平成 31 年度環境省委託業務

平成 31 年度省 CO2 型リサイクル等設備技術実証事業 (軟磁性合金薄帯の粉体化によるリサイクル技術の実証) 委託業務

成果報告書

令和2年2月

パナソニック株式会社

要 約

1. 背景と目的

車載分野を中心に、コンバータやインバータなどに使用される高飽和磁束密 度の磁性粉を利用した大電流デバイスの創出が進展し、高飽和磁束密度の軟磁 性材料の国内市場は、2025年には1,827億円、43万トンまで成長すると予測され ている。ところが、粉体製造(アトマイズ粉)プロセスにおいて、鉄を溶融す るために莫大なエネルギーが必要となっている。そこで、本実証事業では、軟 磁性合金薄帯が使用されているモータや配電用変圧器などの製造工程で廃棄さ れている薄帯の端材をリサイクル原材料として、粉体化することにより、軟磁 性合金の粉砕粉を製造する。軟磁性合金薄帯の粉砕粉を使用してコア成形し、 磁気デバイスへ適用することで、金属を溶融して製造する軟磁性合金のアトマ イズ粉と比較して、消費電力量を削減し、二酸化炭素の排出量を削減すること を目的とする。

本事業の概要

軟磁性合金薄帯の粉砕粉は、薄帯の端材を利用するため二酸化炭素の排出量 が少ないが、機械粉砕の応力歪により従来のアトマイズ粉に比べ磁気特性が劣 化する。そこで、実用化に向けて、平成 30 年度は、図 S-1 に示す、①粉砕、② ナノ結晶化、③絶縁膜形成の工法検証を実施し、ターゲットスペック達成に目 処を付けた。平成 31 年度は、量産に向けて、各工程の生産性向上(歩留向上、 スループット向上)を行った。



図 S-1 軟磁性合金薄帯の粉体化

3. 粉砕の歩留向上の検討

平成30年度は、サイクロンミルを用いて、低応力・低酸化の球状粉を作製する工法を確立したが、量産に向けては粉砕ロスが多いことが課題であった。そ

こで、平成31年度は、低応力で微小粉砕できる粉砕装置を構築し、歩留向上を 検討した。

磁気デバイスで使用されている粒子径と形状を調査し、サイクロンミルによる粉砕で生成される粉砕粉にマッピングした。 10μ m以上 50μ m以下の球状粉と 50μ m~ 100μ mの偏平粉が磁気デバイスに適用できることを確認し、 100μ m以下の粉砕粉を良品ターゲットとした。調査結果は、「7.粉砕ロス材の他商品展開性の検討」で述べる。

低応力で微小粉砕できる粉砕装置として、粉砕時の応力による歪が少ない粉体を生成できるサイクロンミルを選択した。歩留およびスループットを向上したサイクロンミル量産検証機の装置構成を図S-2に示す。まず、原料である薄帯の供給と粉砕後の粉体の回収の自動化と、粉砕容量を10倍に大型化し、スループットの向上を図った。その結果、スループット3.5kg/hとし、目標スペック(2.1kg/h以上)を達成した。



図S-2 サイクロンミル量産検証機の装置構成

次に、良品ターゲットでない100 μ m以上の粉砕粉を振動ふるいで分級し、再 粉砕する仕組みを付加し、歩留の向上を図った。薄帯と100 μ m以上の粉砕粉を 半量ずつ混合して粉砕することにより歩留を向上させた。100 μ m以下の粉砕粉 の歩留と粉砕時間の関係の検証結果を図S-3に示す。10分間粉砕することにより、 歩留64%とし、目標スペック(64%以上)を達成した。



図S-3 100 µ m以下の粉砕粉の歩留と粉砕時間の検証結果

4. ナノ結晶化のスケールアップの検討

平成30年度は、熱プレス機を用いて、粉体を熱暴走させず均一加熱する工法 を確立したが、量産に向けてはスループットが低いことが課題であった。そこ で、平成31年度は、多量の粉体を均一に加熱できるナノ結晶装置を構築し、ス ケールアップを検討した。

多量の粉体を均一に加熱できるナノ結晶装置として、粉体の結晶化熱を吸熱 できる熱プレス機を選択した。スループットを向上した熱プレス量産検証機の 装置構成を図S-4に示す。粉砕後の粉体の供給を自動化、熱プレスの高速化とプ レス板の大判化、粉体の回収の方式検討により、スループットの向上を図った。 その結果、スループット11.8kg/hとし、目標スペック(1.5kg/h以上)を達成し た。



図S-4 熱プレス量産検証機の装置構成

一方、図S-5に示すように、熱プレスの高速化により、熱膨張で粉体内の空気 と共に粉体が排出され、歩留の低下を招いた。そこで、プレス板が粉体と接触 する直前に、プレス板の下降速度が遅くなるように制御することで、膨張した 空気を排出し粉体を排出させないようにし、歩留の向上を図った。その結果、 歩留90%とし、目標スペック(90%以上)を達成した。



図S-5 粉体の排出抑制機構

5. 絶縁膜形成のスケールアップの検討

平成30年度は、自動攪拌機を用いて、200℃以下で均一膜を形成する工法を確 立したが、量産に向けてはスループットが低いことが課題であった。そこで、 平成31年度は、表面の凹凸が大きい粉砕粉の粒子表面に均一膜を形成できる絶 縁膜形成装置を用いて、スケールアップを検討した。

ゾルーゲル法で形成したSiO2膜を使用し、粒子表面に均一膜を形成できる絶 縁膜形成装置として、攪拌方式のアキシャルミキサーを選択した。アキシャル ミキサーで処理量をアップし、成膜性と耐圧を確保できるように攪拌条件を最 適化した。実験結果を表S-1に示す。攪拌前に待機時間を設けてSiO2膜を形成す るTEOS溶液を反応させた後、攪拌時間を最適化することにより、成膜性と耐圧 を確保した。このとき、スループット4.8kg/hで、目標値(1.4kg/h以上)を達 成した。

| | 条件1 | 条件2 | 条件3 |
|----------------|-----|-----------|-----------|
| 攪拌前 待機時間(分) | 0 | 5 (白濁) | 5 (白濁) |
| 攪拌時間(分) | 10 | 10 | 60 |
| 成膜性 | × | × | 0 |
| 耐圧(V/mm) | 102 | 75 | ○357 |

表S-1 成膜性と耐圧の結果

※市販のFeSi粉末使用

一方、鉄粒子中にSiO2粒子の残渣が発生していたが、TEOSの加水分解反応を 抑制することで、残渣が発生しないプロセスを確立した。表S-2に示すように、 TEOSとアンモニア水の液量を10分の1に削減することにより残渣を除去できる ことを確認した。

| | Before | After |
|--------|----------------------------|------------------|
| SEM画像 | ×15000 Si02残渣(Ф 300nm)有 | ×3000 Si02残渣無 |
| エタノール | 770 1/10 | に削減 28 |
| アンモニア水 | 68 | 6 |
| TEOS | 26 | 2 |
| 鉄 | 100 | 100 |

表S-2 Si02残渣除去プロセスの検討結果

※鉄粒子のモル濃度を100としたときのモル濃度比

6. 一括ライン製造による高スループット化の検討

粉砕、ナノ結晶化、絶縁膜形成の3工程を繋ぐ設備を検討し、軟磁性合金薄帯 の粉砕粉の一括ライン製造によるスループット向上を検討した。

主要3工程(①②③)を繋ぐ工程として、サイクロンミルに投入できるサイズ に薄帯を粉砕する「粗粉砕」、サイクロンミルで生成される粉体を分級する「分 級」、熱プレス機への粉体供給を自動化するスキージによる「印刷」、ゾルー ゲル法でSiO2膜を形成する際に生成されるSiO2粒子の「残渣除去」を検討した。 それぞれの工程で使用する設備のスループットは、主要3工程のスループット以 上とした。それぞれの工程のスループットは、粗粉砕31.8kg/h、分級43.4kg/h、 印刷12.1kg/hで、目標スペック(粉砕工程のスループット3.5kg/h以上)を達成 した。残渣除去は、SiO2反応プロセスの改善により、工程を省略することがで きた。 7. 粉砕ロス材の他商品展開性の検討

他商品で使用する粉体の必要スペックを調査し、粉砕ロス材の他商品への展開可能性を検討した。

サイクロンミルで生成される粉砕粉の特徴である粒子径と形状を明確にし、 磁気デバイスで使用する粉体の粒子径と形状を調査して、商品の適用可能性を 見極めた。調査結果を表S-3に示す。サイクロンミルで生成される10 μ m~50 μ m の球状粉は、スマホ、情報機器、車載ECU/DCDCなどに適用可能である。また、 50 μ m~100 μ mの偏平粉は、ノイズ抑制シートに適用可能である。

適用可能性あり

表S-3 磁気デバイスで使用する粒子径と形状

| | 粒子径(µm) | 10 | 20 | 30 | 40 | 50 | 60 | 70 | 80 | 90 | 100 |
|--------|--------------------------|--------------|--------|----|---------------------|----|----|------|------|-------------------|-----|
| サ 粉 | イクロンミル 砕粉 SEM画像 ×1000 | ×5 | 00 | × | 500 | | | × 10 | 0 | ALC: NUMBER AND A | |
| | スマホ | 球形 5 | 形 | 球刑 | \$82 <mark>%</mark> | | | | | | |
| 磁 | 情報機器 | 球形 11X 10 | 形 X | 球刑 | ≶80 <mark>%</mark> | | | | | | |
| 気デ | 住宅充填システム | 球形 20% | | 球刑 | ≶80 <mark>%</mark> | | | | | | |
| バイ | 車載ECU/DCDC | 球形 10% 5 | 形 | 球刑 | ≶85 % | | | | | | |
| l^ | ノイズ抑制シート | | | 偏平 | z 30% | | | 偏 | 平70% | | |

8. 他社薄帯材料への展開性の検討

粉砕、ナノ結晶化、絶縁膜形成の3工程で構築した設備を用いて、他社薄帯材 料への展開可能性を検討した。

自社薄帯の粉体化で確立したプロセスレシピで他社薄帯の粉砕粉を作製し、 粉体の基本特性を評価した。評価結果を表S-4に示す。自社薄帯材料と同程度ま で微粉化できることを確認し、磁気特性(保磁力)も目標値(720A/m以下)を 達成した。他社薄帯の飽和磁束密度は、自社薄帯より低下しているが、薄帯材 料の物性差によるものである。したがって、自社薄帯の粉体化のプロセスレシ ピで他社薄帯へ展開可能である。

| | ÷ • | | | |
|----|-------------------|----------|-----------|-----------|
| | 項目 | 自社材料 | A社材料 | B社材料 |
| | SEM画像 | ×1000 | ×1000 | ×1000 |
| 粉体 | 粒径 (D50%) | 21.4[μm] | 22.0[μm] | 23.2[μm] |
| 基本 | 保磁力(目標720[A/m]以下) | 345[A/m] | ○546[A/m] | ○483[A/m] |
| 特性 | 飽和磁束密度 | 1.76[T] | 1.61[T] | 1.61[T] |

表S-4 他社薄帯材料の評価結果

9. 歩留・スループットの試験検証

粉砕、ナノ結晶化、絶縁膜形成の3工程の設備を構築し、各工程の歩留・スル ープットを検証した。

歩留・スループットの試験結果を表S-5に示す。各工程とも目標値を達成した。

表S-5 歩留・スループットの試験結果

| | | | 粉砕工程 | | ナノ結晶 | 晶化工程 | 絶縁膜形成工程 | | |
|---------------|----|------|------|------|------|-------|---------|------|--|
| | | 粗粉砕 | 微粉砕 | 分級 | 印刷 | ナノ結晶化 | 絶縁膜形成 | 残渣除去 | |
| | 目標 | 99 | 66 | 98 | 99 | 91 | 96 | 99 | |
| 歩留 (%) | 実績 | 99 | 66 | 98 | 99 | 91 | 96 | 工程省略 | |
| | 判定 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | |
| | 目標 | 2.1 | 2.1 | 2.1 | 1.5 | 1.5 | 1.4 | 1.4 | |
| スループット (kg/h) | 実績 | 31.8 | 3.5 | 43.4 | 12.1 | 11.8 | 4.8 | 工程省略 | |
| | 判定 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | |

10. 粉体製造プロセスのCO2削減効果の試験検証

粉砕、ナノ結晶化、絶縁膜形成の3工程の設備を構築し、C02排出量を算出し、 アトマイズ粉の製造で排出されるC02排出量と比較して、C02排出量の削減効果 を検証した。

軟磁性合金粉体を用いた磁気デバイス製品のライフサイクルの中で、本事業の対象である、資源採取から粉体生成までの製造プロセスを評価対象とした。 現状の軟磁性合金粉体の製造プロセスをベースラインとして、本事業の製造プロセスと比較した。このとき、絶縁処理工程は、現状の製造プロセスと本事業の製造プロセスで大差がないと想定し、評価範囲外とした。比較するCO2排出量の原単位としては、絶縁処理前の軟磁性合金1kgあたりのCO2排出量とした。

本事業で実証した工程による、現状の工程に対するCO2排出量の削減量は、図 S-6に示すように、9.6kg-CO2/kg-M [12.5kg-CO2/kg-M - 2.9kg-CO2/kg-M] と なり、現状の製造プロセスに対し、76%削減することができた。



^{※1} 絶縁処理工程は、現状と本事業で製造プロセスに大差がないと仮定し、評価範囲外とした ※2 002排出量は、各工程のロスを考慮

11. 試験検証等で得られた有用性評価

「9. 歩留・スループットの試験検証」「10. 粉体製造プロセスのCO2削減効 果の試験検証」により、採算性を確保でき、CO2排出量の削減となりえるため、 有用である。

12. まとめ

・本事業では、平成30年度は、粉砕、ナノ結晶化、絶縁膜形成の工法検証を実施し、ターゲットスペック達成に目処を付け、工法検証機を構築した。平成31 年度は、量産に向けて、各工程の生産性(歩留、スループット)を向上し、量 産検証機を構築した。

・事業全体として、歩留55%、スループット3.5kg/h、C02排出量2.9kg-C02/kg-M
 であった。目標値(歩留54%以上、スループット1.4kg/h以上、C02排出量
 3.6kg-C02/kg-M以下)を達成した。

・事業化に向けたマイルストーンを表S-6に示す。

図S-6 現状と本事業におけるCO2排出量の評価範囲とCO2排出量

| 2018 | 2019 | 2020 | 2021 | 2022 | 2023 | 2024 | 2025 | | | |
|---|---------------------------------|-------|------|------|------|----------|-------|--|--|--|
| 工法検証 ・粉砕工法 ・ナノ結晶化工法 ・絶縁膜形成工法 | 量産検証 ・スケールアッ ・歩留向上 | 量産機製作 | 量產機 | 検証 | 信頼性 | 社内 にて | 工場 量産 | | | |
| | 一世社材料比較 | | | | > | ~ 他社材 | 料展開 | | | |

表S-6 事業化に向けたマイルストーン

Summary

1. Background and objective

We have seen, especially in automotive sectors, the advancement of large-current devices using magnetic powder with high saturation magnetic flux density for use in converters and inverters. The domestic market for soft magnetic materials with high saturation magnetic flux density is expected to reach 182.7 billion yen or 430,000 tons by 2025. However, the manufacturing of powder (atomized powder) requires a large amount of energy to melt iron. Therefore, in this demonstration, we manufacture pulverized powder of soft magnetic alloys by recycling and reducing to powder unused thin ribbons discarded from the manufacturing processes of motors and distribution transformers that use soft magnetic alloy thin ribbons. The objective here is to mold cores using the pulverized powder of soft magnetic alloy thin ribbons for application to magnetic devices, and reduce electricity consumption and carbon dioxide emissions when compared to the atomized powder of soft magnetic alloys manufactured by metal melting.

