ti、V、Cr、Mn、C、Al、S、O、およびNからなる群から選ばれる少なくとも1つの元素であり、

$79 \text{ at} \% < a < 84.5 \text{ at} \%、$

$0 \text{ at} \% < b < 6 \text{ at} \%、$

$0 \text{ at} \% < c < 10 \text{ at} \%、$

$4 \text{ at} \% < d < 11 \text{ at} \%、$

$0.2 \text{ at} \% < e < 0.53 \text{ at} \%、$

$0 \text{ at} \% < f < 4 \text{ at} \%、$ かつ

$a + b + c + d + e + f = 100 \text{ at} \%$ であり、

粒径が1mm以下であり、かつ、

前記軟磁性粉末を構成する粒子の円形度の中央値が0.4以上、1.0以下である、軟磁性粉末。

【0020】

2. 上記1に記載の軟磁性粉末であって、

$e < 0.4 \text{ at} \%$ である軟磁性粉末。

【0021】

3. 上記1または2に記載の軟磁性粉末であって、

Rosin-Rammler式における均等数nが0.3以上、30以下である軟磁性粉末。

【0022】

4. 上記1～3のいずれか一項に記載の軟磁性粉末であって、

$b < 2 \text{ at} \%$ である軟磁性粉末。

【0023】

5. 上記1～4のいずれか一項に記載の軟磁性粉末であって、

$e < 0.3 \text{ at} \%$ である軟磁性粉末。

【0024】

6. 上記5に記載の軟磁性粉末であって、

$e < 0.35 \text{ at} \%$ である軟磁性粉末。

【0025】

7. 上記1～6のいずれか一項に記載の軟磁性粉末であって、

結晶化度が体積比で10%以下であり、

残部が非晶質相である軟磁性粉末。

【0026】

8. 上記7に記載の軟磁性粉末であって、

前記結晶化度が体積比で3%以下である軟磁性粉末。

【0027】

9. 上記1、2、4、5、および6のいずれか一項に記載の組成を有し、

結晶化度が体積比で10%より高く、かつ、

10

20

30

40

50

Fe結晶子径が50nm以下である、Fe基ナノ結晶合金粉末。

【0028】

10. 上記9に記載のFe基ナノ結晶合金粉末であって、結晶化度が体積比で30%より高く、かつ、断面における700nm×700nmの領域における非晶質相に含まれる楕円の短径の最大値が60nm以下である、Fe基ナノ結晶合金粉末。

【0029】

11. 上記9または10に記載のFe基ナノ結晶合金粉末を備える磁性部品。

【0030】

12. 上記9または10に記載のFe基ナノ結晶合金粉末を備える圧粉磁芯。

10

【発明の効果】

【0031】

本発明の軟磁性粉末を出発原料として用いることにより、良好な磁気特性を有するFe基ナノ結晶合金粉末を製造することができる。そして、前記Fe基ナノ結晶合金粉末を原料として用いることにより、優れた磁気特性（低コアロス、高飽和磁束密度）を有する圧粉磁芯を製造することができる。

【図面の簡単な説明】

【0032】

【図1】透過型電子顕微鏡（TEM）で測定した700×700nmの領域における非晶質相に含まれる楕円を示す模式図である。

20

【発明を実施するための形態】

【0033】

以下、本発明の実施形態について説明する。なお、以下の説明は、本発明の好適な一実施態様を示すものであり、本発明は、以下の説明によって何ら限定されるものではない。

【0034】

[軟磁性粉末]

本発明の一実施形態における軟磁性粉末は、不可避不純物を除き組成式 $Fe_aSi_bB_cPdCu_eM_f$ で表される組成を有する。ここで、前記組成式中のMは、Nb、Mo、Zr、Ta、W、Hf、Ti、V、Cr、Mn、C、Al、S、O、およびNからなる群から選ばれる少なくとも1つの元素であり、前記組成式中のa～fは以下の条件を満たす

30

$$\begin{aligned} 79 \text{ at} \% & \leq a \leq 84.5 \text{ at} \% \\ 0 \text{ at} \% & \leq b < 6 \text{ at} \% \\ 0 \text{ at} \% & < c \leq 10 \text{ at} \% \\ 4 \text{ at} \% & < d \leq 11 \text{ at} \% \\ 0.2 \text{ at} \% & \leq e \leq 0.53 \text{ at} \% \\ 0 \text{ at} \% & \leq f \leq 4 \text{ at} \% \\ a + b + c + d + e + f & = 100 \text{ at} \% \end{aligned}$$

【0035】

上記軟磁性粉末は、Fe基ナノ結晶合金粉末を作製する際の出発原料として使用可能である。本実施の形態の軟磁性粉末から作製されたFe基ナノ結晶合金粉末は、様々な磁性部品や圧粉磁芯を作製するための材料として使用可能である。加えて、本実施の形態の軟磁性粉末は、様々な磁性部品や圧粉磁芯を作製するための直接的な材料としても使用可能である。

40

【0036】

(組成)

上記軟磁性粉末の組成を上記の範囲に限定する理由について、以下、説明する。

【0037】

・Fe(79at% ≤ a ≤ 84.5at%)

上記軟磁性粉末において、Feは主元素であり、磁性を担う必須元素である。該軟磁性

50

粉末から製造されるFe基ナノ結晶合金粉末の飽和磁束密度(B_s)の向上と、原料価格低減のためには、軟磁性粉末に含まれるFeの割合が多いことが基本的には好ましい。そこで、優れた飽和磁束密度 B_s を得るために、上記組成式中のaで表されるFeの割合を79at%以上とする。また、Feの割合を79at%以上とすることにより、後述するTを大きくすることができる。飽和磁束密度をさらに向上させるという観点からは、Feの割合を80at%以上とすることが好ましい。

【0038】

一方、10%以下の結晶化度を有する軟磁性粉末を得るためには、Feの割合を84.5at%以下とする必要がある。結晶化度を3%以下として、圧粉磁芯のコアロスさらには低減するという観点からは、Feの割合を83.5at%以下とすることが好ましい。

10

【0039】

・Si(0at% < b < 6at%)

Siは非晶質相の形成を担う元素であり、ナノ結晶化にあたってはナノ結晶の安定化に寄与する。軟磁性粉末の結晶化度を低下させ、圧粉磁芯のコアロスを低減するためには、上記組成式中のbで表されるSiの割合を、6at%未満とする必要がある。一方、Siの割合は0at%以上であればよいが、Fe基ナノ結晶合金粉末の飽和磁束密度をさらに向上させるという観点からは、2at%以上とすることが好ましい。また、Tを大きくするという観点からは、3at%以上とすることがより好ましい。

【0040】

・B(0at% < c < 10at%)

上記軟磁性粉末において、Bは非晶質相の形成を担う必須元素である。軟磁性粉末の結晶化度を10%以下に抑え、圧粉磁芯のコアロスを低減するためにはBの添加が必須である。よって、上記組成式中のcで表されるBの割合を0at%超とする。Bの割合は、3at%以上とすることが好ましく、5at%以上とすることがより好ましい。一方、Bの割合が10at%超の場合、Fe-B化合物が析出し、圧粉磁芯のコアロスが増大する。そのため、Bの割合は10at%以下にする必要がある。軟磁性粉末の結晶化度を3%以下に抑えることで圧粉磁芯のコアロスを更に低減するという観点からは、Bの割合を8.5at%以下とすることが好ましい。

20

【0041】

・P(4at% < d < 11at%)

上記軟磁性粉末において、Pは非晶質相の形成を担う必須元素である。上記組成式中のdで表されるPの割合が4at%よりも大きい場合、軟磁性粉末を作製する際に使用される合金溶湯の粘性が低下する。そしてその結果、圧粉磁芯の磁気特性を向上させるという観点から好ましい球形状の軟磁性粉を作製しやすくなる。加えて、Pの割合が4at%よりも大きい場合、融点が低下するため非晶質形成能を向上させることができ、Fe基ナノ結晶合金粉末を作製しやすくなる。これらの効果が10%以下の結晶化度を有する軟磁性粉末の作製に寄与する。そのため、Pの割合を4at%超とする。また、耐食性を向上させるという観点からは、Pの割合を5.5at%以上とすることが好ましい。さらに、Fe基ナノ結晶合金粉末におけるナノ結晶をさらに微細化して、圧粉磁芯のコアロスを一層低減するという観点からは、Pの割合を6at%以上とすることがより好ましい。

30

【0042】

一方、所望の飽和磁束密度を有するFe基ナノ結晶合金粉末を得るため、Pの割合は11at%以下とする必要がある。また、飽和磁束密度をさらに向上させるという観点からは、Pの割合を10at%以下とすることが好ましく、8at%以下とすることがより好ましい。

【0043】

・Cu(0.2at% < e < 0.53at%)

上記軟磁性粉末において、Cuはナノ結晶化に寄与する必須元素である。上記組成式中のeで表されるCuの割合を0.2at%以上、0.53at%以下とすることで、軟磁性粉末の非晶質形成能を向上させることができるとともに、加熱処理における昇温速度が

40

50

遅くてもFe基ナノ結晶合金粉末におけるナノ結晶を均一に微細化することができる。昇温速度が遅い場合は軟磁性粉末において温度分布のむらが出来ず、全体的に均一な温度となるため、均一なFe基ナノ結晶が得られる。そのため、大型の磁性部品を製造する場合であっても優れた磁気特性が得られる。

【0044】

また、Fe基ナノ結晶合金粉末におけるナノ結晶の粗大化を防止して、圧粉磁芯において所望のコアロスを得るという観点からも、Cuの割合は0.2at%以上とする必要がある。一方、Cuの割合が0.53at%より多い場合には、Feの核生成が起りやすくなるため、結晶化度が10%より高くなる。そのため、結晶化度を10%以下に抑えるという観点からも、Cuの割合は0.53at%以下とする必要がある。

10

【0045】

Fe基ナノ結晶合金粉末におけるナノ結晶をさらに微細化して、圧粉磁芯のコアロスを一層低減するという観点からは、Cuの割合を0.4at%未満とすることが好ましい。同様の観点から、Cuの割合は0.3at%以上とすることが好ましい。また、ナノ結晶の析出量をさらに増加させ、Fe基ナノ結晶合金粉末の飽和磁束密度を一層向上させるという観点からは、Cuの割合を0.35at%以上とすることがより好ましい。

【0046】

・M(0at% f 4at%)

上記軟磁性粉末は、さらに0~4at%のMを含有する。ここで前記Mは、Nb、Mo、Zr、Ta、W、Hf、Ti、V、Cr、Mn、C、Al、S、O、およびNからなる群から選ばれる少なくとも1つの元素を表す。上記組成式におけるfで表されるMの合計割合を4at%以下とすることで、Fe基ナノ結晶合金粉末における非晶質形成能および耐食性を向上させ、さらに、50nm未満の粒径のナノ結晶の析出が抑制可能である。また、Mの割合が4at%以下であれば、Mの過剰添加に起因する飽和磁束密度の低下を防止することができる。

