

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第3851655号
(P3851655)

(45) 発行日 平成18年11月29日(2006.11.29)

(24) 登録日 平成18年9月8日(2006.9.8)

(51) Int. Cl.

F I

H O 1 F 1/22 (2006.01)

H O 1 F 1/22

B 2 2 F 1/02 (2006.01)

B 2 2 F 1/02

E

B 2 2 F 3/00 (2006.01)

B 2 2 F 3/00

D

請求項の数 14 (全 8 頁)

(21) 出願番号	特願平7-527587	(73) 特許権者	595054486
(86) (22) 出願日	平成7年4月24日(1995.4.24)		ホガナス アクチボラゲット
(65) 公表番号	特表平9-512388		スウェーデン国 ホガナス (番地なし)
(43) 公表日	平成9年12月9日(1997.12.9)	(74) 代理人	100066692
(86) 国際出願番号	PCT/SE1995/000445		弁理士 浅村 皓
(87) 国際公開番号	W01995/029490	(74) 代理人	100072040
(87) 国際公開日	平成7年11月2日(1995.11.2)		弁理士 浅村 肇
審査請求日	平成14年4月10日(2002.4.10)	(74) 代理人	100107504
(31) 優先権主張番号	9401392-7		弁理士 安藤 克則
(32) 優先日	平成6年4月25日(1994.4.25)	(74) 代理人	100102897
(33) 優先権主張国	スウェーデン(SE)		弁理士 池田 幸弘
		(72) 発明者	ヤンソン, パトリシア
			スウェーデン国 エス - 260 40
			ビケン, リングベーゲン 36

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 磁性鉄粉末の熱処理

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

次の：

絶縁性のリンを含有する層を有し、リン含有量が微粒化鉄粉末に対しては0.005～0.03重量%、海綿鉄粉末に対しては0.02～0.06重量%である微粒化鉄粉末又は海綿鉄粉末の粒子を、所望によっては熱硬化性樹脂と混合し、部材を形成するためにダイでの圧縮成形にかけ、そして

該部材を空气中で350～550 の温度に加熱する（：最終の加熱工程）

工程を包含する、改良された軟磁性を有する製品の製造方法。

【請求項 2】

微粒化鉄粉末のリン含有量が0.008～0.02重量%であり、海綿鉄粉末ではそれが0.03～0.05重量%であることを特徴とする、請求の範囲第1項に記載の方法。

【請求項 3】

加熱温度が400～530 の間、好ましくは430～520 の間であることを特徴とする、請求の範囲第1項又は第2項に記載の方法。

【請求項 4】

前記熱硬化性樹脂がフェノール-ホルムアルデヒド樹脂であることを特徴とする、請求の範囲第1～3項のいずれかに記載の方法。

【請求項 5】

微粒化鉄粉末又は海綿鉄粉末の粒子をリン酸水溶液で処理することを特徴とする、請求の

10

20

範囲第 1 ~ 4 項のいずれかに記載の方法。

【請求項 6】

前記熱硬化性樹脂を鉄粉末に対して 0 . 1 ~ 0 . 6 重量 % の量で添加することを特徴とする、請求の範囲第 5 項に記載の方法。

【請求項 7】

前記の最終の加熱工程に先立って、樹脂の硬化温度で追加の加熱工程を実施することを特徴とする、請求の範囲第 1 ~ 6 項のいずれかに記載の方法。

【請求項 8】

追加の加熱工程を 1 2 0 ~ 1 6 0 の温度で行うことを特徴とする、請求の範囲第 7 項に記載の方法。

10

【請求項 9】

前記圧縮成形工程を周囲温度で行うことを特徴とする、請求の範囲第 1 ~ 8 項のいずれかに記載の方法。

【請求項 10】

前記圧縮成形工程に先立って鉄粉末に潤滑剤を加えることを特徴とする、請求の範囲第 1 ~ 9 項のいずれかに記載の方法。

【請求項 11】

鉄粒子が 1 0 ~ 2 0 0 ミクロンの重量平均粒径を有することを特徴とする、請求の範囲第 1 ~ 1 0 項のいずれかに記載の方法。

【請求項 12】

20

前記の最終の加熱工程を 2 0 分 ~ 2 時間、好ましくは長くても 1 時間行うことを特徴とする、請求の範囲第 1 ~ 1 1 項のいずれかに記載の方法。

【請求項 13】

リン酸による処理を周囲温度で 0 . 5 ~ 2 時間行い、得られた粉末を 9 0 ~ 1 0 0 の温度で乾燥することを特徴とする、請求の範囲第 1 ~ 1 2 項のいずれかに記載の方法。