2. Project overview

The pulverized powder of soft magnetic alloy thin ribbons involves less carbon dioxide emissions since discarded thin ribbons are used in its production; however, its magnetic characteristics are poorer than those of conventional atomized powder because of stress strain from mechanical pulverization. Therefore, as part of our efforts in FY2018 toward practical application, we conducted method verifications for (i) pulverization, (ii) nanocrystallization, and (iii) insulating film formation, as shown in Figure S-1, concluding that we would be able to achieve the target specifications. In FY2019, we enhanced productivity (yield and throughput) in each process toward mass production.



Figure S-1. Reduction of soft magnetic alloy thin ribbons to powder

3. Examination of methods to raise the yield of the pulverization process

In FY2018, we established a method to produce spherical powder with low stress and low oxidation using a cyclone mill, but the problem with it was the excessive loss on pulverization for mass production. Then, in FY2019, we built a pulverizing machine capable of micro-pulverization at low stress to explore the possibility of a higher yield.

We researched particle diameters and shapes used in magnetic devices and mapped them to pulverized powder generated by pulverization with the cyclone mill. We confirmed that spherical powder between 10 μ m and 50 μ m and flat powder between 50 μ m and 100 μ m could be applied to magnetic devices, and decided to consider pulverized powder of 100 μ m or less as having satisfactory quality. The research results will be described in Section 7 "Examination of possible application of discarded material from pulverization to other products."

As a pulverizing machine capable of micro-pulverization at low stress, we picked up a cyclone mill, which can generate powder with low strain from stress during pulverization. Figure S-2 shows the composition of the cyclone mill for mass production tests that has a higher yield and throughput. First, we tried to raise the throughput by automating the feeding of thin belts as the raw material and the collection of powder after pulverization and increasing the pulverization capacity 10-fold. As a result, we achieved a throughput of 3.5 kg/h, meeting the target specification (2.1 kg/h or more).



Figure S-2. Composition of the cyclone mill for mass production tests

Next, we tried to increase the yield by adding a system to classify non-conforming pulverized powder of 100 μ m or more with vibration screens for further pulverization. We raised the yield by pulverizing a 50:50 mix of thin ribbons and pulverized powder of 100 μ m or more. Figure S-3 shows the verified relationship between yield and pulverizing time for pulverized powder of 100 μ m or less. By using 10-minute pulverization, we achieved a yield of 64%, meeting the target specification (64% or more).



Figure S-3. Verified relationship between yield and pulverizing time for pulverized powder of 100 $\,\mu\,{\rm m}$ or less

4. Examination of method to scale up nanocrystallization

In FY2018, we established a method using a hot pressing machine for uniform heating without thermal runaway in powder, but the problem was that its throughput for mass production was too low. Therefore, in FY2019, we installed a device for nanocrystalization that is capable of the uniform heating of large quantities of powder and examined a method to scale up the process.

As a device for nanocrystalization that is capable of the uniform heating of large quantities of powder, we chose a hot pressing machine that can absorb the heat of powder crystallization. Figure S-4 shows the composition of the hot pressing machine for mass production tests that delivered a higher throughput. We tried to raise the throughput by automating the feeding of powder after pulverization, increasing the speed of the hot pressing machine, installing a larger pressing plate, and examining a method of collecting the powder. As a result, we achieved a throughput of 11.8 kg/h, meeting the target specification (1.5 kg/h or more).



Figure S-4. The composition of the hot pressing machine for mass production tests

In the meantime, as shown in Figure S-5, the increased speed of the hot pressing machine caused a thermal expansion that forced powder to be discharged together with air in it, resulting in a lower yield. Therefore, as a measure to raise the yield, we controlled the pressing plate

immediately before it came into contact with the powder so that its lowering speed would be slower and the expanded air would be discharged but the powder would not. As a result, we achieved a yield of 90%, meeting the target specification (90% or more).



Figure S-5. Mechanism for reducing powder discharge

5. Examination of methods to scale up insulation film formation

In FY2018, we established a verification method using an automated mixer to form a uniform film at below 200 degrees C; however, the problem with it was that its throughput for mass production was too low. Therefore, in FY2019, we examined a method of scaling up the process using an insulation film formation machine capable of making uniform films on the particle surface of pulverized powder with major surface irregularities.

We used SiO2 films formed by the sol-gel method, and chose a stirring-type axial mixer as an insulation film formation machine capable of making uniform films on the particle surface. We optimized the stirring conditions to increase the throughput of the axial mixer and secure film formation capabilities and pressure resistance. Table S-1 shows the test results.

We secured film formation capabilities and pressure resistance by allowing pre-stirring stand-by time for the reaction of a TEOS solution used for SiO2 film formation, and then optimizing the mixing time. Then, we achieved a throughput of 4.8 kg/h, meeting the target (1.4 kg/h or more).

| | Set of conditions #1 | Set of conditions #2 | Set of conditions #3 |
|--|----------------------------|----------------------------|----------------------------|
| Pre-stirring stand-by time (minutes) | 0 | 5 (Clouded) | 5 (Clouded) |
| Stirring time (minutes) | 10 | 10 | 60 |
| Film formation capabilities | X | X | 0 |
| Pressure resistance (V/mm) | 102 | 75 | O 357 |

Table S-1. Results of film formation capabilities and pressure resistance

* FeSi powder available on the market was used.

In the meantime, there was SiO2 particle residue in iron particles, but we established a process that leaves no such residue by suppressing the hydrolysis reaction of the TEOS. As shown in Table S-2, we confirmed that we were able to remove the residue by reducing the amount of TEOS and ammonia water to one tenth.

Table S-2. Results of examination of the SiO2 residue removal process

| | Before | After |
|---------------|--|-------------------------------------|
| SEM image | ×15000 Si02 residue (Ф 300 nm) remaining | × 3000 No remaining SiO2 residue |
| Ethanol | 770 Reduction | ed to tenth 28 |
| Ammonia water | 68 | 6 |
| TEOS | 26 | 2 |
| Iron | 100 | 100 |

^{*} The molarity ratio where the molarity of iron particles is set to 100

6. Examination of the possibility of increasing the throughput by integrated line production

We examined equipment connecting the three processes, pulverization, nanocrystallization, and insulation film formation, in order to raise the throughput by integrated line production of the pulverized powder of soft magnetic alloy thin ribbons.

As the connecting processes of the three main processes ((i), (ii), and (iii), we examined "coarse pulverization," which pulverizes the thin belts to sizes suitable for feeding to the cyclone mill; "classification," which classifies powder generated with the cyclone mill; "printing" by a squeegee, which automates powder feeding to the hot pressing machine; and "removal of residue" of SiO2 particles generated from SiO2 filter formation by the sol-gel method. The throughput of equipment used in each connecting process was greater than or equal to that of the main three processes. The throughput achieved was 31.8 kg/h for coarse pulverization, 43.4 kg/h for classification, and 12.1 kg/h for printing, meeting the target specification (not lower than the throughput of the pulverization process, 3.5 kg/h). We were able to omit the residue removal process by improving the SiO2 reaction process.

7. Examination of possible application of discarded material from pulverization to other products

We researched the required specifications of powder for use in other products and examined the possible application of discarded material from pulverization to other products.

We clarified particle diameters and shape characteristics of the pulverized powder generated with the cyclone mill, researched the sizes and shapes of powder used in magnetic devices, and assessed the possible application. Table S-3 shows the research results. Spherical powder of 10 μ m to 50 μ m generated with the cyclone mill can be used in smartphones, information devices, automobile ECU/DCDC, etc. Further, flat powder of 50 μ m to 100 μ m can be used in noise suppression sheets.

| | | | | | | | | | Δ. | pplica | ble |
|-----------------|---|-------------------------------|-------|-------|-------|----------|----|-------|--------|--------|-----|
| | Particle diameter (µm) | 10 | 20 | 30 | 40 | 50 | 60 | 70 | 80 | 90 | 100 |
| Cyc Pu in | clone mill lverized powder SEN images ×1000 | × 500 | | × 5 | 00 | | | × 100 | | | |
| 90 | Smartphone | Spherical Spherics 11% 7% | al Sp | heric | al 82 | % | | | | | |
| devi | Information device | Spherical Spherics 11% 10% | al Sp | heric | al 80 | % | | | | | |
|)tic | House filling system | Spherical 20% | Sp | heric | al 80 | x | | | | | |
| Magne | Automobile ECU/DCDC | Spherical Spherics 10% 5% | al Sr | heric | al 85 | X | | | | | |
| | Noise suppression sheet | | | Flat | 30% | | | Fla | it 70% | | |

Table S-3. Particle diameters and shapes used in magnetic devices

8. Examination of possible application to other companies' ribbon materials

We examined possible application to other companies' thin ribbon materials, using the equipment installed in the three processes of pulverization, reduction to nanocrystals, and insulating film formation.

We fabricated the pulverized powder of other companies' thin ribbons, applying the process recipe established when reducing our own thin ribbons to powder, and evaluated the powder's basic characteristics. Table S-4 shows the evaluation results. We confirmed that we were able to powder it to similar fine levels to our own, and met the target magnetic property (coercivity) (720 A/m or less). Other companies' thin ribbons have a lower saturation magnetic flux density than ours because of the differences in the physical property of the materials. Therefore, it is possible to apply the pulverization process recipe for our thin belts to other companies'.

| Item | | Our own material | Company A's material | Company B's material |
|---------------------|---------------------------------------|------------------|----------------------|----------------------|
| | SEM image | ×1000 | ×1000 | ×1000 |
| Powder's | Particle diameter (D50%) | 21.4[µm] | 22.0[µm] | 23.2[µm] |
| basic character- | Coercivity (target: 720[A/m] or less) | 345[A/m] | O546[A/m] | O483[A/m] |
| istics | Saturation magnetic flux density | 1.76[T] | 1.61[T] | 1.61[T] |

Table S-4. Results of evaluation of other companies' thin ribbon materials

9. Yield and throughput testing and verification

We installed equipment for the three processes of pulverization, nanocrystallization, and insulation film formation, and verified the yield and throughput of each process.

Table S-5 shows the results of yield and throughput tests. We met the targets for all processes.

| | | | Pulverization | | Nanocryst | allization | Insulating film formation process | | |
|-------------------|-----------------|-------------------------|-----------------------|---------------------|-----------|--------------------------|--------------------------------------|--------------------|--|
| | | Coarse pulverization | Fine pulverization | Classifica- Tion | Printing | Nanocrysta- 11ization | Insulating film formation | Residue removal | |
| | Target | 99 | 66 | 98 | 99 | 91 | 96 | 99 | |
| Yield (%) | Result | 99 | 66 | 98 | 99 | 91 | 96 | Process omitted | |
| | Assess- ment | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | |
| | Target | 2.1 | 2.1 | 2.1 | 1.5 | 1.5 | 1.4 | 1.4 | |
| Throughput (kg/h) | Result | 31.8 | 3.5 | 43.4 | 12.1 | 11.8 | 4.8 | Process omitted | |
| | Assess- ment | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | |

Table S-5. Results of yield and throughput tests

10. Testing and verification of CO2 emissions reduction by the powder manufacturing process

We installed equipment for the three processes of pulverization, nanocrystallization, and insulation film formation, calculated CO2 emissions, and compared them with CO2 emissions from the atomized powder manufacturing process to verify the amount of CO2 emission reduction.

We evaluated the manufacturing process from resource recovery to powder generation, which is covered by the current project, among other stages of the life cycle of magnetic devices using soft magnetic alloy powder. We made comparisons with the manufacturing process in the current project, referring to the current manufacturing process of soft magnetic alloy powder as a baseline. We excluded the insulation process from this evaluation, assuming that there were no significant differences in this respect between the current manufacturing process and the one in the current project. The unit of CO2 emissions used in this comparison was the amount of CO2 emissions per kilogram of soft magnetic alloy before insulation. As shown in Figure S-6, the amount of CO2 emissions reduction achieved by the process demonstrated in the current project when compared to the current one was 9.6 kg-C02/kg-M [12.5 kg-C02/kg-M - 2.9 kg-C02/kg-M], down 76% from the current level.



*1 We excluded the insulation process from this evaluation, assuming that there were no significant differences in this respect between the current manufacturing process and the one in the current project.
*2 The CO2 emissions include possible losses in each process.

Figure S-6. Scope of CO2 emissions evaluation and amount of CO2 emissions: comparison between the current process and the project process

11. Usefulness evaluation from tests and verifications, etc.

This process is useful because it can guarantee profitability and reduce CO2 emissions, as shown in "9. Yield and throughput testing and verification" and "10. Testing and verification of CO2 emissions reduction by the powder manufacturing process."

12. Conclusion

• In the current project, in FY2018, we conducted method verifications for pulverization, nanocrystallization, and insulation film formation, concluded that we would be able to achieve the target specifications, and installed verification equipment. In FY2019, we enhanced productivity (yield and throughput) in each process toward mass production, and installed equipment for mass production tests.

 \cdot In the current project as a whole, we achieved a yield of 55%, a throughput of 3.5 kg/h, and CO2 emissions of 2.9 kg-CO2/kg-M. We met the targets (yield of 54% or more, throughput of 1.4 kg/h or more, and CO2 emissions of 3.6 kg-CO2/kg-M or less).

 $\cdot \, {\rm Table}$ S-6 shows the milestones to commercialization.

| 2018 | 2019 | 2020 | 2021 | 2022 | 2023 | 2024 | 2025 |
|---|--|--|-----------|------------------------|-------------|------------------------|-------------------------|
| Method verification | Mass production testing | Production of max production equipm | ss ent | n of mass equipment | Reliability | In-house mas | s production |
| Pulverization met Method for nanocrystallizat. Method for | hod•Scale-up •Yield on improvement | | | | | | |
| insulating film formation | Comparison with other companies' materials | | | | ·> | Application companies' | n to other materials |

Table S-6. Milestones to commercialization

目次

| 1. | | 背景 | 景と目的 | 1 |
|----|----|------|------------------------------------|----|
| | 1. | 1. | 背景 | 1 |
| | 1. | 2. | 目的 | 2 |
| 2. | | 取組 | 且みの全体像 | 4 |
| 3. | | 軟磁 | 磁性合金薄帯の粉体化に関する技術開発 | 7 |
| | 3. | 1. | 粉砕の歩留向上の検討 | 7 |
| | | 3.1. | .1. 粉砕工法の検討 | 8 |
| | | 3.1. | .2. 量産検証機の設計・製作 | 10 |
| | | 3.1. | .3. 量産検証機による特性・歩留・スループットの検証 | 29 |
| | | 3.1. | .4. CO2 排出量の検証 | 37 |
| | 3. | 2. | ナノ結晶化のスケールアップの検討 | 39 |
| | | 3.2. | ・1. ナノ結晶化工法の検討 | 40 |
| | | 3.2. | .2. ナノ結晶化工法の課題分析 | 41 |
| | | 3.2. | .3. 量産検証機の検討 | 42 |
| | | 3.2. | .4. 量産検証機による特性・歩留・スループットの検証 | 46 |
| | | 3.2. | .5. CO2 排出量の検証 | 64 |
| | 3. | 3. | 絶縁膜形成のスケールアップの検討 | 65 |
| | | 3.3. | .1. 絶縁膜形成工法の検討 | 66 |
| | | 3.3. | .2. 量産検証機の検討 | 74 |
| | | 3.3. | .3. 量産検証機による特性・歩留・スループットの検証 | 85 |
| | | 3.3. | .4. CO2 排出量の検証 1 | 00 |
| | 3. | 4. | 一括ライン製造による高スループット化の検討 1 | 00 |
| | 3. | 5. | 粉砕ロス材の他商品展開性の検討 1 | 01 |
| | | 3.5. | .1. 粉体工程において生成される粉体 1 | 01 |
| | | 3.5. | .2. 適用可能な用途 1 | 02 |
| | 3. | 6. | 他社薄帯材料への展開性の検討 1 | 11 |
| 4. | | 軟磁 | 磁性合金薄帯の粉体化による実証検証 1 | 16 |
| | 4. | 1. | 信頼性の試験検証1 | 16 |
| | 4. | 2. | 歩留・スループットの試験検証 1 | 22 |
| | 4. | 3. | 粉体製造プロセスの CO2 削減効果の試験検証 1 | 23 |
| | 4. | 4. | 試験検証等で得られた有用性評価 1 | 28 |
| 5. | | まと | とめ 1 | 29 |
| 6. | | 参考 | 等 | 31 |

背景と目的 1.