20

【0047】

(円形度)

本実施形態の軟磁性粉末においては、該軟磁性粉末を構成する粒子の円形度の中央値を0.4以上、1.0以下とする。通常、圧粉磁芯は絶縁被覆された軟磁性粉末を加圧成形して製造される。その際、粒子の形状が過度にいびつであると粒子表面の絶縁被覆が破れ、その結果、圧粉磁芯の磁気特性が低下する。さらに、粒子の形状が過度にいびつであると圧粉磁芯の密度が低下し、その結果、磁気特性が悪化する。そのため、円形度の中央値を0.4以上とする。一方、円形度の上限は、その定義より1である。そのため、本実施形態では、円形度の中央値を1.0以下とする。なお、円形度の平均値は円形度が大きい粒子の値の影響が大きく受けるため、粉末全体の円形度を示す指標として適していない。したがって、本発明では円形度の中央値を用いる。

30

【0048】

ここで、軟磁性粉末を構成する粒子の円形度とその中央値は以下の方法で測定することができる。まず、対象の軟磁性粉末を顕微鏡で観察し、視野内に含まれる個々の粒子の投影面積A(m²)および周囲長さP(m)を求める。1つの粒子の円形度()は、当該粒子の投影面積Aおよび周囲長さPより、下記(1)式を用いて算出することができる。ここで円形度 は無次元数である。

40

$$= 4 A / P^2 \dots (1)$$

【0049】

得られた個々の粒子の円形度 を昇順に並べた際の、中央の値を円形度の中央値(50)とする。なお、より具体的には、実施例に記載した方法で円形度の中央値を求めることができる。

【0050】

(粒径)

上記軟磁性粉末を構成する粒子の粒径は、結晶化度を低くするため1mm以下とする。

50

前記粒径は200 μm以下とすることが好ましい。なお、ここで粒径が1 mm以下であるとは、軟磁性粉末に含まれる全ての粒子の粒径が1 mm以下であること、すなわち、軟磁性粉末が粒径1 mm超の粒子を含まないことを意味するものとする。前記粒径は、レーザー粒度分布計によって測定することができる。

【0051】

(均等数 n)

軟磁性粉末の粒度分布を狭くすることにより、粒度偏析を抑制し、圧粉磁芯の密度をさらに向上させることができる。そしてその結果、圧粉磁芯の磁気特性が一層向上する。そのため、Rosin-Rammler式における均等数 n を0.3以上とすることが好ましい。均等数 n は、粒度分布の広さを表す指標であり、均等数 n が大きいほど粒度分布が狭い、つまり粒径が均一であることを意味する。一方、n が30超の場合、粒径が過度に均一になるため、粗大粒子間の隙間に入る微細粒子の数が不足し、空隙率が上昇して圧粉磁芯の密度の低下につながる。そのため、さらに磁気特性を向上させるという観点からは、Rosin-Rammler式における均等数 n を30以下とすることが好ましい。

10

【0052】

前記均等数 n は、以下の方法で求めることができる。Rosin-Rammler式は、粉体の粒度分布を表す式の1つであり、下記(2)式で表される。

$$R = 100 \exp \{ - (d / c)^n \} \dots (2)$$

【0053】

上記(2)式中の記号は、それぞれ次の意味である。

20

d (m) : 粒径

R (%) : 粒径 d 以上の粒子の体積割合

c (m) : R = 36.8%に相当する粒径

n (-) : 均等数

【0054】

上記(2)式を、自然対数を用いて変形すると、下記(3)式となる。したがって、X軸にln d、Y軸にln{ln(100/R)}の値をとってプロットして得られる直線の傾きが均等数 n となる。

$$\ln\{\ln(100/R)\} = n \times \ln d - n \times \ln c \dots (3)$$

【0055】

30

そこで、レーザー粒度分布計を用いて測定した実際の軟磁性粉末の粒度分布を、上記(3)式を用いて直線近似することにより、均等数 n を求めることができる。

【0056】

なお、直線近似の相関係数 r が、一般的に強い相関があるとされる0.7以上の時のみ作製した粉末粒子においてRosin-Rammlerの式が成立するとし、その傾きを均等数として適用する。また、均等数の精度確保のため、粉末において測定された粒径の上限と下限において10以上の粒径範囲に分割して各粒径範囲における体積割合をレーザー粒度分布計で測定し、Rosin-Rammlerの式に適用するものとする。

【0057】

均等数 n が0.3以上、30以下である軟磁性粉末は、例えば、水アトマイズ法の場合には、溶鋼に衝突させる水の水圧や水/溶鋼の流量比、溶鋼注入速度を制御することで製造することができる。

40

【0058】

(結晶化度)

上記軟磁性粉末の結晶化度は、体積比で10%以下とすることが好ましい。以下、その理由について説明する。

【0059】

一般的に、非晶質相を主相とする軟磁性粉末を作製する際、溶湯の冷却過程における急冷不足や、粉末組成によって決まる非晶質形成能の不足、使用原料中に含まれる不純物の影響などにより、Fe(-Si)やFe-B、Fe-Pからなる化合物相の微結晶(初

50

期析出物)が析出する場合がある。

【0060】

前記初期析出物は、Fe基ナノ結晶合金粉末の磁気特性を低下させる一因になる。具体的には、初期析出物に起因して、Fe基ナノ結晶合金粉末中に50nmを超える粒径を有するナノ結晶が析出する場合がある。50nmを超える粒径のナノ結晶は、少量析出しただけで磁壁の移動を阻害し、Fe基ナノ結晶合金粉末の磁気特性を劣化させる。

【0061】

また、析出した化合物相は軟磁気特性に劣るため、その存在自体によっても粉末の磁気特性を著しく劣化させる。

【0062】

そのため、一般的には、軟磁性粉末に対する初期析出物の体積比として定義される初期結晶化度(以下、単に「結晶化度」という。)を可能な限り低くして、実質的に非晶質相のみからなる軟磁性粉末を作製することが望ましいと考えられている。

【0063】

しかし、結晶化度が極めて低い軟磁性粉末を得ようとする、高価な原料が必要になることに加え、アトマイズ後の分級によって大粒径の粉末を除外するなどの複雑な工程が必要になる。そしてその結果、軟磁性粉末の製造コストが増加する。

【0064】

ここで、本発明の軟磁性粉末は上述した組成式で表される組成を有するものであるが、この組成は、結晶(初期析出物)の混在に起因して必要な均一性が得られないといった理由により、連続薄帯の形成には適していない。すなわち、上記組成の連続薄帯を作製した場合、体積比で10%以下の初期析出物が含まれるおそれがある。この場合、初期析出物に起因して、連続薄帯が部分的に脆弱化するおそれがある。さらに、ナノ結晶化後も均一な微細組織を得ることができず、また薄帯形状では僅かな初期析出物の介在により磁気特性が著しく劣化するおそれがある。

【0065】

一方、上述した問題は、連続薄帯に固有のものである。軟磁性粉末については、結晶化度が10%程度になっても使用上問題が生じ難い。一つに粉末や圧粉磁芯の形態では飽和近くまで励磁して使用することが少なく、また粉末が1つ1つ独立しているため特性の悪い粉末は励磁できず、全体として影響がほとんどなくなり、結晶化度が極めてゼロに近い軟磁性粉末から得られたFe基ナノ結晶合金粉末と比べても殆ど劣ることのない十分な磁気特性を有するFe基ナノ結晶合金粉末が得られる。

【0066】

本発明の軟磁性粉末は、上記所定の組成を有するため、結晶化度を10%以下に抑えることができる。結晶化度を10%以下に抑えることで、従来と同様な熱処理によって十分な磁気特性を有するFe基ナノ結晶合金粉末が得られる。即ち、結晶化度を極めてゼロに近づけるのではなく、10%以下という多少の結晶化度を許容することで、十分な磁気特性を有するFe基ナノ結晶合金粉末を、製造コストを増加させることなく製造することができる。より具体的には、本発明の軟磁性粉末は、一般的なアトマイズ装置を使用して、比較的安価な原料から安定的に製造することができる。また、原料の溶解温度等の製造条件を緩和できる。

【0067】

結晶化度は、より低い方が好ましい。例えば、軟磁性粉末は、体積比で3%以下の結晶化度とすることが好ましい。結晶化度を3%以下とするためには、 $a = 83.5 \text{ at } \%$ 、 $c = 8.5 \text{ at } \%$ 、かつ、 $d = 5.5 \text{ at } \%$ とすることが好ましい。

【0068】

結晶化度が3%以下である場合、圧粉磁芯を作製した際の成形密度がさらに向上する。結晶化度を3%とすることにより、結晶化に起因する材料の硬度上昇をさらに抑制することができる。そしてその結果、成形密度を一層向上させ、透磁率をさらに高めることができる。加えて、結晶化度が3%以下である場合、軟磁性粉末の外観を維持しやすい。具体

10

20

30

40

50

的には、結晶化度が高いと結晶部の粒界が脆弱であるため、アトマイズ後の軟磁性粉末が酸化によって変色するおそれがある。そこで、結晶化度を3%以下とすることにより、軟磁性粉末の変色を抑制し、外観を維持することができる。

【0069】

上記結晶化度および初期析出物の粒径は、X線回析(XRD: X-ray diffraction)による測定結果をWPPD法(Whole-powder-pattern decomposition method)によって解析することで算出できる。X線回析結果のピーク位置から、Fe(-Si)相、化合物相などの析出相を同定できる。

【0070】

上記結晶化度は軟磁性粉末全体における初期析出物全体の体積比であり、該粉末を構成する個々の粒子における結晶化度を指すものではない。したがって、例えば、軟磁性粉末の結晶化度が10%以下である場合でも、粉末全体としての結晶化度が10%以下であれば、該粉末中に非晶質単相の粒子が含まれることは許容される。

【0071】

(非晶質相)

上記軟磁性粉末は、上述したように結晶化度が体積比で10%以下であることが好ましい。その際、析出物以外の残部は、非晶質相であることが好ましい。そのような軟磁性粉末は、非晶質相が主相であるということができる。言い換えると、本発明の一実施形態における軟磁性粉末は、体積比で10%以下の析出物と、残部の非晶質相とからなることが好ましい。この軟磁性粉末に所定の熱処理条件による熱処理を施すことにより、bcc Fe(-Fe(-Si))のナノ結晶が析出し、優れた磁気特性を有するFe基ナノ結晶合金粉末が得られる。

【0072】

(軟磁性粉末の製造方法)