【請求項 14】

0 . 0 0 5 ~ 0 . 0 3 重量 % のリンを含む絶縁層を有する微粒化鉄粉末、又は 0 . 0 2 ~ 0 . 0 6 重量 % のリンを含む海綿鉄粉末の粒子より本質的に成る、請求の範囲第 1 ~ 1 3 項のいずれかに記載の製品を製造するための鉄粉末。

【発明の詳細な説明】

30

本発明は鉄粉末の熱処理法に関する。更に詳しくは、本発明は鉄複合材を成形し、プレス処理する方法に関する。プレス処理された部材は次いで熱処理される。この方法は改良された軟磁性を有する磁心部材の製造に特に有用である。

鉄を基材とする粒子は、粉末冶金法による構造部材の製造において長い間基礎材料として使用されて来た。この鉄基材粒子は、所望とされる形をもたらすために、まずダイで高压下で成形される。この成形工程後に、その構造部材は、通常、この部材に必要な強度を与えるために焼結工程を経る。

磁心部材も上記のような粉末冶金法で製造されて来たが、これらの方法で使用される鉄基材粒子は一般に絶縁材料の外周層で被覆される。

鉄心部材の 2 つの重要な特性は透磁率と鉄心損失特性である。ある材料の透磁率はその材料が磁化されて行く能力、又はその材料が磁束を持つ (carry) 能力の指標である。透磁率は誘導された磁束の磁化力又は場の強さに対する比と定義される。磁性材料が急速に変化する場に曝されると、磁心の総エネルギーはヒステリシス損及び / 又は渦電流損の発生により低下せしめられる。ヒステリシス損は、鉄心部材内に保持された磁力に打つ勝つのに必要なエネルギーの消費によりもたらされる。渦電流損は、交流 (A C) 状態により引き起こされる変動性磁束 (changing flux) に因り鉄心部材中に電流が生ずることによりもたらされる。

40

磁心部材は積層薄鋼板から作られるが、これらの部材は小型の複雑な製品 (parts) 用の網状形状に加工するのが困難で、より高い周波数では大きな鉄心損失をこうむる。積層に基づくこれら磁心の利用は、過度の渦電流損を避けるために鋼板の面内にのみ磁束を持つ

50

必要があることによっても制限される。焼結された金属粉末が磁心部材用材料としての積層薄鋼板に代えて使用されてたが、これらの焼結製品も磁心損失が高く、主に直流(DC)操作に限られている。

被覆された鉄基材粉末を用いる磁心部材の、粉末冶金法による製造の研究は、ある種特定の物理的性質と磁性を他の性質に悪影響を及ぼすことなく向上させる鉄粉末組成物の開発に向けられて来た。所望とされる性質として、広い周波数範囲を通じて高い透磁率、高いプレス処理強さ、低鉄心損失及び圧縮成形法に対する安定性が挙げられる。

AC電力用途のための鉄心部材を成形する場合、鉄粒子は鉄心損失を減少させるために電気絶縁性の被覆を有することが一般に必要とされる。プラスチックコーティングの使用(山口に付与された米国特許第3,935,340号明細書)及び二重被覆鉄粒子の使用(ソイロー(Soileau)等に付与された米国特許第4,601,765号明細書)が鉄粒子を絶縁し、従って渦電流損を低下させるために採用された。これらの粉末組成物は、しかし、高レベルのバインダーを必要とするもので、その結果プレス処理鉄心製品の密度が低下し、従って透磁率が減少する。更に、このような粉末組成物から作られるプレス処理成形品の強さは一般に焼結により向上せしめられるだろうが、これら製品の所望とされる最終利用にはそのような処理工程は可能でない;即ち、磁心金属粒子の焼結が通常行われる昇温下ではその絶縁材料が分解され、そのため個々の粒子間の絶縁は一般に冶金による結合の形成で破壊されてしまうだろう。