背景 1.1.

車載分野を中心に、コンバータやインバータなどに使用される高飽和磁束密 度の磁性粉を利用した大電流デバイスの創出が進展し、図 1.1-1 に示す通り、 高飽和磁束密度の軟磁性材料の国内市場は、2025年には1,827億円、43万トン まで成長すると予測されている。ところが、粉体製造(アトマイズ粉)プロセ スにおいて、鉄を溶融するため莫大なエネルギーが必要となっている。



Japan Soft Magnetic Materials Market Volume ('000 Tons) Analysis by Material Type,

注:Soft Magnetic Materials: Global Industry Analysis and Opportunity Assessment, 2016-2026 (PERSiSTENCE MARKET REASEACH)を基に作成

高飽和磁束密度の軟磁性材料の国内市場 図 1.1-1

また、各国の環境規制に対応し、電動車(HEV/PHEV/EV/FCV/電動トラック・ バス)の需要が急増している。図 1.1-2 に示す通り、電動車の国内市場は、2016 年の 106 万台から 2035 年には 301 万台まで、2.8 倍伸長すると予測されている。 したがって、車載機器に搭載される大電流デバイスの市場も急拡大していくも のと予測される。

高飽和磁東密度の磁性粉体は、車載機器のキーデバイスである磁気デバイス に必要不可欠であり、特に、電動車では必須となる。代表的な車載機器として、 車載 DCDC コンバータ、車載昇圧コンバータ、車載用充電器などが挙げられる。 これらの車載機器は、市場の伸び率が非常に高く、磁気デバイスの寄与度が大 きく、高性能で高飽和磁東密度の磁性粉体の開発が求められている。



図 1.1-2 電動車(HEV/PHEV/EV/FCV/電動トラック・バス)の国内市場予測

1.2. 目的

本実証事業では、図 1.2-1 に示すように、市場規模が非常に大きいモータや 配電用変圧器などの製造工程で廃棄されている薄帯の端材をリサイクル原材料 として、軟磁性合金の粉体を製造する(図 1.2-1 ①)。この粉砕粉を使用して コア成形し、磁性粉体が使用されているエアコンやパワコン、パワーインダク タなどの高周波磁気デバイスへ適用する(図 1.2-1 ②)。それにより、金属を 溶融して製造する軟磁性合金のアトマイズ粉と比較した場合に、消費電力量を 削減し、二酸化炭素の排出量を削減することを目的とする。

同時に、軟磁性合金薄帯の低損失かつ低コストの特徴を活かし、既存デバイ スの進化が期待できる。また、軟磁性合金薄帯の高飽和磁束密度の特性を活か し、車載リアクトルや車載 DCDC コンバータなどの小型・大電流デバイスへの展 開も見込める。



図 1.2-1 本事業の軟磁性合金粉体の位置付け

2. 取組みの全体像

本実証事業の取組みの全体像を述べる。軟磁性合金薄帯の粉砕粉の製造プロ セスフローを図 2-1 に示す。軟磁性合金薄帯を原材料とし、①粉砕工程、② ナノ結晶化工程、③絶縁膜形成工程を経て、軟磁性合金薄帯の粉砕粉を製造する。 ①粉砕工程では、粗粉砕機を用いて薄帯の端材を 5nm 角程度に粗く粉砕する(粗 粉砕)。次に、微粉砕機を用いて薄帯の端材を細かく粉砕する(微粉砕)。さ らに、振動ふるいを用いて分級することで所望のサイズの粉体を得る(分級)。 ②ナノ結晶化工程では、粉砕後の粉体を薄板上に薄く広げる(印刷)。次に、 加熱処理することでナノ結晶化を行う(ナノ結晶化工程)。③絶縁膜形成工程 では、熱処理後の粉体表面に絶縁膜を形成する(絶縁膜形成)。次に、絶縁膜 形成過程で発生する不純物を取り除く(残渣除去)。上記工程を経て製造した 軟磁性合金薄帯の粉砕粉を用いてコア成形し、磁気デバイスへ適用する。



図 2-1 軟磁性合金薄帯の粉砕粉の製造プロセスフロー

軟磁性合金薄帯の粉砕粉は、薄帯の端材を利用するため二酸化炭素の排出量 が少ないが、機械粉砕の応力歪により、従来のアトマイズ粉に比べ磁気特性が 劣化する。そこで、実用化に向けて、平成 30 年度は、図 2-1 に示す、①粉砕工 程、②ナノ結晶化工程、③絶縁膜形成工程の工法検証を実施し、ターゲットス ペック達成に目処を付けた。平成 31 年度は、量産に向けて、各工程の生産性向 上(歩留向上、スループット向上)を行った。以下、本事業の取組み概要につ いて説明する。

粉砕工程では、サイクロンミルを用いて、低応力・低酸化の球状粉を作製す る工法を確立したが、量産に向けては粉砕ロスが多いことが課題であった(平 成 30 年度)。そこで、平成 31 年度は、図 2-2 に示すように、低応力で微小粉 砕できる粉砕装置を構築し、自動化と多量化によるスループット向上と歩留向 上を検討した。その結果について、「3.1. 粉砕の歩留向上の検討」で述べる。



図 2-2 粉砕の歩留向上の検討

ナノ結晶化工程では、熱プレス機を用いて、粉体を熱暴走させず均一加熱す る工法を確立したが、量産に向けてはスループットが低いことが課題であった (平成 30 年度)。そこで、平成 31 年度は、図 2-3 に示すように、多量の粉体 を均一に加熱できるナノ結晶化装置を構築し、自動化と多量化によるスケール アップを検討した。その結果について、「3.2. ナノ結晶化のスケールアップ の検討」で述べる。



図 2-3 ナノ結晶化のスケールアップの検討

絶縁膜形成工程では、自動撹拌機を用いて、200℃以下で均一膜を形成する工 法を確立したが、量産に向けてはスループットが低いことが課題であった(平 成 30 年度)。そこで、平成 31 年度は、図 2-4 に示すように、表面の凹凸が大 きい粉砕粉の粒子表面に均一膜を形成できる絶縁膜形成装置を用いて、多量化 によるスケールアップを検討した。その結果について、「3.3. 絶縁膜形成の スケールアップの検討」で述べる。



図 2-4 絶縁膜形成のスケールアップの検討

微粉砕、ナノ結晶化、絶縁膜形成の3工程を繋ぐ設備を検討し、軟磁性合金 薄帯の粉砕粉の一括ライン製造によるスループットの向上を検討した。主要3 工程を繋ぐ工程として、サイクロンミルに投入できるサイズに薄帯を粉砕する 「粗粉砕」、サイクロンミルで生成される粉体を分級する「分級」、熱プレス 機への粉体供給を自動化するスキージによる「印刷」、絶縁膜形成過程で発生 する不純物の「残渣除去」において、高スループット化を検討した。その結果 について、「3.4. 一括ライン製造による高スループット化の検討」で述べる。

他商品で使用する粉体の必要スペックを調査し、粉砕ロス材の他商品への展開可能性を検討した。サイクロンミルで生成される粉砕粉の特徴である粒子径 と形状を明確にし、磁気デバイスで使用する粉体の粒径と形状を調査して、商品の適用可能性を見極めた。その結果について、「3.5. 粉砕ロス材の他商品 展開性の検討」で述べる。

微粉砕、ナノ結晶化、絶縁膜形成の3工程で構築した設備を用いて、他社薄 帯材料への展開可能性を検討した。自社薄帯の粉体化で確立したプロセスレシ ピで他社薄帯の粉砕粉を作製し、粉体の磁気特性を評価した。その結果につい て、「3.6. 他社薄帯材料への展開性の検討」で述べる。

軟磁性合金薄帯の粉体化による実証試験として、歩留・スループットの試験 検証、粉体製造プロセスの CO2 削減効果の試験検証、試験検証等で得られた有 用性評価を実施したので、その結果について述べる。歩留、スループット、CO2 排出量の目標値は表 2-1 のとおりとした。なお、事業全体の目標値は、歩留 54% 以上、スループット 1.4kg/h 以上、CO2 排出量 3.6kg-CO2/kg-M 以下とした。

| | | 粉砕工程 | | | ナノ結晶化工程 | | 絶縁膜形成工程 | |
|--------------------|----|------|-----|-----|---------|-------|---------|------|
| | | 粗粉砕 | 微粉砕 | 分級 | 印刷 | ナノ結晶化 | 絶縁膜形成 | 残渣除去 |
| 歩留 (%) | 目標 | 99 | 66 | 98 | 99 | 91 | 96 | 99 |
| スループット (kg/h) | 目標 | 2.1 | 2.1 | 2.1 | 1.5 | 1.5 | 1.4 | 1.4 |
| CO2排出量 (kg-CO2/kg) | 目標 | | 1.9 | | 1. | 7 | - | |

表 2-1 歩留、スループット、CO2 排出量の目標値

3. 軟磁性合金薄帯の粉体化に関する技術開発

3.1. 粉砕の歩留向上の検討

図 3.1-1 に示すように、薄帯粉砕後の保磁力は、薄帯の保磁力と比べ、約 300 倍にまで増加することが確認できている。保磁力は、磁気損失と相関のある指 標で、応力歪、酸化などによって増加する。そこで、平成 30 年度は、サイクロ ンミルを用いて、低応力かつ低酸化で、球状粉を作製する工法を確立した。そ の結果、目標スペックとなる保磁力 720A/m 以下の粉砕粉を作製することができ た。



図 3.1-1 軟磁性合金薄帯の粉体製造プロセス

ところが、この軟磁性粉を製造する上で、量産化に向けて、粉砕ロスが多い ことが課題であった。そこで、平成31年度は、低応力で微粉砕できる粉砕装置 を構築し、粉砕条件による歩留向上と多量化によるスループット向上を検討し た。これらの検討内容について、次の3つのステップで実施した。

ステップ1:粉砕工法の検討

ステップ2:量産検証機の設計・製作

ステップ3:量産検証機による特性・歩留・スループットの検証

3.1.1. 粉砕工法の検討

図 3.1-2 に、粉砕工程のフローチャートを示す。粉砕工程は大きく分けると、 3 つの工程からなる。第1工程は1)粗粉砕で、第2工程は2)微粉砕、第3工程 は3)分級である。



図 3.1-2 粉砕工程のフローチャート

1) 粗粉砕

平成 30 年度は、ハサミなどの工具を使用し、手動で薄帯を 10mm 角程度まで 粗粉砕していた。平成 31 年度は、量産化に向けて、多量かつ自動で粉砕できる 粗粉砕機を検討した。スループットの目標は2.1 kg/h、歩留の目標は99%とした。

2) 微粉砕

平成30年度は、サイクロンミルによる粉砕工法を確立した。これまで薄帯を 細かく砕くには、高衝撃を伴う微粉砕で砕くしかなく、その結果、保磁力の劣 化を招いていた。そこで、サイクロンミルにより、低衝撃で微粉砕することに より、保磁力の劣化を抑制した。ここで、本検証で採用したサイクロンミルの 粉砕方法を説明する。始めに、薄帯は粉砕室内に供給された後、図3.1-3に示 すように、インペラによる破砕により、粗く砕かれる。破砕された薄帯は微粉 排出口に接続された吸引装置から生み出された循環流に乗ることで、薄帯同士 が互いに摩擦し合い、粉砕される。この摩擦粉砕によって、粉砕粉が生成され る。また、粉砕粉のうち微粉は、気流に乗って粉砕室から流出し、吸引装置の 吸引力により、排出口から回収される。このとき、サイクロンミルの装置パラ メータを最適化することで、排出口から排出される粒子より粒径の大きい粒子 を、循環流により表面を削り取った状態で、粉砕室内に滞留させた。その結果、 粉砕室内に、図3.1-4のような、角が取れた低応力で粉砕した球状粉を生成し た。その結果、この粉体は保磁力が低く、目標となる保磁力 720A/m 以下を達成 した。図 3.1-5 に、採用した工法検証機のサイクロンミルの外観を示す。

しかし、この粉体を製造する上で、一度に処理できる薄帯が少なく、目的物 となる粉体は薄帯の投入量に対し、10%程度と少ない。平成31年度は、上記課 題を解決するために、スループットと歩留の向上を目指した。まず、サイクロ ンミルのスループットを向上するため、装置の改造および、量産検証を行った。 主な取り組みとして、装置の改造は多量に材料を投入し、供給できるフィーダ ーの改造と粉体を自動で回収できる機構を検討した。また、量産検証では、現 行のサイクロンミルより処理能力が約10倍である大型機を用いて、評価を行っ た。さらに、サイクロンミルの歩留向上を図るため、粉砕室内の粉体量を増や す条件振り評価を行い、量産検証機に効果のある条件を抽出し、検証を行った。 スループットの目標は2.1 kg/h、歩留の目標は66%とした。





図 3.1-4 サイクロンミルで粉砕した粉体の SEM 写真



図 3.1-5 サイクロンミル装置の外観

3) 分級

平成 30 年度は、小型の振とうふるい機を用いて分級を行った。平成 31 年度 は、粉体の自動分級を見据えて、分級装置のベンチマークを行い、検証を行っ た。スループットの目標は 2.1 kg/h、歩留の目標は 98%とした。

3.1.2. **量産検証機の設計・製作**

1) 粗粉砕

薄帯の粗粉砕を自動で行うために、不要材のリサイクルとして、簡単かつ安価で破砕できる図 3.1-6 の粗粉砕機(株式会社三力製作所製)を用いて、歩留とスループットを検証した。この粗粉砕機は、粉砕刃のクリアランスを調整することで、目標となる粒度の細かい粉砕にも適した装置である。



図 3.1-6 粗粉砕機の外観(株式会社三力製作所製)

図 3.1-7 の粗粉砕機を用いた粉砕フローについて述べる。図 3.1-8 のように、 ロール状の薄帯を送り、粉砕刃(図 3.1-9 の左図参照)が高速回転することで、 粗く砕かれる。 Φ10 mmのスクリーン(図 3.1-9 右図参照)を通過するサイズにな るまで粉砕されることにより、5mm 角程度の薄帯を生成することができる。



図 3.1-7 粗粉砕の模式図



図 3.1-8 薄帯の供給



図 3.1-9 粉砕刃(左図)、 Φ10 mm スクリーン(右図)

2) 微粉砕

図3.1-10に微粉末化工程フローを示す。始めに、薄帯をホッパーに100g投入 する。投入した薄帯は、ホッパー下のフィーダーで粉砕室内に運ばれる。この 時、粉砕室内では、2枚のインペラが回転数15000rpmで高速回転している。室内 に運ばれた薄帯はインペラと接触し、破砕された後、室内に発生している高速 旋回気流により、薄帯は微粉砕される。その後、粉砕室内に残留した粉砕粉を 手動で取り出す。以上のプロセスを経ると、現行の微粉末化工程のタクトタイ ムは52分となることから、スループットは0.11kg/hとなり、目標とするスルー プット2.1kg/hには到達できていない。