次に、本発明の一実施形態における上記軟磁性粉末の製造方法について説明する。なお、以下の説明は製造方法の一例を示すものであって、本発明は以下の説明に限定されるものではない。

【0073】

上記軟磁性粉末の製造には、特に限定されることなく様々な製造方法を用いることができる。例えば、上記軟磁性粉末は、アトマイズ法により製造することができる。前記アトマイズ法としては、水アトマイズ法およびガスアトマイズ法のいずれも使用できる。言い換えると、前記軟磁性粉末は、アトマイズ粉であってよく、前記アトマイズ粉は水アトマイズ粉およびガスアトマイズ粉の少なくとも一方であってよい。

【0074】

アトマイズ法により軟磁性粉末を製造する方法について、以下、説明する。まず、原料を準備する。次いで、前記原料を、所定の組成になるように秤量し、溶解して合金溶湯を作製する。このとき、本発明における軟磁性粉末の組成は、融点が低いため、溶解のための消費電力を削減できる。次に、前記合金溶湯をノズルから排出するとともに、高圧の水やガスを使用して合金溶滴に分断し、微細な軟磁性粉末を製造する。

【0075】

上述の粉末作製工程において、分断に使用するガスは、アルゴンや窒素などの不活性ガスであってもよい。また、冷却速度を向上させるため、分断直後の合金溶滴を冷却用の液体や固体に接触させて急冷してもよいし、合金溶滴を再分断して更に微細化してもよい。冷却用に液体を使用する場合、前記液体としては、例えば、水や油を使用してもよい。冷却用に固体を使用する場合、前記固体としては、例えば、回転銅ロールや回転アルミ板を使用してもよい。ただし、冷却用の液体や固体はこれらに限定されず、他の任意の材料を使用できる。

【0076】

上述の粉末作製工程において、作製条件を変えることにより、軟磁性粉末の粉末形状及び粒径を調整できる。本実施の形態によれば、合金溶湯の粘性が低いため、軟磁性粉末を

10

20

30

40

50

球形状に作製しやすい。

【0077】

上記製造過程において、非晶質相を主相とする軟磁性粉末中に初期析出物が析出する。初期析出物としてFe-BやFe-P等の化合物が析出すると、磁気特性が著しく劣化する。これに対して、本発明の軟磁性粉末では、Fe-BやFe-P等の化合物の析出が抑制されており、初期析出物は基本的にbccのFe(-Si)である。

【0078】

[Fe基ナノ結晶合金粉末]

本発明の一実施形態におけるFe基ナノ結晶合金粉末は、上記組成を有し、結晶化度が体積比で10%より高く、かつ、Fe結晶子径が50nm以下である。

10

【0079】

(結晶化度)

Fe基ナノ結晶合金粉末の結晶化度が10%以下であると、圧粉磁芯のコアロスが増大する。そのため、Fe基ナノ結晶合金粉末の結晶化度は、体積比で10%超とする。前記結晶化度を、体積比で10%超とすることにより、圧粉磁芯のコアロスを低減することができる。前記結晶化度は、体積比で30%超とすることがより好ましい。結晶化度を30%とすることにより、圧粉磁芯のコアロスをさらに低減することができる。

【0080】

なお、Fe基ナノ結晶合金粉末の結晶化度は、上述した軟磁性粉末の結晶化度と同様の方法で測定することができる。

20

【0081】

(Fe結晶子径)

Fe基ナノ結晶合金粉末のFe結晶子径が50nmより大きいと、結晶磁気異方性が大きくなり軟磁気特性が劣化する。そのため、Fe基ナノ結晶合金粉末のFe結晶子径を50nm以下とする。Fe基ナノ結晶合金粉末のFe結晶子径を50nm以下とすることにより、軟磁気特性を向上させることができる。また、前記Fe結晶子径は40nm以下とすることが好ましい。前記Fe結晶子径を40nm以下とすることにより、軟磁気特性をさらに向上させることができる。前記Fe結晶子径は、XRDにより測定できる。

【0082】

(非晶質相に含まれる楕円の短径)

Fe基ナノ結晶合金粉末の断面における700nm×700nmの領域における非晶質相に含まれる楕円の短径の最大値は60nm以下とすることが好ましい。前記楕円の短径の最大値は、Fe基ナノ結晶合金粉末に含まれる結晶間の距離の指標と見なすことができる。前記楕円の短径の最大値を60nm以下とすることにより、当該Fe基ナノ結晶合金粉末を用いて得られる圧粉磁芯のコアロスをさらに低減できる。

30

【0083】

前記楕円の短径は、透過型電子顕微鏡(TEM:Transmission electron microscope)でFe基ナノ結晶合金粉末を観察することにより求めることができる。TEMで観察される画像では非晶質相と結晶相が区別可能であり、図1に模式図を示すように、画像解析により、非晶質相に含まれる楕円(結晶相に接する楕円)の短径を求めることができる。そして、700×700nmの領域における短径の最大値を求める。なお、前記楕円の短径の値は楕円の取り方によって変化するが、楕円の短径の最大値は結晶相間の距離の最大値を超えない値となり、一意に定まる。そのため、本発明では前記楕円の短径の最大値を、Fe基ナノ結晶合金粉末に含まれる結晶間の距離の指標として用いる。

40

【0084】

TEMによる観察は以下の手順で行うことができる。まずエポキシ樹脂と粉末とを混合し、TEMの試料サイズに相当する金属パイプに充填して100前後の温度で重合・硬化させる。次に、ダイヤモンドカッターで厚さ1mm程度の円盤に切り出し、片側を鏡面研磨する。そして、鏡面研磨面と反対側の面を研磨紙で厚さ0.1mm程度まで研磨し、ディンブラーで凹みをつけて中心部厚さを40μm程度とする。次にイオンミリング装置

50

で研磨し、小孔を開けて、小孔近傍の薄い部分をTEM観察する。

【0085】

(Fe基ナノ結晶合金粉末の製造方法)

次に、本発明の一実施形態におけるFe基ナノ結晶合金粉末の製造方法について説明する。上記Fe基ナノ結晶合金粉末は、上述した軟磁性粉末より製造することができる。上記軟磁性粉末に所定の条件で熱処理を施すことにより、bccFe(Fe(-Si))のナノ結晶が析出し、これにより優れた磁気特性を有するFe基ナノ結晶合金粉末が得られる。そのようにして得られるFe基ナノ結晶合金粉末は、非晶質相およびbccFeのナノ結晶を含むFe基合金からなる粉末である。

【0086】

上記Fe基ナノ結晶合金粉末の製造においては、上記軟磁性粉末を、第1結晶化開始温度(T_{x1}) - 50K以上、第2結晶化開始温度(T_{x2})未満の最高到達温度(T_{max})まで、30/min以下の昇温速度で加熱することが好ましい。前記加熱条件について、以下、説明する。

【0087】

上記軟磁性粉末をArやN₂ガス雰囲気のような不活性雰囲気中で熱処理すると、結晶化が2回以上確認できる。最初に結晶化が開始する温度を第1結晶化開始温度(T_{x1})といい、2回目の結晶化が開始する温度を第2結晶化開始温度(T_{x2})という。また、第1結晶化開始温度(T_{x1})と第2結晶化開始温度(T_{x2})の間の温度差($T_{x2} - T_{x1}$)を T と定義する。

【0088】

第1結晶化開始温度(T_{x1})は、bccFeのナノ結晶析出の発熱ピークであり、第2結晶化開始温度(T_{x2})は、FeBやFeP等の化合物析出の発熱ピークである。これら結晶化温度は、例えば、示差走査熱量分析(DSC)装置を使用して、実際の結晶化における昇温速度条件で熱分析を行うことで評価可能である。

【0089】

T が大きい場合、所定の熱処理条件における熱処理が容易になる。このため、熱処理によってbccFeのナノ結晶のみを析出させて、さらに良好な磁気特性のFe基ナノ結晶合金粉末を得ることができる。即ち、 T を大きくすることで、Fe基ナノ結晶合金粉末におけるbccFeのナノ結晶組織がより安定し、Fe基ナノ結晶合金粉末を備える圧粉磁芯のコアロスを一層低減することができる。

【0090】

上記加熱工程における最高到達温度(T_{max})を第2結晶化開始温度(T_{x2})未満とすることにより、加熱工程における化合物相の析出を防止することができる。前記熱処理は、550以下の温度下で行うことが好ましい。一方、アモルファスからFeをナノ結晶化させるためには、 T_{max} を第1結晶化開始温度(T_{x1}) - 50K以上とすることが好ましい。また、前記熱処理は、300以上の温度下で行うことが好ましい。

【0091】

また、上記加熱工程は、アルゴンや窒素などの不活性雰囲気中において行うことが好ましい。ただし、Fe基ナノ結晶合金粉末の表面に酸化層を形成して耐食性や絶縁性を向上させるため、前記加熱を部分的に酸化雰囲気中に行ってもよい。また、Fe基ナノ結晶合金粉末の表面状態を改善するため、前記加熱を部分的に還元雰囲気中に行ってもよい。

【0092】

前記加熱における昇温速度は、30/min以下とする。前記昇温速度を30/min以下とすることにより、Fe結晶粒成長の抑制および結晶化率が増加および T_{x1} との T_{x2} 温度差 T が大きくなり、保磁力 H_c 及び圧粉磁芯のコアロスが低下および磁気特性に悪影響を及ぼすFe-B合金やFe-P合金の生成を防止することができる。

【0093】

[磁性部品・圧粉磁芯]

本発明の一実施形態における磁性部品は、上記Fe基ナノ結晶合金粉末を備える磁性部

10

20

30

40

50

品である。また、本発明の他の実施形態における圧粉磁芯は、上記Fe基ナノ結晶合金粉末を備える圧粉磁芯である。すなわち、上記Fe基ナノ結晶合金粉末を成形することにより、磁性シートなどの磁性部品や、圧粉磁芯を製造できる。また、前記圧粉磁芯を使用して、トランス、インダクタ、モータや発電機などの磁性部品を作製できる。

【0094】

本発明のFe基ナノ結晶合金粉末は、高磁化のナノ結晶(bccFeのFe(-Si))を高い体積比で含んでいる。また、Fe(-Si)の微細化により、結晶磁気異方性が低い。また、非晶質相の正磁歪とFe(-Si)相の負磁歪の混相により、磁歪が低減される。このため、本実施の形態のFe基ナノ結晶合金粉末を使用することで、高い飽和磁束密度 B_s 及び低いコアロスをも有する磁気特性に優れた圧粉磁芯が作製できる。