本発明は、簡単に述べると、微粒化鉄粉末又は海綿鉄粉末の絶縁された粒子の粉末組成物を、所望によっては、熱硬化性樹脂と併用して圧縮成形又はダイプレス処理し、次いでその圧縮組成物を、好ましくは500以下の温度で熱処理することによって改良された磁性を有する部材を製造する方法を提供するものである。

DE3439397明細書には、粉末冶金法による軟磁性部材の製造法が開示される。この方法によれば、鉄粒子は絶縁性のリン酸塩層で包まれる。これらの粒子は次いで圧縮され、続いて酸化性雰囲気中で加熱される。場合によっては、リン酸塩で絶縁された鉄粒子は、圧縮工程に先立って、樹脂、好ましくはエポキシ樹脂と混合される。低ヒステリシス損を達成するために、500より高く、800より低い加熱温度が推奨される。更に、この熱処理は、好ましくは、減圧と常圧又は高圧を交互に加えて段階的に、かつ段階的に温度を上げて色々な時間行われるべきである。この公知の方法の利点は、最終工程が少なくとも600の温度で行われる熱処理について実験的に明らかにされている。

この教示に鑑みて、その熱処理を600より十分に低い温度で行うならば軟磁性に顕著な改善が得られることを見いだすことは全く予想外のことであった。本発明によれば、しかして、熱処理を350~550、好ましくは400~530、最も好ましくは430~520の温度で行うことが決定的に重要なことである。更に、公知の方法で推奨される、圧力を交互に変える必要及び温度を段階的に上げる必要がない。本発明による熱処理の期間は重要ではなく、通常20分から2時間までの間で変えることができるだろう。本質的には、0.5時間加熱するときと1時間加熱するときと同じ改善が得られる。更に、そしてDE3439397明細書に開示される方法とは対照的に、本発明は環境上有害な有機溶媒を何ら用いることなくリン酸による処理を採用、実施することができる。

この公知の発明のもう1つの特徴は、リン酸塩の絶縁性層が鉄粒子の0.1~1.5重量%を構成すべきことである。以下において議論されるように、この絶縁性“P-層”は本発明にとっても重要な特徴であるが、この本発明によれば更に少量のPが使用される。

更に具体的に述べると、本発明による方法は次の工程を含む。

微粒化(atomized)鉄粉末又は海綿鉄粉末の粒子をリン酸水溶液で処理して鉄粒子の表面にリン酸鉄の層を形成する。このリン酸による処理は室温で約0.5~約2時間行うのが好ましい。次に、その水を、乾燥粉末を得るために、約90~約100の温度で蒸発させる。もう1つの態様によれば、リン酸はアセトンのような有機溶媒中に与えられる。

リンの層は可能な限り薄く、そして同時に1つ1つの粒子をできるだけ完全に絶縁しているべきである。しかして、より大きな比表面積を有する粉末に対しては、リンの量はより

10

20

30

40

50

多くなければならない。海綿鉄粉末は比表面積が微粒化鉄粉末より大きいので、海綿鉄粉末ではPの量は微粒化鉄粉末に対するよりも一般に多くすべきである。その第一のケースでは、P量は粉末に対して0.02~0.06重量%、好ましくは0.03~0.05重量%の間で変えることができるが、これに対して後者のケースではP量は粉末に対して0.005~0.03重量%、好ましくは0.008~0.02重量%の間で変えることができるだろう。この非常に薄い絶縁層はP含有量が非常に低いことが特徴であるが、この層が本発明による熱処理に分解なしに耐えることができるということは全く予想外のことであった。

その乾燥したP-被覆粉末は、所望によっては、熱硬化性樹脂と混合することができるだろう。このことは、最終部材が比較的高い引張強さを有すべきことが必要とされる場合に特にそうである。1つの好ましい態様によれば、フェノール-ホルムアルデヒド樹脂が熱硬化性樹脂として用いられる。商業的に入手できる熱硬化性樹脂の1例は、スウェーデン（Sweden）のパーストーブ ケミテック社（Perstorp Chemitec）からのペラシト（Peracit：登録商標）である。この樹脂の粒子—微粒子の大きさのものであるのが好ましい—がP-被覆鉄粒子と混合される。ペラシト（登録商標）を用いるときは、約150の硬化温度が都合よく、そして硬化時間は約1時間であることができるだろう。