図 3.1-10 微粉末化工程フロー

そこで、歩留・スループット向上のため、以下の取組みを実施した。

- ① 材料供給部の改造と検証
- ② 粉砕粉の自動回収の検討と検証
- ③ サイクロンミル大型機の検証

材料供給部の改造と検証

図 3.1-11 に、現行のサイクロンミル装置の薄帯供給部を示す。現行では、図 3.1-12 のように、ホッパーの開口部が狭く、原料を供給口に多量に充填できな い。そのため、棒などを用いて、薄帯を詰めていた。しかし、薄帯を押し込む と、薄帯がホッパー開口部でブリッジを起こし、薄帯が詰まって、供給が停止 する問題が生じた。そのため、現行の供給部では薄帯を多量に詰めることがで きず、薄帯詰まりを起こさない薄帯の投入量は100gまでであった。そこで、薄 帯の詰まりを起こさずに、安定して多量に薄帯を供給できるホッパーとフィー ダーへ改造を検討した。



図 3.1-11 供給部の写真



図 3.1-12 現行の供給部

図 3.1-13 に、今回、量産検証へ向けて、改造検討を行ったフィーダー供給部 を示す。薄帯が詰まらないように、ホッパー部を幅広にし、さらに、薄帯を安 定的に供給するため、フィーダー部を細管にする供給部の改造を行った。



図 3.1-13 改造後のフィーダー供給部

改造したフィーダーで、フィーダーの供給周波数を変えた時のスループットの検証結果を図 3.1-14 に示す。供給周波数を変えても、線形性を持つことから、 安定的に材料を供給できることを確認した。



図 3.1-14 フィーダーの供給周波数とスループットの関係

次に、供給時の薄帯を供給した時の投入量とスループットを表 3.1-1 に示す。 このとき、フィーダーの供給周波数は 20Hz、投入量は 100g、200g、1000g と変 えて、検証を行った。その結果、投入量を増やしても、スループットはいずれ
の条件においても、3 kg/h 台で薄帯を供給でき、薄帯の詰まりは見られなかった。このことから、改造を行ったホッパーと供給フィーダーの工夫によって、 材料を安定して供給できた。

| 投入量 | 100g | 200g | 1000g |
|--------|----------|----------|----------|
| 供給時間 | 105分 | 180分 | 1020分 |
| スループット | 3.43kg/h | 4.00kg/h | 3.56kg/h |

表 3.1-1 投入量とスループット

② 粉体の自動回収の検討と検証

図 3.1-15 に、粉体回収工程フローを示す。始めに、薄帯を所定量、投入する。 投入した薄帯を粉砕した後、図 3.1-16 に示す粉砕室の扉を開けて、粉体を手動 で回収する。ここでは、粉砕室内粉砕粉を自動で回収できる方法を検討した。 サイクロンミルの粉砕方法の特徴である気流を利用して、粉体を流して、回収 する機構を検討した。



図 3.1-15 粉体回収工程フロー



図 3.1-16 粉砕室の外観

粉砕粉を粉砕室の扉を開けずに、実際に回収できるのか確認を行うために、 始めに、図 3.1-17 の手動弁を取り付けた。この手動弁を、サイクロンミル装置 の図 3.1-18 の位置に取り付けて、粉砕室内を開閉しなくても、手動弁の切り替 えにより、粉体を回収できるのか検証を行った。



図 3.1-17 手動弁



図 3.1-18 手動弁取り付け時の全体構造図

このとき、サイクロンミルによる粉砕実験の手順としては、次の通りである。 評価で使用した機器としては、粒度分布では、レーザー回折・散乱式粒子径分 布測定装置(マイクロトラック MT3000 II シリーズ)を、保磁力の評価には、自動 計測保磁力計(Hc メーター 東北特殊鋼株式会社製)を使用した。保磁力については、熱処理後の粉体を評価した。

- i) 粗粉砕機で粉砕した5mm角程度の薄帯材料を必要量、準備する。
- ii)この薄帯材料を所定の分量でサイクロンミルの原料投入口に入れて、粉 砕を実施する。
- iii) 粉砕室内の粉体について、大粒子を除くために、分級を行う。このとき 分級は、150µmふるい、75µmふるい、53µmふるい、32µmふるいの 順で行う。
- iv)分級で32µmふるいを通過した粉体について、各評価を実施する。
 ※歩留については、適用商品の範囲である53µmふるいを通過した歩留も含めて、評価を行った。
- <標準条件>
 - ・インペラの回転数:15000rpm
 - インペラの間隔:37 mm
 - ・粉砕時間:20分
 - ・インペラの刃先:丸
 - 材料サイズ:5mm角
 - ·投入量:100g
 - ・粉砕室の排出口径:Φ140 mm
 - ・粉砕時の酸素濃度:0.1%(N2雰囲気中)

以下、手動弁を用いた粉体の自動回収の実験内容と実験結果を述べる。

【実験内容】

·実験水準

粉体の回収:手動回収1回、手動バルブ弁で回収10回

・評価項目

粒径、保磁力

【実験結果】

表 3.1-2 は、粉体の粒径と保磁力を示している。手動で粉体を回収した場合 と比較すると、粒径の大きさも保磁力も変わらなかった。このことから、手動 バルブ弁による粉体の自動回収を行った場合でも、手動で粉体を回収したとき と同等の特性である粉砕室内の粉体を回収できたことが分かった。この手動弁 による自動回収により、粉体回収のタクトタイムを 20 分から1分にまで短縮で きた。

| | 1回(手動取出し) | 10回(自動回収) |
|--------------|---------------|----------------|
| 粒径 (D50%) | 14.60 μ m | 14. 22 μ m |
| SEM 写真 | ×1000 | ×1000 |
| 保磁力Hc | 454A/m | 408A/m |

表 3.1-2 手動取出し時と連続粉砕時の粒径

この結果を基に、粉体を自動回収するため、図 3.1-19 のように、粉砕室側用 の容器と排出口側用の容器にそれぞれ自動バルブ弁を取り付けた。また、それ ぞれの回収容器にもバルブを各 2 箇所取り付けて、粉砕中に、粉砕機の酸素濃 度を保ったまま粉体回収ができるようにした。自動バルブ弁への改造後のサイ クロンミルを図 3.1-20 に示す。



図 3.1-19 自動バルブ弁を取り付けた時の全体図



図 3.1-20 自動バルブ弁の写真

以下、自動バルブ弁を用いた粉体の自動回収の実験内容と実験結果を述べる。

【実験内容】

·実験水準

粉体の回収:手動回収1回、自動バルブ弁回収1回

・評価項目

粒径、保磁力

【実験結果】

表 3.1-3 に、自動バルブ弁を用いて、粉体を回収したときの粒径と保磁力を 示している。粉体を手動回収した場合と比較すると、自動バルブ弁を用いると、 SEM 写真より、微粉の割合が多くなっている。また、粒径が小さく、保磁力も高 くなっていることが分かった。これは、粉砕室内側に排出口の粉体が混じった ことによる影響と考えられる。今回、排出口側の粉体が混じった理由として、 サイクロンミルにより生じる気流の影響であると考えられる。

図 3.1-19 の全体図を見ると、自動バルブ弁の取り付けられている経路は長く、 枝分かれしている。そのため、粉砕室と回収容器を繋ぐバルブ弁の手前に、排 出口側の粉体が溜まり、バルブ弁が切り替わった時に粉体が混ざったと考えら れる。 そこで、今後は量産検証をしていく中で、粉砕容器側に排出口側の粉体が混 ざらない設計を考え、配管内に粉が溜まらない短い経路で装置を繋ぐことが重 要である。

| | 手動 | 手動バルブ弁 | 自動バルブ弁 |
|----------------|---------------|----------------|---------------|
| 粒径D50% | 14.60 μ m | 14. 22 μ m | 10.58 μ m |
| SEM 写真 | ×1000 | ×1000 | ×1000 |
| 保磁力Hc | 454A/m | 408A/m | 984A/m |
| 步留 (32µm以下) | 10.3% | 11.4% | 15.5% |

表 3.1-3 粉体の回収方式による粉体特性比較

③ サイクロンミル大型機の検証

ー度に多量に粉砕し、粉砕部のスループットを向上するため、現行の粉砕機 (型番:150S)の10倍の容量を持つ大型機(型番:400S)を検討した。表3.1-4に、 現行の粉砕機である小型機サイクロンミル150Sと量産検証を行った大型機サイ クロンミル400Sとの比較を示す。大型機400Sの処理能力は、小型機150Sの10 倍である。また、同等の周速を有する。

また、歩留向上に向けて、軟磁性合金薄帯の粉砕粉の商品展開性へ向けた調 査を行った。その結果、粒径 53 µ m 以下の粉体を用いた適用商品であるインダ クタの他に、粒径 53~100 µ m 扁平状の粉体はノイズ抑制シートとして、適用商 品としての可能性があることが分かった。したがって、粒径 100 µ m 以下をター ゲットとして、大型機 400S を用いて歩留向上を検討した。なお、調査結果の詳 細は、「3.5. 粉砕ロス材の他商品展開性の検討」にて後述する。

20

| | 小型機150S | 大型機400S |
|-------|------------------|----------------------|
| 概略図 | | |
| インペラ径 | 150mm | 400mm |
| 回転数 | 4000~15000rpm | $2000 \sim 5500$ rpm |
| 処理能力 | $1 \sim 20$ kg/h | 20~120kg/h |

表 3.1-4 小型機 150S と大型機 400S の比較

このとき、大型機サイクロンミル 400S を用いた粉砕実験の手順としては次の 通りである。

- i) 粗粉砕機で粉砕した5mm角程度の薄帯材料を必要量準備する。
- ii) この薄帯材料を所定の分量でサイクロンミルの原料投入口に入れて、粉 砕を実施する。
- iii) 粉砕室内の粉体について、大粒子を除くために、分級を行う。このとき 分級は、150µmふるい、100µmふるい、53µmふるい、32µmふるいの 順で行う。
- iv) 分級で 32 µm ふるいを通過した粉体について、各評価を実施する。
 ※歩留は粒径 100 µm 以下で実施。

評価で使用した機器としては、粒度分布では、レーザー回折・散乱式粒子径 分布測定装置(マイクロトラック MT3000 Ⅱ シリーズ)を、保磁力の評価には、自 動計測保磁力計(Hc メーター 東北特殊鋼株式会社製)を使用した。

また、各評価において、水準振りする粉砕条件以外の粉砕条件は、下記標準 条件で実施した。 <標準条件>

- ・インペラの回転数:5500rpm(※小型機の最大回転数15000rpmに相当)
- ・インペラの間隔: 74 mm (※小型機のインペラ間隔 39 mmに相当)
- 材料サイズ:5mm角
- ・投入量:1000g
- ·粉砕時間:20分
- ・インペラの刃先:テーパ形状
- ・粉砕室の排出口径:Φ198 mm
- ·粉砕酸素濃度:21.4%(大気)

以下、投入量と粉砕時間に関する実験内容と実験結果を述べる。

【実験内容】

・実験水準①

投入量:1000g 粉砕時間:5分、10分、20分、30分

- ・実験水準②
 投入量:2000g
 粉砕時間:5分、10分、20分
- ・評価項目
 - 粒径、保磁力、歩留、スループット

【実験結果】

投入量が1000g で粉砕時間を変えた時の粒径、保磁力、歩留を表 3.1-5 に示 す。粒径 D50%、保磁力とも全粉砕時間で目標を達成した。保磁力は、粉砕時間 が短いほど、粉体の応力歪みを小さくできたことで、保磁力を低減することが できたと考えられる。また、粉砕時間が 20 分、30 分のときに最も歩留が向上す ることが分かる。これは、粉砕時間が長くなるにつれて、粉砕が進行するため であると考えられる。しかし、いずれの条件においても、投入量 1000g のとき の粉砕では、目標とする歩留には到達できなかった。

| | 粉砕時間5分 | 粉砕時間10分 | 粉砕時間20分 | 粉砕時間30分 |
|------------------|---------------|---------------|---------------|---------------|
| 粒径 D50% | 19.04 μ m | 19.51 μ m | 17.38 μ m | 20.55 μ m |
| SEM 写真 | ×1000 | ×1000 | ×1000 | ×1000 |
| 100μm未満 粉体の割合 | 32% | 38% | 46% | 45% |
| 排出口 粉体の割合 | 10% | 18% | 30% | 41% |
| 保磁力Hc | 274A/m | 392A/m | 503A/m | 526A/m |

表 3.1-5 粉砕時間における粒径、保磁力、歩留(投入量 1000g)

そこで、投入量を 2000g に増やして、粉砕室内に薄帯材料を増やし、粉砕室 内の密度を上げることで、歩留の向上を狙った。投入量 2000g で粉砕時間を変 えた時の粒径、保磁力、歩留を表 3.1-6 に示す。粒径 D50%、保磁力とも全粉砕 時間で目標を達成した。また、粉砕時間が 20 分のときに、最も歩留が向上する ことが分かった。これは粉砕時間が長くなるにつれ、粉砕が進行するためであ ると考えられる。しかし、投入量 2000g のときのいずれの粉砕条件においても、 目標とする歩留には到達できなかった。

| | 粉砕時間5分 | 粉砕時間10分 | 粉砕時間20分 |
|------------------|---------------|---------------|---------------|
| 粒径 D50% | 20.50 μ m | 19.46 μ m | $17.~95\mu$ m |
| SEM 写真 | ×1000 | ×1000 | ×1000 |
| 100μm未満 粉体の割合 | 24% | 35% | 43% |
| 排出口 粉体の割合 | 18% | 17% | 33% |
| 保磁力Hc | 275A/m | 413A/m | 576A/m |

表 3.1-6 粉砕時間における粒径、保磁力、歩留(投入量 2000g)

また、目標スループットに到達しているのか検証を行った結果を図 3.1-21 に 示す。粉砕工程のタクトタイムは、薄帯の供給時間 1 分、粉体の回収時間 5 分、 粉体の分級時間 1 分とし、「粉砕時間+7 分」とした。投入量 1000g、2000g の とき、粉砕時間 20 分以下で目標とするスループット 2.1 kg/h 以上に到達してい ることを確認した。



図 3.1-21 粉砕時間とスループット

目標とするスループットには到達できているが、歩留が目標に到達できていない。そこで、薄帯のみの粉砕で歩留を向上させるのは困難であると考え、適用商品の範囲外である分級後に100µmふるいを通過できなかった粒径100µm 以上の粉体の再粉砕を検討した。薄帯の投入量は、歩留が高い1000gとした。

以下、再粉砕を想定して、粉砕材料のサイズに関する実験内容と実験結果に ついて述べる。

【実験内容】

·実験水準

投入量:1000g 粉砕時間:20分 粉砕材料のサイズ:薄帯のみ 粒径100μm以上の粉体のみ

薄帯と粒径100μm以上の粉体の混合

・評価項目

粒径、保磁力、歩留 ※32μmふるいを通過した粉体の粒径と保磁力を評価 ※粒径100μm未満の歩留を評価

【実験結果】

表 3.1-7 は、大型機 400S で粉砕したときの材料サイズによる粒径、保磁力、 歩留を示している。粒径 D50%、保磁力とも全粉砕材料のサイズで目標を達成し た。また、粉砕材料のサイズによって歩留の有意差はなく、薄帯をある程度細 かく砕かれた粉体を再粉砕しても、薄帯の粉砕を同等程度の特性と歩留である ことが分かった。これは、細かく砕かれた粉体の表面にはまだ応力歪み面が存 在し、歪み面の亀裂から、再粉砕できたと考えられる。

| | 薄帯 | 粉体 | 薄帯と粉体 |
|-------------------|---------------|---------------|----------------|
| サイズ | 5mm角 | 粒径100μm以上 | 5mm角、粒径100μm以上 |
| 割合 | 100% | 100% | 薄帯70%、粉体30% |
| 粒径 D50% | 18.33 μ m | 16.46 μ m | 17.15 μ m |
| SEM写真 (32µm以下) | ×1000 | ×1000 | ×1000 |
| 粒径100μm 未満割合の | 51% | 46% | 45% |
| 排出口 粉体の割合 | 31% | 33% | 32% |
| 保磁力Hc | 501A/m | 563A/m | 553A/m |