10

【0095】

また、本発明の別の実施形態においては、Fe基ナノ結晶合金粉末に代えて、熱処理前の軟磁性粉末を使用して、磁性シートなどの磁性部品や、圧粉磁芯を製造することもできる。例えば、軟磁性粉末を所定の形状に成形した後に所定の熱処理条件による熱処理を施すことで、磁性部品や圧粉磁芯を作製できる。また、その圧粉磁芯を使用して、トランス、インダクタ、モータや発電機などの磁性部品を作製できる。以下、軟磁性粉末を使用した圧粉磁芯の磁芯作製方法の一例について説明する。

【0096】

磁芯作製工程において、まず、軟磁性粉末を、樹脂等の絶縁性が良好な結合剤と混合して造粒し、造粒粉を得る。結合剤として樹脂を使用する場合、例えば、シリコン、エポキシ、フェノール、メラミン、ポリウレタン、ポリイミド、ポリアミドイミドを使用してもよい。絶縁性及び結着性を向上させるために、樹脂に代えて、または、樹脂と共に、リン酸塩、ホウ酸塩、クロム酸塩、酸化物(シリカ、アルミナ、マグネシア等)、無機高分子(ポリシラン、ポリゲルマン、ポリスタナン、ポリシロキサン、ポリシルセスキオキサン、ポリシラザン、ポリボラジレン、ポリホスファゼンなど)などの材料を結合剤として使用してもよい。また、複数の結合剤を併用してもよく、異なる結合剤によって2層またはそれ以上の多層構造の被覆を形成してもよい。結合剤の量は、一般的には、0.1~10質量%程度が好ましく、絶縁性及び充填率を考慮すると、0.3~6質量%程度が好ましい。ただし、結合剤の量は、粉末粒径、適用周波数、用途等を考慮して適切に決定すればよい。

20

30

【0097】

磁芯作製工程において、次に、金型を使用して造粒粉を加圧成形して圧粉体を得る。その後、圧粉体に所定の熱処理条件による熱処理を施して、ナノ結晶化と結合材の硬化を同時に行い、圧粉磁芯を得る。上述した加圧成形は、一般的には、室温下で行えばよい。本実施の形態の軟磁性粉末から造粒粉を作製する際に耐熱性の高い樹脂や被覆を使用して、例えば550以下の温度範囲で加圧成形することにより、極めて高密度の圧粉磁芯を成形することもできる。

【0098】

磁芯作製工程において、造粒粉を加圧成形する際、充填性を向上させると共にナノ結晶化における発熱を抑制するため、上記軟磁性粉末よりも軟質であるFe、FeSi、FeSiCr、FeSiAl、FeNi、カルボニル鉄粉等の粉末(軟質粉末)を、前記造粒粉に混合してもよい。また、前記軟質粉末に代えて、または、上述の軟質粉末と共に、上記軟磁性粉末とは粒径の異なる任意の軟磁性粉末を混合してもよい。このとき、本発明の軟磁性粉末に対する、前記粒径の異なる軟磁性粉末の混合量は、50質量%以下であることが好ましい。

40

【0099】

上記圧粉磁芯は、上述した方法とは異なる製造方法によって作製してもよい。例えば、前述したように、本実施の形態によるFe基ナノ結晶合金粉末を使用して圧粉磁芯を作製してもよい。この場合、上述の磁芯作製工程と同様に造粒粉を作製すればよい。金型を使用して造粒粉を加圧成形することで、圧粉磁芯が作製できる。

50

【0100】

以上のように作製した本実施の形態の圧粉磁芯は、作製工程に係らず、本実施の形態のFe基ナノ結晶合金粉末を備えている。同様に、本実施の形態の磁性部品は、本実施の形態のFe基ナノ結晶合金粉末を備えている。

【実施例】

【0101】

次に、実施例に基づいて、本発明についてさらに具体的に説明する。しかし、本発明は下記の実施例によって制限を受けるものではなく、本発明の趣旨に適合し得る範囲内にて適宜変更することも可能であり、これらは何れも本発明の技術的範囲に含まれる。

【0102】

(第1の実施例)

組成が磁気特性に与える影響を評価するために、以下の実験を行った。

【0103】

・軟磁性粉末の作製と評価

まず、軟磁性粉末を製造するための原料として、工業純鉄、フェロシリコン、フェロリン、フェロボロン、フェロニオブ、フェロモリブデン、ジルコニウム、タンタル、タンゲステン、ハフニウム、チタン、フェロバナジウム、フェロクロム、フェロマンガン、フェロカーボン、フェロアルミ、硫化鉄、および電解銅を用意した。前記原料を、表1に示す組成となるように秤量し、アルゴン雰囲気中で高周波溶解によって溶解して合金溶湯とした。前記合金溶湯を水アトマイズ法によって処理し、軟磁性粉末(合金粉末)を作製した。

【0104】

次いで、得られた軟磁性粉末の円形度の中央値、該軟磁性粉末の結晶化度、および析出相(析出物)を評価した。

【0105】

円形度の中央値は、以下の手順で評価した。まず、対象となる軟磁性粉末を乾燥した後、粒子画像イメージング分析装置モフォロギG3(スペクトリス株式会社製)に装入した。前記モフォロギG3は、顕微鏡により粒子を撮像し、得られた画像を解析する機能を有する装置である。前記軟磁性粉末は、個々の粒子の形状が判別可能となるように、500kPaの空気によりガラス上に分散させた。次いで、ガラス上に分散させた前記軟磁性粉末をモフォロギG3付属の顕微鏡で観察し、視野に含まれる粒子の個数が6万個になるよう自動で倍率を調整した。その後、視野内に含まれる6万個の粒子について画像解析を行い、自動的に各粒子の円形度を算出した。得られた個々の粒子の円形度を昇順に並べた際の、中央の値を円形度の中央値(50)とした。得られた軟磁性粉末の円形度の中央値は、いずれも0.7以上、1.0以下であった。

【0106】

また、軟磁性粉末の結晶化度、および析出相(析出物)の評価は、先に述べたXRDを用いる方法によって実施した。結晶化度の測定値と、同定された析出物を表1に併記した。なお、表1を含めた各表の「析出物」欄における略号は、それぞれ下記の意味である。

- ・ Fe : bcc Feの結晶相
- ・ Com : Fe-B化合物およびFe-P化合物の少なくとも一方
- ・ amorphous : 非晶質相からなり、析出物を含まない

【0107】

さらに、得られた軟磁性粉末の粒度分布をレーザー粒度分布計により測定した。その結果、いずれの軟磁性粉末も粒径が1mm以下であった。すなわち、いずれの軟磁性粉末も粒径1mm超の粒子を含まなかった。

【0108】

・ Fe基ナノ結晶合金粉末の作製と評価

次に、得られた軟磁性粉末を出発材料として、Fe基ナノ結晶合金粉末を製造した。Fe基ナノ結晶合金粉末の製造は、電気炉を用いて該軟磁性粉末をアルゴン雰囲気中で熱処

10

20

30

40

50

理することによって行った。前記熱処理では、軟磁性粉末を表 2 に示す最高到達温度 (T_{max}) まで、昇温速度: $10 / \text{min}$ で加熱し、前記最高到達温度で 10 分間保持した。

【0109】

得られた Fe 基ナノ結晶合金粉末の飽和磁気モーメントを、振動試料型磁力計 (VSM: Vibrating Sample Magnetometer) を使用して測定し、測定した飽和磁気モーメントと密度から飽和磁束密度を算出した。得られた飽和磁束密度 B_s (T) の値を表 2 に併記した。

【0110】

・圧粉磁芯の作製と評価

さらに、上記軟磁性粉末 (熱処理前のもの) を用いて、以下の手順で圧粉磁芯を作製した。まず、前記軟磁性粉末を、 $2 \text{ mass } \%$ のシリコン樹脂を使用して造粒した。次いで、造粒後の粉末を、外径 13 mm 且つ内径 8 mm の金型を使用して $10 \text{ ton} / \text{cm}^2$ の成形圧力によって成形した。その後、電気炉を使用して熱処理を施し、圧粉磁芯を得た。前記熱処理は、上記 Fe 基ナノ結晶合金粉末の製造における熱処理と同じ条件で行った。

【0111】

得られた圧粉磁芯には、前記熱処理によって生成した Fe 基ナノ結晶合金が存在していた。前記 Fe 基ナノ結晶合金の Fe 結晶子径を、XRD によって測定した。また、交流 BH アナライザーを使用して、圧粉磁芯について $20 \text{ kHz} - 100 \text{ mT}$ でのコアロス測定した。得られた Fe 結晶子径とコアロスを表 2 に併記した。なお、コアロスの値が $100 \text{ kW} / \text{m}^3$ 以下を、 $100 \text{ kW} / \text{m}^3$ 超 $200 \text{ kW} / \text{m}^3$ 以下を、 $200 \text{ kW} / \text{m}^3$ 超を x で分類した。

【0112】

(第 2 ~ 第 6 の実施例)

さらに組成が磁気特性に与える影響を評価するために、表 3、5、7、9、および 11 に示した組成とした点以外は上記第 1 の実施例と同じ条件で軟磁性粉末を作製し、得られた軟磁性粉末の円形度の中央値、結晶化度、析出物、および粒径を評価した。得られた軟磁性粉末の円形度の中央値は、いずれも 0.7 以上、 1.0 以下であった。また、いずれの軟磁性粉末も粒径が 1 mm 以下であった。結晶化度の測定値と、同定された析出物を各表に併記した。

【0113】

さらに、表 3、5、7、9、および 11 に示した軟磁性粉末を用いて、上記第 1 の実施例と同様の方法で Fe 基ナノ結晶合金粉末および圧粉磁芯を作製し、評価を実施した。用いた熱処理条件と評価結果を表 4、6、8、10、および 12 に示す。

【0114】

なお、各表の対応関係は次のとおりであり、各実施例では主に括弧内に記載した成分の割合の影響を評価した。

第 1 の実施例: 表 1、2 (Fe)

第 2 の実施例: 表 3、4 (Si)

第 3 の実施例: 表 5、6 (B)

第 4 の実施例: 表 7、8 (P)

第 5 の実施例: 表 9、10 (Cu)

第 6 の実施例: 表 11、12 (M)

【0115】

表 2 に示した結果から分かるように、Fe の割合が $84.5 \text{ at } \%$ より高い比較例 3 と Fe の割合が $79 \text{ at } \%$ より低い比較例 4 では、圧粉磁芯のコアロスが大きい。また、比較例 4 では飽和磁束密度が低い。一方、実施例 7 ~ 12 の Fe 基ナノ結晶合金粉末は、 $79 \sim 84.5 \text{ at } \%$ の範囲の Fe を含んでおり、比較例 3、4 に比べて圧粉磁芯のコアロスが低い。また、実施例 7 ~ 12 の Fe 基ナノ結晶合金粉末は 1.65 T 以上の高い飽和