前記の圧縮工程に先立って、P-被覆鉄粉末、又は樹脂を含有するP-被覆鉄粉末は適当な潤滑剤と混合される。別法として、ダイが潤滑化される。潤滑剤の量はできるだけ少なくすべきである。本発明により有用な潤滑剤の1つのタイプは、スウェーデンのホガナスAB社

(Höganäs AB)

から入手できるケノリユーベ（Kenolube：登録商標）で、これは鉄粉末に対して0.3~0.6重量%の量で使用できる。圧縮工程は常用の装置で、通常は周囲温度及び約400~1800MPaの圧力において行われる。

最終の熱処理工程において、圧縮された混合物は350~550の温度に付される。好ましくは、その温度は420~530の間、最も好ましくは430~520の間で変わる。この熱処理は1工程で行うのが好ましいが、別法として樹脂を推奨された硬化温度において第一工程で行ってもよいだろう。上記で議論したタイプのフェノール-ホルムアルデヒド樹脂については、硬化温度は約150であり、また硬化時間は約1時間である。

本発明を次の実施例で例証する。

実施例 1

海綿鉄粉末及び微粒化鉄粉末をリン酸水溶液で処理してその表面にリン酸塩層を形成した。乾燥後、その粉末を0.5%のケノリユーベ及び/又は樹脂と混合し、そしてダイで800MPaにおいて圧縮成形して外径5.5cm、内径4.5cm、高さ0.8cmのトロイドを形成した。この部材を次に空気中で150において、また別法では500において60(30)分間加熱した。

高周波数、即ち1kHz以上で操作される材料では高い透磁率(μ)が必要になり、渦電流損は周波数が増加すると共に透磁率を急速に減少させる。周波数5kHzにおいて非常に低い値から90までにも及ぶ透磁率値を有する絶縁された鉄粉末の鉄心の製造が可能である。渦電流損を最小限に抑えるのに有効な絶縁層を保持させつつ透磁率を高めるために本発明による熱処理を用いると、表1で説明されるとおり、5kHzにおいて130もの高い透磁率値が得られる。

表 1

温度	海綿鉄 <150 μm ベラシト: +0.5% ケノリユ-ベ: +0.5%	海綿鉄 <150 μm 樹脂: +0% ケノリユ-ベ: +0.5%	微粒化鉄 <150 μm ベラシト: +0.5% ケノリユ-ベ: +0.5%
150°C	5kHzでの $\mu=75$	5kHzでの $\mu=77$	5kHzでの $\mu=73$
500°C	5kHzでの $\mu=115$	5kHzでの $\mu=130$	5kHzでの $\mu=100$
600°C		5kHzでの $\mu=42$	

10

粒径の小さい鉄粉末の使用は、安定な透磁率を達成するための周波数範囲を広げる。1000 という一定の透磁率は、この鉄粉末の粒径を < 40 μm まで小さくすると、25 kHz で維持される。

上記の熱処理法で総損失が相当に低下せしめられる。積層鋼板の通常材料とは対照的に、絶縁粉末の総損失は低周波数で比較的高いヒステリシス損により支配される。しかし、熱処理に因りこのヒステリシス損が減少せしめられる。絶縁層は、驚くべきことに、この熱処理で分解されないで、渦電流損は低いままである。より高い周波数では、大きな渦電流損は総損失を相当に増加させる。表 2 で説明されるように、熱処理は絶縁粉末のヒステリシス損を低下させ、微粒化品の場合で、通常の積層鋼板の 14 W / kg と比較して、13 W / kg の総損失をもたらす。