表 3.1-7 粉砕材料のサイズにおける粒径、保磁力、歩留

上記結果を踏まえて、図 3.1-22 に示すような循環粉砕で歩留を向上すること を検討した。歩留は下記の式 3.1.1 より算出した。ここで、粉砕 1 回目の薄帯 投入量は 1000g、N は粉砕を実施する回数、c は粒径 100 µm 以上の粉砕室内の粉 体重量、d は粉砕後の製品として適用可能な粒径 100 µm 未満の粉砕室内の粉体 重量である。

步留(%) =
$$\frac{$$
良品(g)}
薄带投入量(g) ×100% = $\frac{d(g) \times N(\Box)}{1000(g) + (1000 - c)(g) \times (N-1)(\Box)} \times 100\%$ (式3.1.1)

粉砕2回目以降は100µmふるいを通過しなかった粉体と投入する薄帯量を併 せて、1000gになるように再粉砕を行う。歩留の検証結果は、「3.1.3. 量産検 証機による特性・歩留・スループットの検証」で述べる。



図 3.1-22 循環粉砕

3) 分級

現行の分級工程フローを図 3.1-23 に示す。粉砕粉を回収した後、現行の振動 ふるい機を用いて、150 μ mふるい、75 μ mふるい(もしくは、100 μ mふるい)、 53 μ mふるい、32 μ mふるいの順で、ふるい分級を行う。このとき、タクトタイ ムは 22 分、スループットは 0.13 kg/h 程度であり、目標とするスループット 2.1 kg/h には到達できていない。



図 3.1-23 現行の分級プロセスフロー

そこで、スループットを向上するために、軟磁性合金薄帯の粉砕粉を分級す る方法として、次の3つの方式について調査した。

① ハイプレックス分級機、②超音波振動ふるい、③FS ハイシフター 検討を実施した各分級方式の概要としては、下記の通りである。

① ハイプレックス分級機

液体の噴流の近くに湾曲した壁があると、噴流軸の方向と壁の方向が離れて いても、壁の曲面へ沿った方法へと流れようとするコアンダ効果を利用してい る。この効果により、微粒子側と粗粒子側を同時に3産品まで分級除去できる 気流式の分級装置である。分級したい材料の比重により、分級精度が変わる特 徴がある。

② 超音波振動ふるい

メッシュ枠に超音波による高周波振動を付与することで、ふるいの目詰まり を防止して、より微細な粉体を分級することができる。従来の振動ふるいと比 べて、メッシュの寿命が長く、異物混入が少ない。

③ FS ハイシフター

従来の振動ふるいの重力落下に縦方向の狭振動を加えた分級機である。この 縦方向の振動が付与されたことで、波動運動が生じ、スクリーン上の原料が激 しく跳ね上げられる。その結果、通常のふるい分けに解砕と分散分級効果も兼 ねることができる。

表 3.1-8 に、分級機のベンチマークを示す。目標スループット 2.1 kg/h かつ、 分級後の歩留 98%以上を達成する可能性のある分級機のベンチマークを行った。 その中でも、スループットに優れ、設備費用が比較的安価であるハイシフター (株式会社エステクノ製)に関して、検証を行うことにした。

| | 振とう機(現行) | ハイプレックス分級機 | 超音波振動ふるい | FSハイシフター |
|---|---|---|--|---|
| 製造メーカー | レッチェ | パウダーシステムズ | 西村機械製作所 | エステクノ |
| 方式 | 重力場分級 | 慣性力場分級 | 重力場分級 | 重力場分級 |
| 構成図 | *1 | *2 | | *4 |
| | | | | |
| 分級機の特徴 | 振動ふるい | 気流式分級機(分散) | 超音波 | 縦振幅が2~3倍 |
| 分級機の特徴 サイクルタイム | 振動ふるい ×22分 | 気流式分級機(分散) △比重により異なる | 超音波 〇2~3s | 縦振幅が2~3倍 〇1s以下 |
| 分級機の特徴 サイクルタイム スループット | 振動ふるい ×22分 ×0.13kg/h | 気流式分級機(分散) <u> △比重により異なる</u> ○20kg/h | 超音波 ○2~3s ○80kg/h | 縦振幅が2~3倍 ○1s以下 ○300kg/h |
| 分級機の特徴 サイクルタイム スループット 設備費用 | 振動ふるい ×22分 ×0.13kg/h 〇60万円/台 | 気流式分級機(分散) △比重により異なる ○20kg/h ×1000万円/台 | 超音波 〇2~3s 〇80kg/h ×750万円/台 | 縦振幅が2~3倍 ○1s以下 ○300kg/h ○500万円/台 |
| 分級機の特徴 サイクルタイム スループット 設備費用 分級可能な粒径 | 振動ふるい ×22分 ×0.13kg/h 〇60万円/台 〇10~60μm | 気流式分級機(分散) △比重により異なる ○20kg/h ×1000万円/台 ○2~100μm | 超音波 ○2~3s ○80kg/h ×750万円/台 ○1~10μm | 縦振幅が2~3倍 ○1s以下 ○300kg/h ○500万円/台 ○1~100μm |

表 3.1-8 各分級装置のベンチマーク

※1 出典 ヴァーダー・サイエンティフィック株式会社ホームページ https://www.retsch.jp/jp/products/sieving/sieve-shakers/as-200-basic/function-features/
 ※2 出典 株式会社パウダーシステムズホームページ https://www.powder.co.jp/products/01/

※3 出典 株式会社西村機械製作所ホームページ http://###.econn#.co.jp/senbetsu_e.html

※4 出典 株式会社エステクノホームページ https://stechno-fs.jp/products#prol

図 3.1-24 は、ハイシフターによる分級の概要を示している。供給口に所定の 粉体量を投入した後、モータの発振による振動によって、縦と横振動を生じ、 微粉側の解砕も兼ねて、高精度にふるい分けされる。



図 3.1-24 ハイシフターによる分級

3.1.3. 量産検証機による特性・歩留・スループットの検証

1) 粗粉砕

粗粉砕機で粉砕した時の保磁力、歩留、スループットを表 3.1-9 に示す。こ のとき、保磁力の評価については、サイクロンミルで粉砕した後、32µm ふるい で通過した粉砕室内の粉体を熱処理したサンプルを用いた。また、粗粉砕時の 目標スループットは 2.1 kg/h、歩留は 99%である。その結果、粗粉砕機を用い たことで、スループットは 31.8kg/h まで向上し、目標のスループットを達成し た。さらに、熱処理後の粉体の保磁力についても差は見られなかった。このこ とから、粗粉砕時に歪みを低減して、粉砕を行うことができていることが分か った。

| | - | - |
|--------|-----------|----------|
| | ハサミ | 粗粉砕機 |
| 処理量 | 0.1kg | 7.82kg |
| 粉砕時間 | 300分 | 14.75分 |
| サイズ | 10mm角 | 5mm角 |
| 粗粉砕後 | | |
| スループット | 0. 02kg/h | 31.8kg/h |
| 步留 | 100% | 99% |
| 保磁力Hc | 485A/m | 436A/m |

表 3.1-9 粗粉砕した時の保磁力、歩留、スループット

2) 微粉砕

以下、微粉砕における保磁力、歩留、スループットの実験内容と実験結果を 述べる。

【実験内容】

・実験水準
 投入量:1000g
 粉砕時間:5分、10分
 粉砕回数:4回

※粉砕1回目は薄帯のみの粉砕を行った後、図 3.1-22の循環粉砕で 薄帯と粉体を混合して、粉砕を3回繰り返して実施

·評価項目

粒径、保磁力、歩留、スループット ※32μmふるいを通過した粉体の粒径と保磁力を評価 ※歩留は式 3.1.1を用いて算出

【実験結果】

粉砕時間5分での薄帯の再粉砕による粒径、保磁力、歩留を表3.1-10に示す。 粒径D50%、保磁力とも全粉砕回数で目標を達成した。歩留は、式3.1.1を用い て算出した。このとき、c,dは4回目までは測定値を使用した。5回目以降は、 cは粉砕回数2~4回目の粒径100µm以上の粉砕室内の粉体の平均重量480(g)、 d は粉砕回数2~4回目の粒径100µm未満の粉砕室内の粉体の平均重量320(g) を使用した。粉砕時間5分のときの歩留は、粉砕回数10回目で56.3%、粉砕回 数50回目で60.4%、粉砕回数100回目で61.0%となり、やがて収束し、目標 の歩留には達しない。

| | 薄帯のみ | 薄帯と粉体の混合 | | |
|-------------------------|---------------|---------------|---------------|---------------|
| 粉砕回数 | 1回目 | 2回目 | 3回目 | 4回目 |
| 粒径 D50% | 19.04 μ m | 18.89 μ m | 19.97 μ m | 19.46 μ m |
| SEM 写真 (32 µ m以下) | ×1000 | ×1000 | ×1000 | ×1000 |
| 循環粉砕時 の歩留 | 32.0% | 42.1% | 47.1% | 50.0% |
| 保磁力Hc | 274A/m | 299A/m | 293A/m | 300A/m |

表 3.1-10 薄帯を再粉砕したときの粒径、保磁力、歩留(粉砕時間 5 分)

粉砕時間 10 分での薄帯の再粉砕による粒径、保磁力、歩留を表 3.1-11 に示 す。歩留は、式 3.1.1 を用いて算出した。このとき、c,d は 4 回目までは測定値 を使用した。5 回目以降は、c は粉砕回数 2~4 回目の粒径 100 μm 以上の粉砕室 内の粉体の平均重量 550(g)、d は粉砕回数 2~4 回目の粒径 100 μm 未満の粉砕 室内の粉体の平均重量 350(g)を使用した。粉砕時間 10 分のときの歩留は、粉砕 回数 7 回目で 66.2%となり、目標に達する。

| | 薄帯のみ | 薄帯と粉体の混合 | | |
|-------------------------|---------------|---------------|---------------|--------------|
| 粉砕回数 | 1回目 | 2回目 | 3回目 | 4回目 |
| 粒径 D50% | 19.51 μ m | 18.72 μ m | 18.19 μ m | 17.94μ m |
| SEM 写真 (32 µ m以下) | ×1000 | ×1000 | ×1000 | ×1000 |
| 循環粉砕時 の歩留 | 35.0% | 48. 3% | 55.3% | 59.6% |
| 保磁力Hc | 392A/m | 402A/m | 414A/m | 413A/m |

表 3.1-11 薄帯を再粉砕したときの粒径、保磁力、歩留(粉砕時間 10 分)

ここで、歩留と粉砕回数の関係を図 3.1-25 に示す。このとき、粉砕回数が 4 回目までは本検証で行った結果に相当する。上述したとおり、大型機 400S のサ イクロンミルを用いて、投入量 1000g で粉砕時間 10 分の条件で循環粉砕を行う ことで、歩留 66%以上を達成可能である。



図 3.1-25 歩留と粉砕回数の関係

次に、循環粉砕時に目標とするスループットを確認した。粉砕工程のタクト タイムは前述の「粉砕時間+7分」として計算すると、スループットは式 3.1.2 より算出できる。このとき、投入量は 1000g、N は粉砕回数、粉砕時間はそれぞ れ5、10分である。

スループット(kg/h) =
$$\frac{投入 \equiv (g) \times N(\Box)}{(粉砕時間 + 7分) \times N(\Box)} \times \frac{60}{1000} (kg/h)$$
 (式3.1.2)

粉砕時間 5 分、10 分でそれぞれ 5 kg/h、3.53 kg/h となり、目標のスループット 2.1 kg/h を達成している。そのため、投入量 1000g かつ粉砕時間 10 分の条件で 循環粉砕を行うと、目標となるスループット 2.1 kg/h 以上かつ 66%以上を到達 した。

3) 分級

ハイシフターを用いて、分級を行った評価結果を述べる。分級前の粉砕室内 の粉体を用いて、投入量を変えて、検証を行った。

【実験内容】

・実験水準

ふるい網:ナイロン網 糸の太さ:33μm 分級条件:50μmふるい、30μmふるいで分級 粉体投入量:400g、1000g(粉砕室内の粉体)

・評価項目

粒径、保磁力、歩留

【実験結果】

現行の振動ふるいとハイシフターで分級した粒径、保磁力、歩留、スループ ットを表 3.1-12 に示す。粉体投入量が 400g、1000g のいずれの条件でも、同等 の粒径となる微粉を回収できたことを確認した。また、スループットを計算す ると、粉体投入量が 400g、1000g でそれぞれ 16.8 kg/h、43.4 kg/h であった。 また、投入量 1000g のときに、目標とする歩留 98%に到達した。このことから、 投入量を増やし、縦振動によるふるい目の開口方向に沿って分級できたことで、 目標スループットである 2.1 kg/h 以上かつ歩留 98%以上を達成していることが 分かった。つまり、ハイシフターを用いて、分級前の粉体投入量 1000g のとき に、目標スループット 2.1 kg/h 以上かつ歩留 98%以上に到達することが分かっ た。

表 3.1-12 現行の振動ふるいとハイシフターで分級した時の粒径、保磁力、歩 留、スループット

| | 振動ふるい | ハイシフター | |
|--------|---------------|---------------|---------------|
| 粉体投入量 | 50g | 400g | 1000g |
| SEM写真 | ×1000 | ×1000 | ×1000 |
| 粒径D50% | 14.60 μ m | 14.13 μ m | 13.43 μ m |
| 保磁力Hc | 445A/m | 434A/m | 456A/m |
| スループット | 0.30kg/h | 16.8kg/h | 43. 4kg/h |
| 歩留 | 96% | 91% | 98% |

次に、粉体の粒子構造を分析するために、透過型電子顕微鏡(TEM)を用いた粉体の断面 TEM 写真を図 3.1-26 に示す。図 3.1-27 に、この断面における EDX ラインプロファイルによる組成分析結果を示す。断面 TEM および、EDX ラインプロファイルの結果より、粉体表面には Fe 酸化膜の形成が確認され、Fe 酸化膜の膜厚は平均 6nm であった。このことから、Fe 酸化膜厚の薄い粉体を形成できたことで、保磁力が低くなっていることが分かった。



図 3.1-26 成膜後の粉体の断面 SEM 写真



図 3.1-27 成膜後の粉体断面の EDX ラインプロファイル

さらに、粉砕した粉体について、結晶状態の評価を行った。この時、粉体は 熱プレス装置で作成した試料を用いた。熱処理によって生成される α Fe 結晶相 の結晶化度は、X 線回折装置により、得られた粉末試料の X 線回折パターンから 得ることができる。Xsenn 回折分析の結果を図 3.1-28 に示す。 θ =44~45° に α Fe 結晶相のピークを持つことが確認できる。結晶化度の導出方法としては、 α Fe 結晶相の回折パターンと、アモルファス相に特有のブロードな回折パター ンを分離し、それそれの回折強度を求めた後、全回折強度に対する α Fe 結晶相 の回折強度の比を結晶化度としている。このとき、結晶化度 68[%]であることを 確認した。また、結晶性ピークの半値幅から Scherrer の式を用いて、結晶サイ ズを解析した。結晶子サイズは 15[nm]であることを確認した。



図 3.1-28 粉砕粉を熱処理した時の X 線回折プロファイル

以上の検証結果より、粉砕工程の各工程の目標スループットが2.1 kg/h に対して、粗粉砕工程では31.8 kg/h、微粉砕工程では3.5 kg/h、分級工程では43.4 kg/h となり、すべての工程において目標を達成した。粉砕工程の歩留は、粗粉砕工程では99%、微粉砕工程では66%、分級工程では98%であり、目標である歩留64%以上を達成することができた。