10

20

30

40

50

磁束密度を有している。

【0116】

以上の結果から、Feの割合を79at%以上かつ84.5%以下とすることで優れた特性が得られることが分かる。また、実施例8～12の結果より、Feの割合が83.5at%以下であればさらにコアロスが低下するので好ましいことが分かる。さらに、実施例7～11の結果より、Feの割合が80at%以上であれば、1.70T以上のより高い飽和磁束密度が得られることが分かる。

【0117】

また、表4に示した結果から分かるように、比較例6のFe基ナノ結晶合金粉末は6at%より多いSiを含んでおり、圧粉磁芯のコアロスが大きい。一方、実施例17～20のFe基ナノ結晶合金粉末は0at%以上、6at%未満の範囲のSiを含んでおり、圧粉磁芯のコアロスが比較例6の圧粉磁芯よりも低い。また、実施例17～20のFe基ナノ結晶合金粉末は1.7T以上の高い飽和磁束密度を有している。

10

【0118】

以上の結果から、Siの割合を0at%以上かつ6at%未満とすることで優れた特性が得られることが分かる。また、実施例17、18の結果から、Siの割合を2at%以上とすることで飽和磁束密度がさらに向上するので好ましいことが分かる。

【0119】

また、表6に示した結果から分かるように、10at%より多いBを含む比較例9とBを全く含まない比較例10では、圧粉磁芯のコアロスが大きい。一方、実施例26～30のFe基ナノ結晶合金粉末は、10at%以下の範囲のBを含んでおり、比較例9、10に比べて圧粉磁芯のコアロスが低い。また、実施例26～30のFe基ナノ結晶合金粉末は1.7T以上の高い飽和磁束密度を有している。

20

【0120】

以上の結果から、Bの割合を0at%より高くかつ10at%以下とすることで優れた特性が得られることが分かる。また、表5の実施例23、24、25から8.5at%以下のBで結晶化度を3%以下に抑えることができ、さらにコアロスを低減できることも分かる。

【0121】

また、表8に示した結果から分かるように、Pの割合が11at%より多い比較例13とPの割合が4at%より少ない比較例14では、圧粉磁芯のコアロスが大きい。一方、実施例38～44のFe基ナノ結晶合金粉末は、4at%超、11at%以下の範囲のPを含んでおり、比較例13、14によりも圧粉磁芯のコアロスが低い。また、実施例38～44のFe基ナノ結晶合金粉末は1.7T以上の高い飽和磁束密度を有している。

30

【0122】

以上の結果から、Pの割合を4at%超かつ11at%以下とすることで優れた特性が得られることが分かる。また、実施例38～43の結果より、6at%以上でコアロスをさらに低減できること分かる。実施例40～44の結果より、Pの割合が10at%以下で飽和磁束密度がより向上し、8at%以下でさらに向上することが分かる。

【0123】

また、表10に示した結果から分かるように、Cuの割合が0.53at%より高い比較例17とCuの割合が0.2at%より低い比較例18では、圧粉磁芯のコアロスが大きい。一方、実施例52～58のFe基ナノ結晶合金粉末は、0.2at%以上かつ0.53at%以下のCuを含んでおり、比較例17、18に比べて圧粉磁芯のコアロスが低い。また、実施例52～58のFe基ナノ結晶合金粉末は1.65T以上の高い飽和磁束密度を有している。

40

【0124】

以上の結果から、Cuの割合を0.2at%以上、0.53at%以下とすることにより優れた特性が得られることが分かる。また、実施例54～57の結果より、Cuの割合が0.3at%以上、0.4at%未満でコアロスをより低減できることが分かる。実施

50

例54の結果からは、Cuの割合が0.3at%以上で飽和磁束密度もさらに向上することが分かる。また、Cuの割合が0.35at%以上ではコアロスを一層低減できることも分かる。

【0125】

Nbを含む組成を例にとると、表12に示した結果から分かるように、比較例21のFe基ナノ結晶合金粉末は4at%より多いNbを含んでおり、圧粉磁芯のコアロスが大きい。一方、実施例81~89のFe基ナノ結晶合金粉末は、4at%以下のNbを含んでおり、圧粉磁芯のコアロスが比較例21に比べて低い。また、実施例81~89のFe基ナノ結晶合金粉末は1.65T以上の高い飽和磁束密度を有しており、さらに2.5at%以下の範囲では1.70T以上の高い飽和磁束密度を有している。また、比較例21、

10

【0126】

以上の結果から、軟磁性粉末に含まれるMとして、Nb、Mo、Zr、Ta、W、Hf、Ti、V、Cr、Mn、C、Al、S、O、Nからなる群から選ばれる少なくとも1つの元素の割合を、4at%以下とすることにより優れた特性が得られることが分かる。

【0127】

さらに、表2、4、6、8、10、12の実施例7~12、17~20、26~30、38~44、52~58、81~102と比較例10、14、18との比較により、Fe

20

【0128】

【表1】

表1

	軟磁性粉末		
	組成	結晶化度 (%)	析出物
比較例1	Fe85.12Si2B5P7.5Cu0.38	82	α Fe+Com
実施例1	Fe84.42Si2B5.7P7.5Cu0.38	8	α Fe
実施例2	Fe83.42Si2B6.7P7.5Cu0.38	2	α Fe
実施例3	Fe83.42Si0B7.7P8.5Cu0.38	3	α Fe
実施例4	Fe82.12Si3B6P8.5Cu0.38	1	α Fe
実施例5	Fe80.12Si4B7.5P8.0Cu0.38	1	α Fe
実施例6	Fe79.12Si5B5P10.5Cu0.38	0	amo
比較例2	Fe78.42Si5B6.2P10Cu0.38	0	amo

30

40

【0129】

【 表 2 】

表2

	熱処理条件		Fe基ナノ結晶合金粉末			圧粉磁芯		
	最高到達温度 T _{max} (°C)	組成	飽和磁束密度 B _s (T)	Fe結晶子径 (nm)	コアロス (kW/m ³)	コアロス 評価		
比較例3	400	Fe85.12Si2B5P7.5Cu0.38	1.82	化合物相	4000	×		
実施例7	400	Fe84.42Si2B5.7P7.5Cu0.38	1.78	42	200	○		
実施例8	410	Fe83.42Si2B6.7P7.5Cu0.38	1.76	35	90	◎		
実施例9	410	Fe83.42Si0B7.7P8.5Cu0.38	1.74	38	180	○		
実施例10	410	Fe82.12Si3B6P8.5Cu0.38	1.73	32	75	◎		
実施例11	410	Fe80.12Si4B7.5P8.0Cu0.38	1.70	36	170	○		
実施例12	420	Fe79.12Si5B5P10.5Cu0.38	1.65	32	100	◎		
比較例4	420	Fe78.42Si5B6.2P10Cu0.38	1.55	35	200	○		

【 0 1 3 0 】

10

20

30

40

【表3】

表3

	軟磁性粉末		
	組成	結晶化度 (%)	析出物
比較例5	Fe82.12Si7B4P6.5Cu0.38	75	α Fe+Com
実施例13	Fe82.12Si5.8B5.2P6.5Cu0.38	8	α Fe
実施例14	Fe82.12Si4B6P7.5Cu0.38	3	α Fe
実施例15	Fe82.12Si2B6P9.5Cu0.38	0	amo
実施例16	Fe82.12Si0B7P10.5Cu0.38	0	amo

10

【0131】

【 表 4 】

表4

	熱処理条件		Fe基ナノ結晶合金粉末		圧粉磁芯		
	最高到達温度 T _{max} (°C)	組成	飽和磁束密度 B _s (T)	Fe結晶子径 (nm)	コアロス (kW/m ³)	コアロス 評価	
比較例6	400	Fe82.12Si7B4P6.5Cu0.38	1.75	化合物相	3800	×	
実施例17	400	Fe82.12Si5.8B5.2P6.5Cu0.38	1.76	39	192	○	
実施例18	400	Fe82.12Si4B6P7.5Cu0.38	1.75	36	98	◎	
実施例19	410	Fe82.12Si2B6P9.5Cu0.38	1.71	34	80	◎	
実施例20	410	Fe82.12Si0B7P10.5Cu0.38	1.70	30	75	◎	

【 0 1 3 2 】

10

20

30

40

【表 5】

表5

	軟磁性粉末		
	組成	結晶化度 (%)	析出物
比較例7	Fe82.12Si1.5B12P4Cu0.38	20	α Fe+Com
実施例21	Fe82.12Si2B10P5.5Cu0.38	9	α Fe
実施例22	Fe82.12Si3B9.5P5.0Cu0.38	10	α Fe
実施例23	Fe82.12Si0B8.5P9Cu0.38	2	α Fe
実施例24	Fe82.12Si3B7.5P7Cu0.38	2	α Fe
実施例25	Fe83.12Si3B3P10.5Cu0.38	3	α Fe
比較例8	Fe83.12Si5.5B0P11Cu0.38	50	α Fe

【 0 1 3 3 】

【 表 6 】

表6

	熱処理条件		Fe基ナノ結晶合金粉末		圧粉磁芯		
	最高到達温度 T _{max} (°C)	組成	飽和磁束密度 B _s (T)	Fe結晶子径 (nm)	コアロス (kW/m ³)	コアロス 評価	
比較例9	430	Fe82.12Si1.5B12P4Cu0.38	1.77	化合物相	1800	×	
実施例26	430	Fe82.12Si2B10P5.5Cu0.38	1.75	48	195	○	
実施例27	420	Fe82.12Si3B9.5P5.0Cu0.38	1.76	45	188	○	
実施例28	420	Fe82.12Si0B8.5P9Cu0.38	1.72	35	90	◎	
実施例29	420	Fe82.12Si3B7.5P7Cu0.38	1.74	40	80	◎	
実施例30	410	Fe83.12Si3B3P10.5Cu0.38	1.73	38	130	○	
比較例10	410	Fe83.12Si5.5B0P11Cu0.38	1.64	65	3200	×	

【 0 1 3 4 】

10

20

30

40

【表 7】

表 7

	軟磁性粉末		
	組成	結晶化度 (%)	析出物
比較例11	Fe82.12Si1.5B4P12Cu0.38	18	α Fe+Com
実施例31	Fe82.12Si1B5.5P11Cu0.38	1	α Fe
実施例32	Fe82.12Si0B6.8P10.7Cu0.38	2	α Fe
実施例33	Fe82.12Si0B7.5P10Cu0.38	5	α Fe
実施例34	Fe82.12Si2B5.5P10Cu0.38	3	α Fe
実施例35	Fe82.12Si3B6.5P8Cu0.38	1	α Fe
実施例36	Fe82.12Si4B7.5P6Cu0.38	2	α Fe
実施例37	Fe82.12Si5B8.3P4.2Cu0.38	10	α Fe
比較例12	Fe83.12Si5B8.5P3Cu0.38	11	α Fe