20

表 2

参考例 通常の積層 鋼板 1018	温度	海綿鉄 <150 μm ベラシト: +0% ケノリユ-ベ: +0.5%	微粒化鉄 <150 μm ベラシト: +0.5% ケノリユ-ベ: +0.5%
$P_{1.5/50}$ 14W/kg	150°C	$P_{1.5/50} =$ 25W/kg	$P_{1.5/50} =$ 20W/kg
	500°C	$P_{1.5/50} =$ 20W/kg	$P_{1.5/50} =$ 15W/kg 又は樹脂なしで 13W/kg
	600°C	$P_{1.5/50} =$ 27W/kg	

30

高透磁率値をもたらすために、粒径の大きい鉄粉末を使用することは知られている。これら粒子を絶縁すると総損失が低下する。本発明により粒径 > 150 μm の絶縁鉄粉末に対して熱処理を使用すると、< 150 μm の粒子により達成された総損失に完全に匹敵する $P_{1.5/50} = 13 \text{ W / kg}$ という低い総損失がもたらされる。しかし、> 150 μm の粉末の最大透磁率は、粒径が < 150 μm の場合の 400 に比較して 500 である。

40

より高い周波数では、常用材料における支配的渦電流損は、周波数を上げると共により速い速度で総損失を増加させる。驚くべきことに、前記熱処理は、金属と金属とを接触させる原因となる絶縁層の分解を引き起こさなかった。この絶縁された材料の低い渦電流損は、周波数の増加と共に総損失をより低下させる。このことは表 3 の実施例によって例証される。この実施例の場合、絶縁粉末の低い渦電流損は、熱処理後の微粒化品について 65 W / kg の総損失をもたらしている。常用の積層鋼板の高い渦電流損は、1000 Hz、0.5 テスラで 115 W / kg の総損失をもたらす—その結果は 150 で熱処理された絶縁粉末の総損失を越える。

表 3

参考例 通常の積層 鋼板 1018	海綿鉄 <150 μm ベラシト:+0.5% ケリユーベ:+0.5%	微粒化鉄 <150 μm ベラシト:+0.5% ケリユーベ:+0.5%
$P_{0.5/1000} =$	150°C	500°C
115W/kg	$P_{0.5/1000} =$	$P_{0.5/1000} = 75\text{W/kg}$
	100W/kg	又は糖蜜なしで65W/kg

10

実施例 2 - ドイツ特許第 3 4 3 9 3 9 7 号による方法と本発明との比較

スウェーデンのホガナス A B 社から入手できる水微粒化鉄粉末 A B C 1 0 0 . 3 0 を上記ドイツ特許明細書の実施例 1 に記載のとおりリン酸により処理し、乾燥した。1 0 0 で 1 時間乾燥した後、その粉末を 8 0 0 M P a で圧縮成形し、その圧縮製品を 5 0 0 で 3 0 分間加熱した。

得られた製品を本発明に従って製造した製品と比較した。本発明のこの製品は同じ基材粉末 A B C 1 0 0 . 3 0 から製造されたが、P - 含有量が 0 . 0 1 重量%となるようにリン酸処理されたものであった。これは、基材粉末を 1 . 8 5 % のオルトリン酸水溶液に付すことによって達成された。即ち、そのオルトリン酸水溶液は 8 m L / k g の量で鉄粉末に加えられ、1 分間混合された。得られた混合物を 1 0 0 で 6 0 分間乾燥し、そしてその粉末を 8 0 0 M P a で圧縮成形し、その圧縮製品を空气中で 5 0 0 において 3 0 分間加熱した。その絶縁層が実際にリン酸塩から作られているかどうかは明確ではない。しかし、その層は極めて薄く、これまでのところは化学的組成に関して同定はなされていない。比較により、流動性、生強度及び密度のような測定された性質については本発明による製品の方が優れていることが明らかとなった。

20

下記は磁性の総損失と透磁率の比較である：

総損失

ドイツ特許による製品	本発明による製品
$P_{0.5T/1000\text{Hz}} = 88\text{W/kg}$	$P_{0.5/1000\text{Hz}} = 75\text{W/kg}$
$P_{1.5T/1000\text{Hz}} = 850\text{W/kg}$	$P_{1.5/1000\text{Hz}} = 700\text{W/kg}$