現時点での検討している一括ラインをイメージした全体図を、図 3.1-29 に示 す。量産機を想定した時、下記の手順で粉砕が行われる。

- 1) 粗粉砕機で薄帯が 5 mm角サイズ程度に砕かれた後、ホッパーに投入される。(材料供給時間は 1 分)
- 2) 投入された薄帯はフィーダーを介して、粉砕室内に運ばれて、薄帯の粉 砕が実施される。(所定の粉砕時間)この時、粉砕時にはバルブは排出側 の容器に微粉は流れるようにしておく。
- 3) 粉砕が所定の時間まで完了すると、インペラの回転が止まったと同時に、 バルブは粉砕室内側のみ開くような機構にする。
- 4) 粉砕室側へ送風を送り、粉砕室側の容器へ粉砕粉が流れる。(粉砕室内の 粉回収は5分)
- 5)回収された粉砕粉は容器内に付属している分級機によって、瞬時に100 μmふるいでふるい分けされる。
- 6) 100 µm ふるいを通過できなかった粉体は送風によって、粗粉用のホッパ 一側へ流れる。(粗粉の回収1分)

- 7) 粗粉と薄帯の投入量は1000g になるように、ホッパー下の計量センサー によって、投入原料を秤量する。
- 8) 再び2回目以降の粉砕が実施

この粉砕工程のタクトタイムのイメージとして、材料の供給1分⇒粉砕時間 10分⇒粉砕室内の粉取出し5分⇒分級後の粗粉の回収1分のプロセスを繰り返 し、粉砕が実施される。



図 3.1-29 粉砕工程の量産イメージ

今回、磁気デバイスの市場規模を予測し、目標粒径を広げて、スループット および、歩留は目標を達成したが、適用商品の市場規模を考えると、今後は粒 径 53μm以下の微粉領域での粉体を増やすことに注力する必要がある。

現状、図 3.1-30 に示すように、大型機 400S で粉砕した場合、薄帯投入量が 1000g に対して、粒径 53 µ m 以下の微粉は 5%程度である。



■10µm以下 ■10~32µm ■32~53µm ■53~100µm ■100~150µm ■150µm以上 図 3.1-30 大型機 400S サイクロンミルで粉砕した時の粉の割合

現行の大型機 400S のサイクロンミルを用いて、微粉の割合を増やすには、粉 砕室内のインペラ刃の構造を検討する必要がある。例えば、インペラの刃先を 鋭利にする、また刃の数を増やして、粉砕粉の開口率を減らす、さらに、イン ペラ刃の厚みを厚くして、インペラ間で生じる粒子同士の衝突を活性化させた りすることで微粉の割合を増やすことができる。今後は、上記の取組みおよび そのインペラ刃に合った粉砕室内の構造検討へ向けて、検証を行う予定である。

3.1.4. CO2 排出量の検証

粉砕工程における CO2 排出量は、①粗粉砕、②微粉砕、③分級の3つの製造 プロセスに分けて、下記手順により導出した。

① 粗粉砕

まず、粗粉砕工程における薄帯の端材から粉砕片 1kg を生成するプロセスの C02 排出量について、弊社調査に基づき導出。

消費電力量(1.26kwh)÷薄帯端材(7.82kg)÷歩留(99%)×C02 排出係数

(0.512 kg/kWh) = 0.084 kg-C02/kg-P

※CO2 排出係数 0.512kg/kWh は、下記出典から導出。

・出典

環境省 温室効果ガス排出量算定・報告・公表制度

平成 30 年度提出用 電気事業者別排出係数 代替値使用

次に、絶縁処理前の軟磁性合金粉体 1kg 当たりの CO2 排出量とするために、 粗粉砕以降の製造プロセスの歩留で除した。 粉体 1kg を生成するプロセスの CO2 排出量(0.084kg-CO2/kg-P) ÷微粉砕プロ セスの歩留(66%)÷分級プロセス(98%)÷印刷プロセス(99%)÷ナノ結晶化プロ セスの歩留(91%)=0.144kg-CO2/kg-M

② 微粉砕

まず、粉砕法により、粉砕片から粉砕粉 1kg を生成する製造プロセスの CO2 排出量について、弊社調査に基づき導出。

消費電力量(2.56kwh)÷粉砕片(1kg)÷歩留(66%)×C02 排出係数

(0.512 kg/kWh) = 1.983 kg - C02/kg - P

※CO2 排出係数 0.512kg/kWh は、下記出典から導出。

・出典

環境省 温室効果ガス排出量算定・報告・公表制度

平成 30 年度提出用 電気事業者別排出係数 代替値使用

次に、絶縁処理前の軟磁性合金粉体 1kg 当たりの C02 排出量とするために、 弊社調査に基づき、微粉砕以降の製造プロセスの歩留で除した。

粉体 1kg を生成するプロセスの CO2 排出量(1.983kg-CO2/kg-P) ÷分級プロセス(98%)÷印刷プロセス(99%)÷ナノ結晶化プロセスの歩留(91%)=

2.246kg-C02/kg-M

③ 分級

まず、分級により、粉砕粉から分級後粉体 1kg を生成する製造プロセスの CO2 排出量について、弊社調査に基づき導出。

消費電力量(0.01kwh)÷粉砕粉(1kg)÷歩留(98%)×C02 排出係数

(0.512 kg/kWh) = 0.005 kg - C02/kg - P

※CO2 排出係数 0.512kg/kWh は、下記出典から導出。

・出典

環境省 温室効果ガス排出量算定・報告・公表制度

平成 30 年度提出用 電気事業者別排出係数 代替値使用

次に、絶縁処理前の軟磁性合金粉体 1kg 当たりの C02 排出量とするために、 弊社調査に基づき、分級以降の製造プロセスの歩留で除した。

粉体 1kg を生成する製造プロセスの CO2 排出量(0.005kg-CO2/kg-P) ÷印刷プ ロセス(99%)÷ナノ結晶化プロセスの歩留(91%)=0.006kg-CO2/kg-M

上記①粗粉砕~③分級を合計し、粉砕プロセスの CO2 排出量は、

2.396kg-C02/kg-M≒2.4kg-C02/kg-Mとなる。

3.2. ナノ結晶化のスケールアップの検討

ナノ結晶化工程は、粉体化した軟磁性合金に対して、熱処理を施すことで、 応力歪みの低減とナノ結晶化により、保磁力を低減することが目的である。図 3.2-1 は、軟磁性合金の熱分析の評価結果を示している。400℃近傍では、Feの ナノ結晶形成の発熱ピークが見られ、500℃近傍では、Feのナノ結晶が肥大化す る発熱ピークが見られる。このとき、熱処理で、ナノ結晶が十分に形成できな かった場合、保磁力が高くなる。また、400℃近傍の発熱ピークは発熱量が大き いため、ナノ結晶化での自己発熱により、熱暴走を生じ、熱処理で 500℃近傍の ナノ結晶肥大化まで到達した場合には、保磁力が増加する。



図 3.2-1 軟磁性合金の熱分析 DTA

平成 30 年度は、熱プレス機を用いて、粉体を熱暴走させず均一加熱する工法 を確立した。平成 31 年度は、多量の粉体を高速に加熱できる量産検証機を構築 し、スループット向上を検討した。尚、検証は次の4つのステップで実施し、 目標値は、スループット:1.5kg/h、トータル歩留:90%とした。 ステップ1:ナノ結晶化工法の検討

- ステップ2:ナノ結晶化工法の課題分析
- ステップ3:量産検証機の検討
- ステップ4:量産検証機による特性・歩留・スループットの検証

3.2.1. ナノ結晶化工法の検討

平成30年度は、磁気特性の達成を優先し、熱プレス方式に限定し、評価を実 施したが、平成31年度は、スループット向上のため、3つの方式、熱プレス方 式、ロールプレス方式、炉方式について、比較検討を実施した。図 3.2-2 に各 熱処理方式の模式図を示す。それぞれの方式の特徴は下記の通りである。熱プ レス方式は、熱量をもったヒーターブロックが、軟磁性粉体を挟んだ金属の薄 板に接触・加圧し、粉体を加熱する方式である。粉体がナノ結晶化した際に発 生する自己発熱をヒーターブロックで吸熱し、粉体の熱暴走を抑制することが 期待できる。ロールプレス方式は、熱量をもったロールが回転しながら、軟磁 性粉体を挟んだ金属の薄板に接触・加圧し、粉体を加熱する方式である。熱容 量のあるロールが薄板に接触しているため、熱プレス方式と同様に粉体がナノ 結晶化した際に発生する自己発熱をロールで吸熱する機構を有しており、且つ、 ロールが回転しながら間欠無く粉体を加熱できることが特徴である。粉体の搬 送速度を早くしても、粉体への加熱・吸熱が十分に実施できれば、スループッ トの向上を期待することができる。炉方式は、大気やN2などの雰囲気中で、熱 量を持った気体によって、粉体を加熱する方式である。バッチ処理により、多 量の粉体を一括処理できる反面、ナノ結晶化した際に発生する熱を吸熱するこ とはあまり期待できない。



図 3.2-2 各熱処理方式の模式図

表 3.2-1 は、各熱処理方式の加熱・吸熱機構と検証結果を示している。ロー ルプレス方式については、粉体の搬送速度及びロールプレス温度について条件 振りをしたが、結果として熱プレス機と比較し、保磁力が高くなった。ロール と接触していない領域の粉体にロールやナノ結晶化した粉体の熱が伝わってい くが、吸熱が十分にできないことが原因として考えられる。また、炉方式につ いては、炉内温度振りや N2 雰囲気の検討を実施したが、結果として熱プレス機 と比較し、保磁力が高くなった。熱暴走しないために、ナノ結晶化温度以下で 実施せざるを得ず、N2 雰囲気による酸化抑制効果を狙ったが、十分な結果を得 られなかった。よって、熱プレス方式でのスループット向上を図ることとした。



表 3.2-1 各熱処理方式の検証結果

3.2.2. ナノ結晶化工法の課題分析

図 3.2-3 は、ナノ結晶化工程のプロセスフローを示している。3つのプロセス、①粉体供給、②ナノ結晶化、③粉体回収で構成される。平成 30 年度の実証では、粉体供給及び、粉体回収は、手動であり、例えば、粉体供給は、粉体の所定量を計量し、スパチュラを用いて、粉体を塗り広げていた。



図 3.2-3 ナノ結晶化工程のプロセスフロー

そこで、スループット向上のために、粉体供給プロセス及び、粉体回収プロセ スは自動化を検討し、ナノ結晶化プロセスは高速化及び多量化の検討をした。

3.2.3. **量産検証機の検討**

1) 粉体供給プロセスの自動化検討

粉体を供給する方式としては、スキージ印刷方式、フィーダー方式の2つの 方式が考えられるが、フィーダー方式では、粉体を搬送しながら落とす機構で あり、厚塗りによる多量化が難しいため、スキージ印刷方式について検討を実 施した。図3.2-4 は、スキージ印刷方式のプロセスフローを示している。印刷 マスクの開口部に粉体が埋まることにより、粉体の定量塗布が期待できる。



図 3.2-4 スキージ印刷方式のプロセスフロー

具体的に装置を製作する前に、手動にて、スキージ印刷を実施したところ、 図 3.2-5 にみられるような、粉体の未充填が発生した。



図 3.2-5 粉体の未充填

図 3.2-6 は、スキージ掃引時に、粉体に作用する力を示している。粉体同士の 凝集力が、粉体と薄板の間の摩擦力を上回るため、スキージの掃引により粉体 が薄板上を滑り、未充填が発生したと考えられる。



図 3.2-6 スキージ掃引時に粉体に作用する力

そこで、粉体が磁性紛である特徴を活かし、磁力を活用した装置を考案した。 図 3.2-7 は、磁力を活用したスキージ印刷方式を示しており、図 3.2-7 (a)は、 プロセスフローを、図 3.2-7 (b)は、スキージ掃引時に、粉体に作用する力を示 している。ステージの下に磁石が設置してあり、スキージ掃引時に、粉体同士 の凝集力よりも、粉体への磁力と粉体と薄板の間の摩擦力の総和が上回り、粉 体が薄板上を滑ることなく、充填できることが期待できる。



図 3.2-7 磁石を活用したスキージ印刷

図 3.2-8 は、手動により、磁石ありでスキージ印刷した結果を示している。 未充填なく粉体が充填できることを確認した。



図 3.2-8 磁石ありでのスキージ印刷結果

以上の結果から、XYZ 軸方向の駆動ができる装置を改造し、磁石が配置された スキージ印刷装置を製作した。図 3.2-9 は、製作したスキージ印刷装置を示し ている。



図 3.2-9 スキージ印刷装置

2) ナノ結晶化プロセスの高速化、多量化検討

高速化、多量化についてそれぞれ検討し、既存の熱プレス装置の改造を実施 した。まず高速化については、ヒーターブロックのプレス動作の高速化を図り、 ヒーターブロックを駆動するモータのギアの変更を実施した。

次に多量化については、投入する粉体の厚膜化と大面積化が考えられる。そ こで、ヒーターブロックのサイズを、既存の150mm角から250mm角へ大型化し たが、粉体を挟む薄板を搬送する機構についても既存の装置から改良を加えた。 図 3.2-10 は、粉体を挟む薄板と搬送治具の関係を示している。既存の装置構成 では、薄板を搬送治具のピンのみで支える構造になっているため、薄板が大型 化し、粉体が厚膜化と大面積化で増量されると、ピンで薄板を支えることがで きず、薄板と粉体が落下する不具合があった。そこで、ワイヤーを追加して薄 板を支える構造に変更した。



図 3.2-10 粉体を挟む薄板と搬送治具

3) 粉体回収プロセスの自動化検討

熱プレス後の粉体は、薄板に付着しているため、如何にして、薄板から取り出 すかが重要である。粉体の回収率の目標を94%以上とし、粉体を回収する方法 として、3つの方式、エア噴射方式、吸引方式、薄板垂直立て方式について検 討した。図3.2-11は、各粉体回収方式の模式図を示している。エア噴射方式は、 粉体にエアを噴射し、薄板から粉体を吹き飛ばして回収する方法である。実験 により、粉体を100%取り出せることを確認したが、吹き付け後に粉体が舞うた め、粉体が落ちて回収するまでの時間が必要であり、方法として不適であると 判断した。次に、吸引方式は、粉体を直接吸引する方法である。実験により、 粉体を98%回収できることを確認したが、吸引する機構ユニットが必要である。 次に、薄板垂直立て方式は、薄板を垂直に立て、粉体の自重により粉体を自然 落下、回収する方法である。実験評価により、94%の回収ができることを確認 した。目標である、回収率94%を確保し、また、垂直に立てるだけの簡単な機 構で装置が安価となるため、粉体回収プロセスとしては、垂直立て方式を採用 した。尚、垂直立て方式は、非常に簡単な機構であるため、本年度は、装置の 作製はせず、手動による方式検討で十分であると判断した。



図 3.2-11 粉体回収方式の模式図

3.2.4. 量産検証機による特性・歩留・スループットの検証

〔1〕粉体供給プロセス

粉体供給プロセスでは、スキージ印刷により、粉体量を安定して塗布成形す ることが重要である。そこで、次の2つの手順で評価を実施した。まず、スキ ージ条件の粉体塗布量への影響評価を実施し、次に、印刷マスク開ロサイズの 大型化によるスループット向上を検討した。尚、目標値は、スループット: 1.5kg/h 以上、歩留:99%以上とした。

1) スキージ条件の粉体塗布量への影響評価

印刷される粉体塗布量に影響すると考えられる、3つの条件 ①スキージ掃 引速度、②粉体投入量、③スキージ荷重について、評価を実施した。図 3.2-12 は、スキージ印刷における条件パラメータを示している。