【 0 1 3 5 】

【 表 8 】

表8

	熱処理条件		Fe基ナノ結晶合金粉末		圧粉磁芯		
	最高到達温度 T _{max} (°C)	組成	飽和磁束密度 B _s (T)	Fe結晶子径 (nm)	コアロス (kW/m ³)	コアロス 評価	
比較例13	430	Fe82.12Si1.5B4P12Cu0.38	1.62	化合物相	800	×	
実施例38	430	Fe82.12Si1B5.5P11Cu0.38	1.70	29	180	○	
実施例39	420	Fe82.12Si0B6.8P10.7Cu0.38	1.71	31	190	○	
実施例40	420	Fe82.12Si0B7.5P10Cu0.38	1.71	33	170	○	
実施例41	420	Fe82.12Si2B5.5P10Cu0.38	1.72	32	165	○	
実施例42	410	Fe82.12Si3B6.5P8Cu0.38	1.73	26	80	◎	
実施例43	410	Fe82.12Si4B7.5P6Cu0.38	1.75	28	82	◎	
実施例44	410	Fe82.12Si5B8.3P4.2Cu0.38	1.77	45	198	○	
比較例14	410	Fe83.12Si5B8.5P3Cu0.38	1.78	55	600	×	

【 0 1 3 6 】

10

20

30

40

【表 9】

表9

	軟磁性粉末		
	組成	結晶化度 (%)	析出物
比較例15	Fe81.9Si4B7P6.5Cu0.6	15	α Fe
実施例45	Fe81.97Si3B7P7.5Cu0.53	3	α Fe
実施例46	Fe82.05Si4B7P6.5Cu0.45	2	α Fe
実施例47	Fe82.11Si4B7P6.5Cu0.39	1	α Fe
実施例48	Fe82.14Si4B7P6.5Cu0.36	2	α Fe
実施例49	Fe82.2Si1B7P9.5Cu0.3	1	α Fe
実施例50	Fe82.2Si0B7P10.5Cu0.3	2	α Fe
実施例51	Fe82.3Si4B7P6.5Cu0.2	0	amo
比較例16	Fe82.4Si4B8P5.5Cu0.1	0	amo

【 0 1 3 7 】

【 表 1 0 】

表 10

	熱処理条件		Fe基ナノ結晶合金粉末		圧粉磁芯		
	最高到達温度 T _{max} (°C)	組成	飽和磁束密度 B _s (T)	Fe結晶子径 (nm)	コアロス (kW/m ³)	コアロス 評価	
比較例17	410	Fe81.9Si4B7P6.5Cu0.6	1.73	38	1200	×	
実施例52	410	Fe81.97Si3B7P7.5Cu0.53	1.75	39	200	○	
実施例53	420	Fe82.05Si4B7P6.5Cu0.45	1.73	36	190	○	
実施例54	420	Fe82.11Si4B7P6.5Cu0.39	1.74	25	50	◎	
実施例55	420	Fe82.14Si4B7P6.5Cu0.36	1.72	30	80	◎	
実施例56	420	Fe82.2Si1B7P9.5Cu0.3	1.71	31	130	○	
実施例57	420	Fe82.2Si0B7P10.5Cu0.3	1.71	32	130	○	
実施例58	420	Fe82.3Si4B7P6.5Cu0.2	1.65	33	190	○	
比較例18	420	Fe82.4Si4B8P5.5Cu0.1	1.62	54	420	×	

【 0 1 3 8 】

10

20

30

40

【表 1 1】

表 11

	軟磁性粉末		
	組成	結晶化度 (%)	析出物
比較例19	Fe80.12Si2B6P6.5Cu0.38Nb5	24	α Fe+Com
実施例59	Fe81.22Si3B7P4.5Cu0.38Nb3.9	3	α Fe
実施例60	Fe81.02Si2B7P6.5Cu0.38Nb3.1	1	α Fe
実施例61	Fe82.12Si2B8P5Cu0.38Nb2.5	0	amo
実施例62	Fe82.32Si0B7P8.5Cu0.38Nb1.8	0	amo
実施例63	Fe82.72Si2B7P6.7Cu0.38Nb1.2	0	amo
実施例64	Fe83.12Si4B6P5.7Cu0.38Nb0.8	2	α Fe
実施例65	Fe83.19Si2B8.6P5.5Cu0.31Nb0.4	0	amo
実施例66	Fe83.13Si3B6.4P7Cu0.38Nb0.09	1	α Fe
実施例67	Fe83.13Si1B7.4P8Cu0.38Nb0.09	0	amo
実施例68	Fe82Si2B8P6.1Cu0.3Mo1.6	1	α Fe
実施例69	Fe82Si2B8P6.3Cu0.3Ta1.4	2	α Fe
実施例70	Fe82Si2B8P5.9Cu0.3Zr1.8	3	α Fe
実施例71	Fe82Si3B8P5.9Cu0.3Hf0.8	2	α Fe
実施例72	Fe82.28Si0B8.4P9Cu0.3Ti0.02	3	α Fe
実施例73	Fe82.3Si0B8P9Cu0.3Al0.4	1	α Fe
実施例74	Fe82Si2B8P5.6Cu0.3Cr2.1	0	amo
実施例75	Fe82Si2B8P5.9Cu0.3Mn1.8	2	α Fe
実施例76	Fe83Si2B7P6.6Cu0.3C1.1	0	amo
実施例77	Fe82.0Si0B8P9Cu0.3S0.7	0	amo
実施例78	Fe82.24Si2B7.4P8Cu0.3O0.06	3	α Fe
実施例79	Fe82.29Si2B7.4P8Cu0.3N0.01	0	amo
実施例80	Fe82.92Si3B7P5.7Cu0.38Nb0.8Cr0.2	0	amo
比較例20	Fe80.12Si2B6P6.5Cu0.38Ti3Al2	80	amo

10

20

30

【 0 1 3 9 】

【表 1 2】

表12

	熱処理条件	Fe基ナノ結晶合金粉末		圧粉磁芯		
	最高到達温度 T _{max} (°C)	組成	飽和磁束密度 B _s (T)	Fe結晶子径 (nm)	コアロス (kW/m ³)	コアロス 評価
比較例21	450	Fe80.12Si2B6P6.5Cu0.38Nb5	1.48	化合物相	1600	×
実施例81	450	Fe81.22Si3B7P4.5Cu0.38Nb3.9	1.65	24	180	○
実施例82	450	Fe81.02Si2B7P6.5Cu0.38Nb3.1	1.67	31	120	○
実施例83	440	Fe82.12Si2B8P5Cu0.38Nb2.5	1.73	29	90	◎
実施例84	440	Fe82.32Si0B7P8.5Cu0.38Nb1.8	1.71	26	80	◎
実施例85	430	Fe82.72Si2B7P6.7Cu0.38Nb1.2	1.74	32	90	◎
実施例86	430	Fe83.12Si4B6P5.7Cu0.38Nb0.8	1.74	31	70	◎
実施例87	420	Fe83.19Si2B8.6P5.5Cu0.31Nb0.4	1.73	33	120	○
実施例88	420	Fe83.13Si3B6.4P7Cu0.38Nb0.09	1.76	29	90	◎
実施例89	420	Fe83.13Si1B7.4P8Cu0.38Nb0.09	1.72	24	70	◎
実施例90	440	Fe82Si2B8P6.1Cu0.3Mo1.6	1.71	28	90	◎
実施例91	460	Fe82Si2B8P6.3Cu0.3Ta1.4	1.7	31	90	◎
実施例92	440	Fe82Si2B8P5.9Cu0.3Zr1.8	1.72	34	160	○
実施例93	440	Fe82Si3B8P5.9Cu0.3Hf0.8	1.73	28	120	○
実施例94	420	Fe82.28Si0B8.4P9Cu0.3Ti0.02	1.74	35	190	○
実施例95	420	Fe82.3Si0B8P9Cu0.3Al0.4	1.75	33	130	○
実施例96	420	Fe82Si2B8P5.6Cu0.3Cr2.1	1.7	33	80	◎
実施例97	420	Fe82Si2B8P5.9Cu0.3Mn1.8	1.71	34	130	○
実施例98	420	Fe83Si2B7P6.6Cu0.3C1.1	1.77	33	80	◎
実施例99	420	Fe82.0Si0B8P9Cu0.3S0.7	1.73	32	90	◎
実施例100	420	Fe82.24Si2B7.4P8Cu0.3O0.06	1.74	34	150	○
実施例101	420	Fe82.29Si2B7.4P8Cu0.3N0.01	1.75	32	90	◎
実施例102	430	Fe82.92Si3B7P5.7Cu0.38Nb0.8Cr0.2	1.72	28	70	◎
比較例22	430	Fe80.12Si2B6P6.5Cu0.38Ti3Al2	1.76	化合物相	3800	×

【0140】

ここで、表2を含む各表の「Fe結晶子径」欄における「化合物相」との表記は、本発明で意図しているFeナノ結晶ではなく、Fe-PやFe-B化合物などの化合物相が析出してしまっていることを意味する。これらの化合物相が析出すると磁気特性が著しく劣化するため、該化合物相の析出は避ける必要がある。なお、意図したFeナノ結晶とは異なる結晶であるため、Fe結晶子径は示していない。

【0141】

(第7の実施例)

さらに、軟磁性粉末の円形度の中央値が見掛密度と磁気特性に与える影響を評価するために、表13に示した組成の軟磁性粉末を製造した。軟磁性粉末の製造にあたっては、円形度の中央値が異なる軟磁性粉末を得るために、溶鋼に衝突させる水の流速を変えた異なる条件で水アトマイズを行った。それ以外については、上記第1の実施例と同様とした。

【0142】

得られた軟磁性粉末の粒度分布を第1の実施例と同様の方法で測定した結果、いずれの軟磁性粉末も粒径が1mm以下であった。

【0143】

得られた軟磁性粉末の円形度の中央値を、先に述べた方法で測定した。なお、測定においては、該軟磁性粉末を構成する粒子の中から無作為に抽出した6万個の粒子の円形度を顕微鏡観察により算出し、得られた円形度の中央値50(無次元)を求めた。得られた結果を表13に併記した。

【0144】

また、軟磁性粉末の見掛密度(g/cm^3)をJIS Z 2504で規定される方法により測定した。結果を表13に併記する。

【 0 1 4 5 】

実施例 1 0 3 ~ 1 1 2 の結果から分かるように、 ϕ が大きいほど、すなわち粒子が球形に近いほど、粉末の見掛密度が高くなる。具体的には、 ϕ が 0 . 4 以上の粉末では、見掛密度が $3 . 5 \text{ g / c m }^3$ 以上であった。