30

 H_{max} 、5 0 H z / 0 . 5 T での透磁率 μ

ドイツ特許による製品	本発明による製品
1 6 0	3 2 0

ドイツ特許及び本発明による粉末の P - 含有量は、それぞれ 0 . 2 0 6 及び 0 . 0 1 3 であった。

40

上記の比較は、ドイツ特許による方法と比較して簡易化されている本発明による方法はエネルギー必要量が少なく、かつ環境上有利であり、しかも優れた性質を有する製品をもたらすことを明らかにしている。

本発明に関して更に以下の内容を開示する。

(1) 次の：

a) 微粒化鉄粉末又は海綿鉄粉末の粒子を、リン酸で、絶縁性のリンを含有する層材料を形成するのに十分な温度と時間で、リン含有量が微粒化鉄粉末に対しては 0 . 0 0 5 ~ 0 . 0 3 重量%、海綿鉄粉末に対しては 0 . 0 2 ~ 0 . 0 6 重量%となるように処理し、

b) 得られた粉末を乾燥し、

50

- c) その乾燥粉末を、所望によっては、熱硬化性樹脂と混合し、
- d) その粉末をダイで圧縮成形し、そして
- e) 得られた部材を 350 ~ 550 の温度に加熱する

工程から成る、改良された軟磁性を有する製品の製造方法。

(2) 微粒化鉄粉末のリン含有量が 0.008 ~ 0.02 重量%であり、海綿鉄粉末ではそれが 0.03 ~ 0.05 重量%であることを特徴とする、(1)に記載の方法。

(3) 工程 e) の温度が 400 ~ 530 の間、好ましくは 430 ~ 520 の間であることを特徴とする、(1)又は(2)に記載の方法。

(4) 熱硬化性樹脂がフェノール - ホルムアルデヒド樹脂であることを特徴とする、(1) ~ (3) のいずれかに記載の方法。

10

(5) 微粒化鉄粉末又は海綿鉄粉末の粒子をリン酸水溶液で処理することを特徴とする、(1) ~ (4) のいずれかに記載の方法。

(6) 樹脂を鉄粉末に対して 0.1 ~ 0.6 重量%の量で添加することを特徴とする、(5)に記載の方法。

(7) 最終加熱工程に先立って、樹脂の硬化温度で追加の加熱工程を実施することを特徴とする、(1) ~ (6) のいずれかに記載の方法。

(8) 追加の加熱工程を 120 ~ 160 の温度で行うことを特徴とする、(7)に記載の方法。

(9) 圧縮成形工程を周囲温度で行うことを特徴とする、(1) ~ (8) のいずれかに記載の方法。

20

(10) 圧縮成形工程に先立って鉄粉末に潤滑剤を加えることを特徴とする、(1) ~ (9) のいずれかに記載の方法。

(11) 鉄粒子が約 10 ~ 200 ミクロンの重量平均粒径を有することを特徴とする、(1) ~ (10) のいずれかに記載の方法。

(12) 加熱工程を 20 分 ~ 2 時間、好ましくは長くても 1 時間行うことを特徴とする、(1) ~ (11) のいずれかに記載の方法。

(13) リン酸による処理を周囲温度で約 0.5 ~ 約 2 時間行い、得られた粉末を約 90 ~ 約 100 の温度で乾燥することを特徴とする、(1) ~ (12) のいずれかに記載の方法。

(14) 0.005 ~ 0.03 重量%のリンを含む絶縁層を有する微粒化鉄粉末、又は 0.02 ~ 0.06 重量%のリンを含む海綿鉄粉末の粒子より本質的に成る、(1) ~ (13) のいずれかに記載の製品を製造するための鉄粉末。

30

フロントページの続き

審査官 菊地 聖子

- (56)参考文献 特開昭63-104408(JP,A)
特開昭63-134602(JP,A)
特開昭57-039103(JP,A)
特開昭63-006809(JP,A)
特開平7-245209(JP,A)
特開平6-260319(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

B22F 1/00 - 8/00
C22C 1/04 - 1/05
C22C 5/00 - 25/00
C22C 27/00 - 28/00
C22C 30/00 - 30/06
C22C 33/02
C22C 35/00 - 45/10
H01F 1/12 - 1/375
H01F 1/44
H01F 41/00 - 41/04
H01F 41/08 - 41/10