尚、印刷マスクの開口サイズは、90mm角、開口厚は、0.35mmで実施した。



図 3.2-12 スキージ印刷における条件パラメータ

① スキージ掃引速度

スキージ掃引速度による粉体塗布量への影響を評価した。

【実験内容】

- ・実験水準
 - スキージ速度:30mm/s、60mm/s、90mm/s
- ・評価項目
 - 粉体塗布量 各条件 5pcs
- ・その他条件
 粉体投入量:45g、スキージ荷重:450gf

【実験結果】

図 3.2-13 は、スキージ速度と粉体塗布量の関係を示している。スキージ速度 による粉体塗布量への影響は確認できなかった。スキージ速度が速い方が、ス ループットは向上するが、スキージ速度が速くなると摩擦が大きくなるため、 印刷マスクとスキージ板の摩耗を考慮し、60mm/s とした。



図 3.2-13 スキージ速度と粉体塗布量

② 粉体投入量

印刷マスク上に投入する粉体量による粉体塗布量への影響を評価した。 【実験内容】

・実験水準

粉体投入量:25g、45g、65g

・評価項目

粉体塗布量 各条件 5pcs

・その他条件

スキージ掃引速度:60mm/s、スキージ荷重:450gf

【実験結果】

図 3.2-14 は、粉体投入量と粉体塗布量の関係を示している。粉体投入量の増 量により、印刷される粉体塗布量が増加傾向にあることを確認した。粉体自身 の自重の増大により、粉体を上から押さえつける力が強くなり、スキージによ る掃引力が働いても、粉体が薄板上に留まりやすくなっていると考えられる。 本実験結果から、印刷マスク上粉体量の管理が重要であり、安定した生産をす るために量産設備では、印刷マスク上粉体重量の測定と、その測定結果に応じ て、印刷マスク上へ供給する粉体量を制御する機構が必要であることが分かっ た。



図 3.2-14 粉体投入量と粉体塗布量

- ③ スキージ荷重
- スキージ荷重による粉体塗布量への影響を評価した。

【実験内容】

- ・実験水準
 - スキージ荷重:250gf、350gf、450gf
- ・評価項目
 - 粉体塗布量 各条件 5pcs

・その他条件

粉体投入量:45g、スキージ掃引速度:60mm/s

【実験結果】

図 3.2-15 は、スキージ荷重と粉体塗布量の関係を示している。スキージ荷重 の増大により、印刷される粉体塗布量が減少傾向にあることが確認できた。印 刷マスクのセッティング状態により、印刷マスクと薄板の間に隙間が発生する が、スキージ荷重の増大により、印刷マスクが薄板に密着され、印刷マスクの 開口部の実質的な高さが低くなることが原因として考えらえる。印刷マスクの セッティングによる高さばらつきを低減するには、スキージ荷重を大きくする ことが有効であるが、摩擦による印刷マスクとスキージの摩耗が多くなるため、 スキージ荷重を 450gf とした。



図 3.2-15 スキージ荷重と粉体塗布量

2) 印刷マスク開口サイズの大型化

印刷マスク開口サイズの拡大による粉体塗布量への影響を評価した。

【実験内容】

·実験水準

印刷マスク開口サイズ:90mm角、140mm角、250mm角

・評価項目

粉体塗布量 各条件 5pcs

・その他条件
 スキージ掃引速度:60mm/s、スキージ荷重:450gf
 粉体投入量:開口サイズにより変更

(90mm 角: 45g、140mm 角及び 250mm 角: 65g)

【実験結果】

図 3.2-16 は、印刷マスク開ロサイズと粉体塗布量の関係を示している。開口 サイズの大型化により、粉体塗布量が増量されていることが確認できた。表 3.2-2 は、印刷マスクの各開ロサイズでの粉体塗布量を示している。開ロサイズ 190mm 角では、37g 程度の粉体塗布量で印刷できることを確認できた。また、190mm 角でのスキージ時間は、5 秒であり、粉体搬送などのその他装置駆動時間を考慮 すると、スキージ印刷による粉体供給プロセスの1サイクルの時間は11秒とな る。



図 3.2-16 マスク開口サイズと粉体塗布量
| マスク開口サイズ 〔mm角〕 | | 90 | 140 | 190 |
|-------------------|-----|------|------|------|
| | (1) | 16.1 | 22.0 | 37.4 |
| 塗布量 〔g〕 | 2 | 16.3 | 22.5 | 38.0 |
| | 3 | 16.1 | 22.0 | 37.3 |
| | (4) | 16.1 | 22.3 | 37.4 |
| | (5) | 16.1 | 22.4 | 37.5 |
| | 平均值 | 16.1 | 22.2 | 37.5 |

表 3.2-2 マスク開口サイズと粉体塗布量

以上の結果から、粉体供給プロセスの作製条件をまとめると下記の通りにな る。

■粉体供給プロセス(スキージ印刷方式)

- ・印刷マスク開口サイズ : 190mm 角
- ・印刷マスク開口厚 : 0.35mm
- ・スキージ速度 : 60mm/s
- ・スキージ荷重 : 450g

また、粉体供給プロセスのスループットとしては、粉体塗布量 37g÷印刷時間 11 秒×3600 秒/h≒12.1kg/h となり、目標としていた 1.5kg/h を達成することが できた。また、粉体供給プロセスの歩留としては、99%であった。

〔2〕ナノ結晶化プロセス

熱プレス方式によるスループット向上では、前述のように、高速化と多量化 が必要である。図 3.2-17 は、熱プレスにおける各ヒーターブロックの挙動と荷 重を示している。上ヒーターブロックの挙動としては、まず、荷重サーチ開始 高さまで高速で下降し、次に荷重を検出するまで低速の荷重サーチ速度にてさ らに下降する。荷重検出後に、設定荷重になるように加圧制御指標値によって 荷重を増加し、設定荷重到達後は、荷重値を保持し、所定時間後に上昇する。 ここで、ヒーターブロック動作の高速化において、粉体の排出が発生したため、 次の2つのステップを踏んで評価を実施した。まず、粉体の排出を抑制するた めの熱プレス条件の検討、次に、多量化によるスループット向上を検討した。 尚、目標値は、スループット:1.5kg/h以上、歩留:97%以上とした。



図 3.2-17 熱プレスにおけるヒーターブロックの挙動と荷重

1) 粉体排出の抑制検討

図 3.2-18 は、粉体が排出される様子を示している。ヒーターブロックが粉体 を加熱・加圧することによって、粉体内の空気が一気に熱膨張し、粉体を伴っ て排出していると考えられる。よって、熱プレス時の空気の急激な熱膨張や押 し出し速度の低減などにより、粉体から空気が円滑に排出されれば、粉体の排 出を抑制できると考えられる。そこで、粉体排出の抑制に影響すると考えられ る 3 つの条件、①荷重サーチ速度、②荷重サーチ開始位置、③加圧制御指標に ついて、評価を実施した。



図 3.2-18 粉体が排出される様子

荷重サーチ速度

粉体への接触前のヒーターブロックの速度である、荷重サーチ速度による粉 体排出への影響を評価した。 【実験内容】

· 実験水準

荷重サーチ速度: 0.83mm/s、1.67mm/s、3.33mm/s

・評価項目

歩留、保磁力

その他条件
 荷重サーチ開始位置:3.8mm、加圧制御指標:370
 荷重サーチ開始前のヒーターブロック下降速度:100mm/s

【実験結果】

図 3.2-19 は、荷重サーチ速度と歩留の関係を示している。荷重サーチ速度の 減少により、歩留が向上していることが分かる。減速により、粉体内の空気の 熱膨張と粉体領域からの排出が、ヒーターブロックと薄板の接触前にスムーズ に進行するため、ヒーターブロックが粉体を挟む薄板に接触した時の、空気の 急激な熱膨張を抑制していると推察できる。本実験結果から、荷重サーチ速度 を 0.83mm/s としたが、歩留目標値の 97%を達成しておらず、さらなる改善が必 要である。また、図 3.2-20 は、荷重サーチ速度と保磁力の関係を示している。 全ての条件で、目標の保磁力 720A/m を満足し、問題ないことを確認した。



図 3.2-19 荷重サーチ速度と歩留



図 3.2-20 荷重サーチ速度と保磁力

② 荷重サーチ開始位置

荷重サーチを開始する位置による粉体排出への影響を評価した。尚、荷重サ ーチ開始位置は、ヒーターブロックが薄板との接触を検出する位置からの高さ を示している。

【実験内容】

·実験水準

- サーチ開始位置: 0.8mm、1.8mm、2.8mm、3.8mm、5.8mm
- ・評価項目
 歩留、保磁力
- ・その他条件 荷重サーチ速度:0.83mm/s、加圧制御指標:370 荷重サーチ開始前のヒーターブロック下降速度:100mm/s

【実験結果】

図 3.2-21 は、荷重サーチ開始位置と歩留の関係を示している。荷重サーチ開 始位置による歩留への有意な影響がないことを確認した。今回の評価条件の範 囲では、粉体内の空気が熱膨張で排出するのに必要な時間が十分に確保できて いると考えられる。スループットを向上させるためには、低速である荷重サー チ速度の範囲を短くする必要があり、荷重サーチ開始位置は小さい方が望まし いが、荷重サーチ速度になる前に、粉体を挟む薄板へヒーターブロックが接触 するのを避けるため、粉体厚ばらつきや薄板の反り状態のばらつきなど考慮し、 荷重サーチ開始高さは 1.8mm を採用した。また、図 3.2-22 は、荷重サーチ開始 位置と保磁力の関係を示している。全ての条件で、目標の保磁力 720A/m を満足 し、問題ないことを確認した。









③ 加圧制御指標

加圧制御指標による粉体排出への影響を評価した。尚、加圧制御指標の数値が小さいほど早く、設定荷重値に到達する。

【実験内容】

- ・実験水準 荷重制御指標:150、200、370、600
- ・評価項目 歩留、保磁力
- その他条件
 荷重サーチ速度:0.83mm/s、荷重サーチ開始位置:1.8mm
 荷重サーチ開始前のヒーターブロック下降速度:100mm/s

【実験結果】

図 3. 2-23 は加圧制御指標と歩留の関係を示している。荷重制御指標が小さい ほど歩留が向上する傾向にあり、荷重制御指標が 350 以下で、歩留目標値の 97% 以上を達成できていることを確認した。ヒーターブロックが粉体を挟む薄板に 接触する前は、粉体内の空気の排出程度が重要であるが、ヒーターブロックが 薄板に接触した後は、粉体のナノ結晶化によるさらなる急激な昇温による空気 の熱膨張の影響を軽減するために、なるべく早く粉体を押さえつけ排出する隙 間を低減した方が良いと考えられる。スループット向上のためには、なるべく 速い方が良く、加圧制御指標は 150 を採用した。また、図 3. 2-24 は、加圧制御 指標と保磁力の関係を示している。全ての条件で、目標の保磁力 720A/m を満足 し、問題ないことを確認した。



図 3.2-23 加圧制御指標と歩留



図 3.2-24 加圧制御指標と保磁力

2) 多量化

多量化するために、①粉体の厚膜化と②粉体面積の大型化の検討を実施した。 ① 粉体の厚膜化

粉体の厚膜化を検討するために、スキージ印刷時の印刷マスクの開口厚を 振り、歩留及び保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

- ・実験水準
 印刷マスク開口厚(粉体塗布量)
 : 0.35mm(10.7g)、0.5mm(14.6g)、0.75mm(21.9g)
 ※印刷マスクの開口サイズは全て 90mm 角
- ・評価項目

步留、保磁力

・その他条件

荷重サーチ速度:0.83mm/s、荷重サーチ開始位置:1.8mm、加圧制御指標:150 荷重サーチ開始前のヒーターブロック下降速度:100mm/s

【実験結果】

図 3.2-25 は、印刷マスクの開口厚と歩留の関係を示している。全てのマスク 開口厚について、有意差なく、歩留目標値 97%を確保できていることを確認し た。また、図 3.2-26 は、印刷マスクの開口厚と保磁力の関係を示している。印 刷マスクの開口が厚くなるほど保磁力が悪化している。これは、粉体の厚膜化 により、ナノ結晶化による単位面積当たりの熱量をヒーターブロックで吸熱す ることができず、結晶が肥大化していると考えられる。開口厚 0.5mm 以下で、 保磁力の目標値の 720A/m を満足していたが、厚膜化により、悪化傾向にあった ことから、印刷マスクの開口厚は、0.35mm を採用した。



図 3.2-25 印刷マスク開口厚と歩留



図 3.2-26 印刷マスク開口厚と保磁力

② 粉体面積の大型化

粉体面積の大型化では、粉体面積を 90mm 角から 190mm 角に拡大し、歩留及 び保磁力への影響を評価した。尚、大型化に際し、特性へ影響すると考えられ る、2つの熱プレス条件、熱プレス温度及びプレス荷重について条件を振り評 価を実施した。

【実験内容】

·実験水準

| プレス荷重 | 熱プレス温度 |
|-------|-------------------------|
| 1000N | 430°C、440°C、450°C、460°C |
| 1900N | 440°C、460°C |

·評価項目

步留、保磁力

・その他条件

印刷マスクの開口サイズ:190mm角(平均粉体塗布量:36g)、

ヒーターブロックサイズ:250mm 角

荷重サーチ速度:0.83mm/s、荷重サーチ開始位置:1.8mm、加圧制御指標:150 荷重サーチ開始前のヒーターブロック下降速度:50mm/s

【実験結果】

図3.2-27は、熱プレス温度と歩留の関係を示している。全ての条件において、 目標の97%以上を確保できていることを確認した。図3.2-28は、熱プレス温度 と保磁力の関係を示している。全ての条件において、目標の720A/mを満足して いることを確認した。高温化により、保磁力が低減傾向にあった。粉体面積90mm 角では、最適温度が450℃であったが、粉体の増量により、必要な熱量が増えた 可能性がある。また、プレス荷重については、1000Nよりも1900Nの方が、保磁 力が低い傾向にあった。粉体面積90mm角では、プレス荷重は、1000Nあれば、 十分であったが、粉体面積の大型化により、粉体同士が密接するための圧力が 不足し、1900Nの方が良好であったと考えられる。実験装置の仕様上の制約から、 今回の実験装置にける最適な条件は、熱プレス温度は、460℃、プレス荷重は、 1900Nとなるが、保磁力として、粉体面積90mm角と同等の500A/m以下を達成し ており、十分である。また、本実験結果から、熱プレス動作は、9秒以内であり、 粉体の搬送時間を考慮して、熱プレス機の1サイクルの時間は11秒であること を確認した。







次に、ヒーターブロックを大型化した熱プレス装置で作製した試料について、 結晶状態の評価を実施した。 α Fe 結晶相の結晶化度は、X線回折装置によって 得られた粉末試料のX線回折パターンから得ることができる。既存のヒーター ブロック 150mm 角でのX線回折分析の結果を図3.2-29 に、大型化した 250mm 角 でのX線回折分析の結果を図3.2-30 に示している。 $\theta = 44 - 45^{\circ}$ に α Fe 結晶相 のピークを持つことが確認できる。結晶化度の導出方法としては、 α Fe 結晶相 の回折パターンと、アモルファス相に特有のブロードな回折パターンを分離し、 それそれの回折強度を求めた後、全回折強度に対する α Fe 結晶相の回折強度の 比を結晶化度としている。ヒーターブロック 150mm 角の結晶化度 68[%]に対し、 ヒーターブロック 250mm 角の結晶化度は 77[%] であり、結晶化度は同等以上であ ることを確認した。また、結晶性ピークの半値幅から Scherrer の式を用いて、 結晶サイズを解析した。ヒーターブロック 150mm 角の結晶子サイズは 16.4[nm]、 ヒーターブロック 250mm 角の結晶子サイズは 15[nm]であり、同等の結晶子サイ ズであることを確認した。