【 0 1 4 6 】

次いで、上記軟磁性粉末（熱処理前のもの）を用いて、上記第 1 の実施例と同様の方法で圧粉磁芯を作製した。成形後の熱処理では、成形体を表 1 3 に示した最高到達温度（ T_{max} ）まで、昇温速度： 10 / min で加熱し、前記最高到達温度で 1 0 分間保持した。その後、得られた圧粉磁芯の密度（圧粉密度）とコアロスを測定した。前記圧粉密度は、圧粉後の成形体の質量を、圧粉後の成形体の体積で割ることにより求めた。また、コアロスは第 1 の実施例と同様の方法で測定した。コアロスの評価基準も第 1 の実施例と同様とした。得られた圧粉密度とコアロスの値を表 1 3 に併記する。

10

【 0 1 4 7 】

表 1 3 に示したように、軟磁性粉末の見掛密度の上昇に伴い圧粉磁芯のコアロスが低下した。これは、見掛密度の上昇により圧粉磁芯の圧粉密度が上昇し、圧粉磁芯中の空隙が減少したためである。

【 0 1 4 8 】

また、比較例 2 4、2 6、実施例 1 0 3、1 0 8 の軟磁性粉末は、いずれも見掛密度が $3 . 5 \text{ g / c m }^3$ と同じ値を示している。しかし、 ϕ が 0 . 4 未満である比較例 2 4、2 6 の軟磁性粉末は、 ϕ が 4 . 0 である実施例 1 0 3、1 0 8 の軟磁性粉末に比べてコアロスが大きかった。これは、円形度が低い軟磁性粉末では粒子の形状がいびつなため、圧粉成形の際に凸部に応力が集中し、その結果軟磁性粉末の表面酸化等によって形成された絶縁被覆が破れたためであると考えられる。したがって、軟磁性粉末の ϕ は 0 . 4 以上とする必要がある。また、 ϕ が 0 . 7 以上とすることにより、コアロスをさらに低減できた。したがって、 ϕ は 0 . 7 以上とすることが好ましい。

20

【 0 1 4 9 】

【表 13】

	軟磁性粉末			熱処理条件		圧粉磁芯		
	組成	円形度の 中央値 $\phi 50$ (-)	見掛密度 (g/cm^3)	最高到達温度 T_{max} ($^{\circ}C$)	圧粉密度 (g/cm^3)	コアロス (kW/m^3)	コアロス 評価	
比較例23	Fe84Si3B5P7.7Cu0.3Nb0	0.30	2.8	430	4.00	1500	×	
比較例24		0.39	3.5	430	4.45	1400	×	
実施例103		0.40	3.5	430	4.45	180	○	
実施例104		0.70	4.0	430	4.90	98	◎	
実施例105		0.80	4.1	430	5.20	96	◎	
実施例106		0.90	4.2	430	5.40	94	◎	
実施例107		1.00	4.3	430	5.45	88	◎	
比較例25	Fe82Si4B6P6Cu0.3Nb1.7	0.30	2.7	410	3.95	1400	×	
比較例26		0.39	3.5	410	4.90	1380	×	
実施例108		0.40	3.5	410	4.90	175	○	
実施例109		0.70	4.1	410	5.35	95	◎	
実施例110		0.80	4.2	410	5.30	93	◎	
実施例111		0.90	4.3	410	5.40	91	◎	
実施例112		1.00	4.4	410	5.60	87	◎	

表13

【0150】

(第8の実施例)

さらに、軟磁性粉末の均等数 n が見掛密度と磁気特性に与える影響を評価するために、表14に示した組成の軟磁性粉末を製造した。軟磁性粉末の製造にあたっては、溶鋼に衝

10

20

30

40

50

突させる水の流速を変えた異なる条件で水アトマイズを行った。それ以外については、上記第7の実施例と同様とした。

【0151】

得られた軟磁性粉末の粒度分布を第1の実施例と同様の方法で測定した結果、いずれの軟磁性粉末も粒径が1mm以下であった。

【0152】

得られた軟磁性粉末の粒度分布をレーザー粒度分布計により測定し、先に述べた方法でRosin-Rammler式における均等数nを算出した。均等数nは粒度分布の広さを表す指標である。また、得られた軟磁性粉末の円形度の中央値を、上記第7の実施例と同様の方法で測定した。得られた結果を表14に併記した。

10

【0153】

次いで、上記第7の実施例と同様の方法で圧粉磁芯を作製し、得られた圧粉磁芯の密度（圧粉密度）とコアロス測定した。成形後の熱処理では、成形体を表14に示した最高到達温度（ T_{max} ）まで、昇温速度：10 / minで加熱し、前記最高到達温度で10分間保持した。得られた圧粉密度とコアロスの値を表14に併記した。

【0154】

得られた軟磁性粉末の50は、実施例113～117では約0.90で、ほぼ一定であった。同様に、実施例113～121における50は約0.95で、ほぼ一定であった。

【0155】

実施例113～121の結果より、50がほぼ同じであっても、均等数nが大きいほど、すなわち、粒径がより均一になるほど軟磁性粉末の見掛密度が高くなること分かる。特に、均等数nが0.3以上であれば見掛密度が 3.5 g/cm^3 以上となり、圧粉磁芯のコアロスがさらに低下した。これは、見掛密度の上昇により圧粉成形後の圧粉密度が上昇し、圧粉磁芯中の空隙が減少したためである。

20

【0156】

また、実施例113、118と実施例114、119を比較すると、均等数nが0.3未満である実施例113、118では軟磁性粉末の見掛密度が低く、圧粉磁芯のコアロスが高かった。したがって、軟磁性粉末のnは0.3以上とすることが好ましい。また、実施例116、121と実施例117、122を比較すると、均等数nが30より大きい実施例117、122では軟磁性粉末の見掛密度が低く、圧粉磁芯のコアロスが大きかった。これは、軟磁性粉末を構成する粒子の径が過度に均一化したため、粗大粒子により作られた隙間に入る細粒が減少し、結果的に粉体中の空隙が増加したためである。

30

【0157】

【 表 1 4 】

表 14

	軟磁性粉末				熱処理条件		圧粉磁芯	
	組成	均等数 n (-)	円形度の 中央値 $\phi 50$ (-)	見掛密度 (g/cm^3)	最高到達温度 T_{max} ($^{\circ}C$)	圧粉密度 (g/cm^3)	コアロス (kW/m^3)	コアロス 評価
実施例113		0.29	0.90	2.5	430	3.80	198	○
実施例114		0.30	0.89	3.5	430	4.30	190	○
実施例115	Fe81.7Si5B7P6Cu0.3Nb0	10.00	0.91	3.8	430	5.00	90	◎
実施例116		30.00	0.88	4.8	430	5.60	70	◎
実施例117		31.00	0.90	3.0	430	4.10	196	○
実施例118		0.25	0.95	2.9	410	4.20	196	○
実施例119	Fe79.9Si4B6P7Cu0.5Nb2.6	0.30	0.94	3.5	410	4.40	180	○
実施例120		10.00	0.93	3.9	410	5.00	88	◎
実施例121		30.00	0.95	4.9	410	5.80	69	◎
実施例122		31.00	0.94	3.2	410	3.95	192	○

【 0 1 5 8 】

(第 9 の 実 施 例)

さらに、軟磁性粉末の円形度の中央値と均等数 n が圧粉磁芯の飽和磁束密度に与える影響を評価するために、表 1 5 に示した組成の軟磁性粉末を製造した。軟磁性粉末の製造に

10

20

30

40

50

あたっては、溶鋼に衝突させる水の流速を変えた異なる条件で水アトマイズを行った。それ以外については、上記第7の実施例と同様とした。

【0159】

得られた軟磁性粉末の粒度分布を第1の実施例と同様の方法で測定した結果、いずれの軟磁性粉末も粒径が1mm以下であった。

【0160】

得られた軟磁性粉末の円形度の中央値 50 と均等数 n を、上記第7の実施例と同様の方法で求めた。得られた結果を表15に併記した。

【0161】

次いで、得られた軟磁性粉末を用いて、上記第7の実施例と同様の方法で圧粉磁芯を製作し、得られた圧粉磁芯の密度（圧粉密度）と飽和磁束密度を測定した。成形後の熱処理では、成形体を表15に示した最高到達温度（ T_{max} ）まで、昇温速度：10 / min で加熱し、前記最高到達温度で10分間保持した。飽和磁束密度の測定は、直流磁化測定装置により、磁界100 A/mの条件で行った。得られた圧粉密度と飽和磁束密度の値を表15に併記した。なお、飽和磁束密度の値が1.30 T以上を、1.20 T以上1.30 T未満を で分類した。

10

【0162】

実施例123、124と実施例125の比較から 50 が0.4以上かつ n が0.3以上で良好な飽和磁束密度が得られることがわかった。これは圧粉密度において円形度と均等数が因子となっており、いずれもある一定の値未満では、十分に圧粉しないため圧粉密度が低下して結果的に飽和磁束密度が低くなるためである。実施例125～129のように 50 が0.4以上かつ n が0.3以上を満たしていれば、50 または n のいずれかの値が上昇すると圧粉密度が上昇し、結果的に圧粉磁芯としても1.3 T以上の高飽和磁束密度が得られることがわかる。

20

【0163】

一方で、実施例130と実施例129を比較すると n が30より大きな値の場合は圧粉密度および飽和磁束密度が低下することがわかった。実施例130では粒径が過度に均一化したため、粗大粒子により作られた隙間に入る細粒が減少し、結果的に粉体中の空隙が増加したためである。したがって実施例129のように n は30以下とすることが好ましい。

30

【0164】

【 表 1 5 】

表15

	軟磁性粉末		熱処理条件 最高到達温度 T _{max} (°C)	圧粉磁芯		
	組成	均等数 n (-)		円形度の 中央値 φ ₅₀ (-)	圧粉密度 (g/cm ³)	飽和磁束密度 Bs (T)
実施例123	Fe81.9Si3.6B6P6Cu0.5Nb2	0.30	420	4.40	1.23	○
実施例124		0.29	420	4.80	1.24	○
実施例125		0.30	420	5.25	1.30	◎
実施例126		1.00	420	5.50	1.31	◎
実施例127		1.00	420	5.60	1.32	◎
実施例128		2.00	420	5.70	1.34	◎
実施例129		30.00	420	5.75	1.35	◎
実施例130		31.00	420	3.97	1.21	○

【 0 1 6 5 】

(第 1 0 の 実 施 例)

さらに、軟磁性粉末の粒度と結晶化度が圧粉磁芯のコアロスに与える影響を評価するために、表16に示した組成の軟磁性粉末を製造した。軟磁性粉末の製造にあたっては、溶

10

20

30

40

50

鋼に衝突させる水の流速を変えた異なる条件で水アトマイズを行った。それ以外については、上記第7の実施例と同様とした。

【0166】

得られた軟磁性粉末の粒度分布をレーザー粒度分布計により測定し、該軟磁性粉末における粒径 $200\mu\text{m}$ 超の粒子の体積割合と、粒径 1mm 超の粒子の体積割合を算出した。また、第1の実施例と同様の方法により、軟磁性粉末の結晶化度を測定した。測定結果を表16に併記した。

【0167】

次いで、得られた軟磁性粉末を用いて、上記第7の実施例と同様の方法で圧粉磁芯を製作し、得られた圧粉磁芯のコアロス測定した。成形後の熱処理では、成形体を表16に示した最高到達温度(T_{max})まで、昇温速度： 10 / min で加熱し、前記最高到達温度で10分間保持した。得られたコアロスの値と評価を表17に併記した。なお、表16の各欄は、表17の各欄と対応している。例えば、表17の実施例140は、表16の実施例131の軟磁性粉末を用いたものである。

10

【0168】

また、Fe基ナノ結晶合金粉末の保磁力 H_c (A/m)、飽和磁束密度 B_s (T)、およびFe結晶子径(nm)を測定した。保磁力 H_c は、振動試料型磁力計(VSM)を使用して測定した。飽和磁束密度 B_s とFe結晶子径は第1の実施例と同様の方法で測定した。

【0169】

表17の実施例30~32と実施例140~148から、 1mm 超の粒子が含まれている場合、軟磁性粉末の結晶化度が10%以上であり、かつFe結晶子径が大きくなり、保磁力やコアロスが大きくなる。また、実施例140~148から、 $200\mu\text{m}$ 超の粒子が含まれていない場合に結晶化度が3%以下であり、かつFe結晶子径が小さくなり、保磁力やコアロスが小さいことがわかる。したがって、軟磁性粉末の粒径は 1mm 以下とすることが必要であり、 $200\mu\text{m}$ 以下とすることが好ましい。

20

【0170】

【 表 16 】

表 16

	軟磁性粉末				熱処理条件
	組成	粒径200 μ m超の 粒子の割合 (%)	粒径1mm超の 粒子の割合 (%)	結晶化度 (%)	
比較例27		40	4	95	最高到達温度 T _{max} (°C)
実施例131	Fe81.65Si5B7P6Cu0.35Nb0	40	0	10	430
実施例132		15	0	8	430
実施例133		0	0	3	430
比較例28		30	3	90	420
実施例134	Fe79Si5B5P10Cu0.3Nb0.7	30	0	10	420
実施例135		10	0	5	420
実施例136		0	0	1	420
比較例29		20	2	88	415
実施例137	Fe84.5Si4B4P6Cu0.35Nb1.15	20	0	8	415
実施例138		8	0	4	415
実施例139		0	0	0	415

【 0 1 7 1 】

10

20

30

40

【表 17】

表17

	Fe基ナノ結晶合金粉末				圧粉磁芯	
	組成	保磁力 H _c (A/m)	飽和磁束密度 B _s (T)	Fe結晶子径 (nm)	コアロス (kW/m ³)	コアロス 評価
比較例30	Fe81.65Si5B7P6Cu0.35Nb0	5000	1.71	100	3000	×
実施例140		200	1.70	48	200	○
実施例141		80	1.70	42	180	○
実施例142		30	1.71	30	150	○
比較例31	Fe79Si5B5P10Cu0.3Nb0.7	4000	1.62	90	2800	×
実施例143		170	1.65	45	180	○
実施例144		65	1.65	38	150	○
実施例145		25	1.66	20	130	○
比較例32	Fe84.5Si4B4P6Cu0.35Nb1.15	4800	1.79	92	2850	×
実施例146		180	1.80	46	185	○
実施例147		75	1.80	41	160	○
実施例148		30	1.80	27	140	○

【0172】

(第10の実施例)

次に、軟磁性粉末を加熱する際の昇温速度の影響を評価するために、表18に示した組成の軟磁性粉末を製造した。軟磁性粉末の製造は、上記第7の実施例と同様の方法で行っ

10

20

30

40

50

た。

【0173】

得られた軟磁性粉末の第1結晶化温度 $T \times 1$ と第2結晶化温度 $T \times 2$ を、示差走査熱量分析(DSC)装置を用いて測定した。測定時の昇温速度は表18に示したとおりとした。

【0174】

参考例1~18から、昇温速度が上昇すると $T \times 1$ 、 $T \times 2$ は共に上昇するが、 $T \times 1$ の方が急激に上昇するため $T \times 1$ との $T \times 2$ 温度差 T は小さくなることがわかる。比較例40~42では昇温速度が 30 / min より大きいため、 T が 60 より小さく、さらに第1結晶化と第2結晶化のピークが重なることから磁気特性に悪影響を及ぼすFeとBまたはFeとPの化合物の生成を熱処理温度の制御で抑制することが困難である。したがって、軟磁性粉末からFe基ナノ結晶合金粉末を作製するにあたっては昇温速度 30 / min 以下で加熱処理することが必要である。さらにナノ結晶材料特有の熱処理時の結晶化に伴う発熱を分散するためにも低速昇温の方が磁芯全体を均一に熱処理ができ、好ましい。

【0175】

【表 18】

表 18

軟磁性粉末							
	組成	昇温速度 (°C/min)	Tx1 (°C)	Tx2 (°C)	ΔT (°C)	第1結晶化と 第2結晶化の ピークの重なり	
参考例1	Fe81.65Si2B8P8Cu0.35Nb0	0.1	400	480	80	なし	
参考例2		0.5	402	481	79		
参考例3		3	405	483	78		
参考例4		10	422	495	73		
参考例5		30	443	504	61		
参考例6		35	452	508	56		
参考例7	Fe79Si3B7P10Cu0.3Nb0.7	0.1	387	467	80	なし	
参考例8		0.5	392	472	80		
参考例9		3	396	475	79		
参考例10		10	408	480	72		
参考例11		30	432	494	62		
参考例12		35	448	503	55		
参考例13	Fe84.5Si1B6P7Cu0.35Nb1.15	0.1	395	476	81	なし	
参考例14		0.5	399	478	79		
参考例15		3	404	482	78		
参考例16		10	415	489	74		
参考例17		30	445	506	61		
参考例18		35	459	511	52		あり

【0176】

(第11の実施例)

次に、結晶化度および非晶質相に含まれる楕円の短径の影響を評価するために、表19に示した組成の軟磁性粉末を製造した。軟磁性粉末の製造は、上記第7の実施例と同様の

10

20

30

40

50

方法で行った。

【0177】

得られた軟磁性粉末の粒度分布を第1の実施例と同様の方法で測定した結果、いずれの軟磁性粉末も粒径が1mm以下であった。得られた軟磁性粉末の円形度の中央値は、いずれも0.7以上、1.0以下であった。

【0178】

次いで、得られた軟磁性粉末を熱処理してFe基ナノ結晶磁性粉末を得た。前記熱処理では、軟磁性粉末を表19に示した最高到達温度(Tmax)まで、昇温速度：10/minで加熱し、前記最高到達温度で10分間保持した。

【0179】

透過型電子顕微鏡(TEM)を用い、得られたFe基ナノ結晶合金粉末の700×700nmの部分を観察した。非晶質相と結晶相が区別でき、非晶質相に含まれる楕円の短径の最大値を観察画像から算出した。また、X線回折(XRD)により、Fe基ナノ結晶合金粉末における結晶化度(%)を測定した。測定結果を表19に併記する。

【0180】

実施例149~156の結果から分かるように、結晶化度が体積比で30%以上では、コアロスがさらに低減できている。また、非晶質相における楕円の短径の最大値が60nm以下の場合、結晶粒子間の距離が小さいためコアロスがさらに低減できている。なお、楕円の短径とは図1に示すものである。また、本実施例におけるFeの結晶子径は全て50nm以下であった。

【0181】

10

20

【 表 19 】

表19

	軟磁性粉末		熱処理条件		Fe基ナノ結晶合金粉末			圧粉磁芯	
	組成	最高到達温度 T _{max} (°C)	析出物	結晶化度 (%)	楕円の短径の 最大値* (nm)	圧粉磁心の コアロス (kW/m ³)	コアロス 評価		
実施例149	Fe82Si3B8P6.65Cu0.35Nb0	430	αFe	29	70	190	○		
実施例150		430		31	59	95	◎		
実施例151		430		38	37	90	◎		
実施例152		430		42	31	80	◎		
実施例153	Fe82Si3B8P6Cu0.35Nb0.65	420		29	66	195	○		
実施例154		420		31	60	98	◎		
実施例155		420		44	32	92	◎		
実施例156		420		45	28	60	◎		

* 断面における700nm×700nmの領域における非晶質相に含まれる楕円の短径の最大値

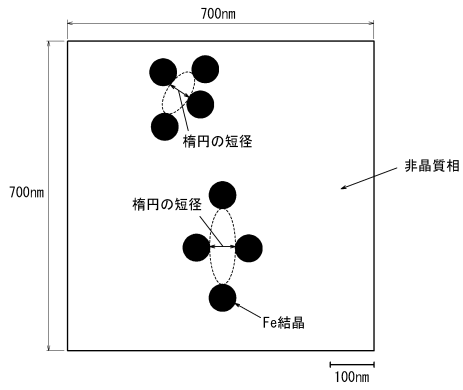
10

20

30

40

【図1】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I
B 2 2 F 3/00 B

- (72)発明者 山本 尚貴
東京都千代田区内幸町二丁目2番3号 J F E スチール株式会社内
- (72)発明者 高下 拓也
東京都千代田区内幸町二丁目2番3号 J F E スチール株式会社内
- (72)発明者 中世古 誠
東京都千代田区内幸町二丁目2番3号 J F E スチール株式会社内
- (72)発明者 小林 聡雄
東京都千代田区内幸町二丁目2番3号 J F E スチール株式会社内
- (72)発明者 浦田 顕理
宮城県仙台市太白区郡山6丁目7番1号 株式会社トーキン内
- (72)発明者 千葉 美帆
宮城県仙台市太白区郡山6丁目7番1号 株式会社トーキン内

審査官 川口 由紀子

- (56)参考文献 特開2018-016829(JP,A)
特開2017-034091(JP,A)
国際公開第2019/065500(WO,A1)
特許第6309149(JP,B1)
中国特許出願公開第108172359(CN,A)
国際公開第2018/139563(WO,A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C 2 2 C 3 8 / 0 0 - 3 8 / 6 0
B 2 2 F 1 / 0 0 - 8 / 0 0