図 3.2-29 ヒーターブロック 150mm 角での X 線回折プロファイル



図 3.2-30 ヒーターブロック 250mm 角での X 線回折プロファイル

以上の結果から、ナノ結晶化プロセスの作製条件をまとめると下記の通りに なる。

■ナノ結晶化プロセス(熱プレス方式)

- ・印刷マスクの開口サイズ:190mm 角
- ・ヒーターブロックサイズ:250mm 角
- ・サーチ速度 : 0.83mm/s
- ・熱プレス温度 :460℃
- ・プレス荷重 : 1900N
- ・荷重サーチ開始位置 : 1.8mm
- ・加圧制御指標 :150

荷重サーチ開始前のヒーターブロック下降速度:50mm/s

また、熱プレス方式によるナノ結晶化プロセスのスループットとしては、粉体塗布量 36g/熱プレス時間 11 秒≒11.8kg/h となり、目標としていた 1.5kg/h を達成することができた。また、歩留は、97%以上となることを確認した。

ナノ結晶化工程の量産装置は、粉体供給~ナノ結晶化~粉体回収まで一貫と なった装置となる。よって、ナノ結晶化工程のトータルの生産性としては、ス ループットは、ナノ結晶化プロセスで律速され11.8kg/hとなり、歩留は、各プ ロセスを乗算し、99%(粉体供給)×97%(ナノ結晶化)×94%(粉体回収)≒ 90%となり、目標スループット:1.5kg/h、及び目標歩留:90%を満足している ことを確認した。

3.2.5. CO2 排出量の検証

ナノ結晶化工程は、①粉体供給、②ナノ結晶化の2つの製造プロセスに分け て、下記手順により導出した。尚、ナノ結晶化プロセスには、粉体回収プロセ スを含め、歩留は、97%(ナノ結晶化)×94%(粉体回収)≒91%とした。 ① 粉体供給

スキージ印刷により、分級した粉体を、熱処理前に 1kg 印刷成形する製造プロセスの C02 排出量について、弊社調査に基づき導出。

消費電力量(0.01kwh) ÷粉体(3.6kg)÷歩留(99%)×C02 排出係数

(0.512 kg/kWh) = 0.001 kg - C02/kg - C

※CO2 排出係数 0.512kg/kWh は、下記出典から導出。

・出典

環境省 温室効果ガス排出量算定・報告・公表制度

平成 30 年度提出用 電気事業者別排出係数 代替値使用

次に、絶縁処理前の軟磁性合金粉体 1kg 当たりの C02 排出量とするために、 弊社調査に基づき、印刷以降の製造プロセスの歩留で除した。

粉体 1kg を生成する製造プロセスの CO2 排出量(0.001kg-CO2/kg-C) ÷ナノ結 晶化プロセスの歩留(91%)=0.001kg-CO2/kg-M

熱プレス法により、印刷成形した粉体に熱処理し、軟磁性合金粉体 1kg を製造するプロセスの CO2 排出量について、弊社調査に基づき導出。

消費電力量(3.18kwh)÷粉体(3.6kg)÷歩留(91%)×C02 排出係数

(0.512 kg/kWh) = 0.497 kg-C02/kg-M

※

※CO2 排出係数 0.512kg/kWh は、下記出典から導出。

・出典

環境省 温室効果ガス排出量算定・報告・公表制度

平成 30 年度提出用 電気事業者別排出係数 代替値使用

よって、上記①粉体供給~②ナノ結晶化を合計し、ナノ結晶化工程の CO2 排 出量は、0.498kg-CO2/kg-M≒0.5kg-CO2/kg-M となる。

3.3. 絶縁膜形成のスケールアップの検討

絶縁膜形成工程の量産に向けたスケールアップの検討結果について報告する。

<昨年度(平成30年度)の取り組みの振り返り>

昨年度(平成 30 年度)の報告では、絶縁膜形成工程のプロセスの選定および、 プロセス確立のための開発検討を行った。プロセスの選定においては、製造コ ストなどの観点からメカノケミカル法によるA1203 膜とゾルーゲル法によるSi02 膜を選定した。その後、絶縁耐圧という性能の観点からゾルーゲル法による Si02 膜の形成に絶縁膜形成プロセスを絞り込み、高い絶縁耐圧を持つ Si02 膜を安定 して形成できる絶縁膜形成プロセスを開発した。

<本年度(平成 31 年度・令和元年度)の取り組み>

スケールアップの方法としては、以下のように段階的に絶縁膜形成を行う粉 体の量を増加させる検討を行った。

- 【スケールアップ検討内容】
- ① ロールミル装置(100g 処理)
- ② ロールミル装置(500g 処理)
- ③ ポットミル装置(3kg 処理)
- ④ ポットミル装置(7kg 処理)
- ⑤ アキシャルミキサー装置(12kg 処理)

「3.3.1 絶縁膜形成工法の検討」では、①~③までの少量の粉体に対するスケールアップ検証とその結果について述べる。また、「3.3.2. 量産検証機の検討」および「3.3.3. 量産検証機による特性・歩留・スループットの検証」では、量産検証用として④および⑤の大量の粉体に対するスケールアップ検証とその結果について述べる。

なお、スケールアップ検討に使用している軟磁性体粉体は全て他社製の水ア トマイズ粉を使用している。その理由は、粉砕粉に比べて形状が球形に近く、 均一な膜形成が可能であり、形成された絶縁膜自体の特性評価が行いやすいた めである。また、粒子断面の長径と短径を比較したアスペクト比が1に近くな り分級が行いやすく、粉砕粉に比べて粒度分布が広がりにくいため、粒子サイ ズが絶縁膜形成に与える影響の評価がより容易になるためである。さらに、形 状が球形に近いアトマイズ粉の場合、扁平形状の粉砕粉と比較して、プレス成 型時の絶縁膜の割れが発生しにくい。この点も形成された絶縁膜の実力を評価 する上で適している。これらの理由から、水アトマイズ粉を用いることで、形成される絶縁膜自体の特性がスケールアップ時にどのように変化するかをより 厳密に評価することを目的として検討を行った。

3.3.1. 絶縁膜形成工法の検討

絶縁膜形成工程においては、①ロールミル(ポットミル)装置と②アキシャ ルミキサー装置の2種類の装置を用いた工法の検討を行った。

最初にロールミル(ポットミル)装置とアキシャルミキサー装置に共通した 絶縁膜形成の原理について確認する。絶縁膜はゾルーゲル法を用いて形成して いる。以下にゾルーゲル法を用いた Si02 膜形成の原理について述べる。

<ゾル-ゲル法による Si02 膜の形成>

加水分解反応

ゾルーゲル法により、軟磁性体粉体上に SiO2 膜を形成することができる。ゾ ルーゲル法は溶媒中に金属アルコキシド(M(OR)x)と水を添加して加水分解反応 を起こし、その後、金属アルコキシドと粉体粒子表面の間で脱水縮合反応を起 こすことで粉体粒子表面に膜を形成する手法である。

まず第1段階として、TEOS分子Si(0C2H5)4と水分子H20の加水分解反応が発生 する。

 $Si(0C2H5)4 + H20 \rightarrow H0-Si(0C2H5)3 + C2H50H$

この反応では水酸基(-OH)によってアルコキシル基(C2H50)が置き換えられている。この反応の様子を図3.3-1に示す。





次に第2段階として、第1段階で発生したH0-Si(0C2H5)3同士が結びつき、水分 子H20を発生する脱水縮合反応が起こる。

2HO-Si (OC2H5) 3 → (C2H5O) 3Si-O-Si (OC2H5) 3 + H2O

この反応により0-Si-0結合(シロキサン結合)が形成される。これが軟磁性体粉 末表面に形成されるSi02膜の元となる。この反応の様子を図3.3-2に示す。





第1段階の加水分解反応において、TEOSのアルコキシル基が全て水酸基に置き換えられ、その後さらに脱水縮合反応が進行する過程で、この加水分解された化学種は、軟磁性体粉末表面の薄い酸化膜の0H基との間でも脱水縮合を起こし、Si02膜が形成される。この反応の様子を図3.3-3に示す。



図3.3-3 鉄粒子表面へのSi02膜の形成反応

本報告においては、軟磁性体粉体に対して、TEOS(オルト珪酸テトラエチル、 またはテトラエトキシシラン)、溶媒としてエタノール、また、反応を促進させ る触媒としてアンモニア水を添加して、攪拌、乾燥させることで軟磁性体粉末 表面にSi02膜を形成した。 図 3.3-4 に本検討で使用した小型ロールミル装置の外観写真を示す。小型ロ ールミル装置としてはアズワン社製の BR-2 を使用した。ロールミル装置につい て簡単に説明する。ロールミルは2本の回転する軸の上に、材料となる軟磁性 体粉末や TEOS、溶媒のエタノール、触媒のアンモニア水などの溶液を入れた容 器を設置する。そして回転する軸の回転にあわせてその上の容器も回転するこ とで、容器内の材料が混合・攪拌されて反応が進行し絶縁膜を形成できる装置 である。通常この装置は粉体とビーズを容器内に同時に投入することで、粉体 を粉砕する用途で使用されることが多いが、今回は粉砕を目的としていないた め、攪拌中にビーズの投入は行っていない。今回用いた装置は2本の軸の回転 に加えて垂直方向に上下運動する揺動の機能も備えており、これによりさらに 混合・攪拌が進行すると考えられる。ロールミル装置に載せる容器のサイズを 変更することで、一度に成膜する軟磁性粉体の量を変えることができる。



図 3.3-4 小型ロールミル装置(アズワン社製 BR-2)の外観写真

このロールミル装置を用いて、軟磁性体粉体に対していくつかの条件で絶縁 膜形成を行い、成形品試料を作製して耐圧の評価を行った。

① 小型ロールミル装置(100g 処理)

最初に本装置を用いて 100gの軟磁性体粉体について絶縁膜の形成を行った。 粒子サイズによる差を比較するため、平均粒径が 10 µm と 30 µm の 2 種類のサ ンプルを用意した。容器サイズは 250ml のものを使用した。その後、絶縁膜形 成後の粉体を造粒して成型することで成型品試料を作製して耐圧の評価を行っ た。 【実験内容】

·実験水準

表3.3-1の①と②の成膜条件

| | 条件① | 条件② |
|--------------|-----|-----|
| 軟磁性体粉末(g) | 100 | 100 |
| 平均粒径D50(μm) | 10 | 30 |
| ローラー回転数(rpm) | 120 | 120 |

表3.3-1 成膜条件

·評価項目

耐圧

【実験結果】

図 3.3-5 に成膜条件と耐圧の関係を示す。耐圧は、軟磁性体粉末の 12mm 角の 薄いペレットを作製し、電流が 1mA 以上流れるペレットへの印加電圧を測定し た。

条件①と条件②のそれぞれについて、Reference として Si02 膜の成膜を行わず に作製した成型品試料も用意して比較を行った。Si02 膜の成膜を行っていない Reference の 2 つのサンプルにおいて、粒径 10 µm のサンプルは耐圧が 172V/mm となった。また、粒径 30 µm のサンプルは耐圧が 61V/mm となり、それぞれ耐圧 の値がゼロではなかった。この理由は、水アトマイズ粉の作製時に溶融された 軟磁性体材料に対して高圧で吹き付けられる水によって、軟磁性体粉体表面が 酸化され形成された自然酸化膜が存在しているためだと考えられる。

そして、ロールミル装置により SiO2 膜の成膜を行ったサンプルにおいては平均粒径 10 μ m の①が耐圧 804V/mm、また平均粒径 30 μ m の②が 227V/mm とそれぞれの Reference のサンプルと比較すると耐圧が大きく上昇した。この結果は、元々存在していた軟磁性体粉体表面の自然酸化膜上に SiO2 膜が積層されたことによる絶縁膜の厚膜化による耐圧向上を示している。

69



図 3.3-5 粉体 100g 成膜時の耐圧と粒子径の関係

また、①粒径 10 μ m の場合と②粒径 30 μ m の場合で耐圧が大きく異なる理由 を示す模式図を図 3.3-6 に示す。平均粒径が小さい場合、図 3.3-6 の左図のよ うに成型品試料に電圧を印加してから成型品試料が絶縁破壊するまでに、多く の粒子の絶縁膜を破壊していく必要がある。一方で、平均粒径が大きい場合、 図 3.3-6 の右図のように成型品試料に電圧を印加してから成型品試料が絶縁破 壊するまでに破壊する必要のある絶縁膜の量は、平均粒径が小さい場合と比較 すると少ない。言い換えると、平均粒径の小さい粒子を使用した成型品試料の 総体としての絶縁膜厚は厚くなり、平均粒径の大きい粒子を使用した成型品試 料の総体としての絶縁膜厚は薄くなる。この結果、平均粒径 10 μ m の①と平均 粒径 30 μ m の②の間で耐圧に大きな差異が発生したと考えられる。



② 小型ロールミル装置(500g 処理)

次に本装置を用いて 500g の軟磁性体粉体について絶縁膜の形成を行った。 この実験では、平均粒径 30 µ m のサンプルを用意して 100g の処理を行った場合 と比較した。100g の粉体の成膜処理には 250ml の容器を、500g の粉体の成膜処 理には 500ml の容器を使用した。その後、絶縁膜形成後の粉体を造粒して成型 することで成型品試料を作製して耐圧の評価を行った。

【実験内容】

·実験水準

表3.3-2の①(100g処理の結果)と②(本実験)の成膜条件

| | 条件① | 条件② |
|--------------|-----|-----|
| 軟磁性体粉末(g) | 100 | 500 |
| 平均粒径D50(μm) | 30 | 30 |
| ローラー回転数(rpm) | 120 | 120 |

表3.3-2 成膜条件

·評価項目

耐圧

【実験結果】

図 3.3-7 に成膜条件と耐圧の関係を示す。

100gの軟磁性体粉体に対して成膜処理を行った場合と比較して、500gに成膜時の粉体処理量を増やした場合にも、同程度以上の耐圧を得られていることが分かる。



図 3.3-7 粉体 500g 成膜時と 100g 成膜時の耐圧の比較

③ 中型ポットミル装置(3kg 処理)

続いて 3kg の軟磁性体粉体について絶縁膜の形成を行った。

より多くの量の粉体を処理するために中型のポットミル装置を使用した。図 3.3-8に本検討で使用した中型ポットミル装置の外観写真を示す。中型ポットミル装置としては伊藤製作所製のMF-4を使用した。

この実験では、平均粒径 10 µm のサンプルを用意して 100g の処理を行った場合 と比較した。100g の粉体の成膜処理には 250ml の容器を、3kg の粉体の成膜処 理には 2000ml の容器を使用した。その後、絶縁膜形成後の粉体を造粒して成型 することで成型品試料を作製して耐圧の評価を行った。



図 3.3-8 中型ポットミル装置(伊藤製作所製 MF-4)の外観写真

【実験内容】

·実験水準

表3.3-3の①(100g処理の結果)と②(本実験)の成膜条件

| 表3 | 3-3 | 成膜条件 |
|-----|-----|------|
| 10. | 0 0 | |

| | 条件① | 条件② |
|--------------|-----|------|
| 軟磁性体粉末(g) | 100 | 3000 |
| 平均粒径D50(μm) | 10 | 10 |
| ローラー回転数(rpm) | 120 | 120 |

·評価項目

耐圧

【実験結果】

図 3.3-9 に成膜条件と耐圧の関係を示す。

100gの軟磁性体粉体に対して成膜処理を行った場合と比較して、3kgに成膜時の粉体処理量を増やした場合にも、ほぼ同程度の高い耐圧を得られていることが分かる。わずかに耐圧が低下している原因として、ポットミル装置においては、処理する粉体の量が増えると、粉体が凝集した塊を形成しやすくなり、その塊の内部においては絶縁膜を形成する反応が発生しにくくなるためだと考えられる。



図 3.3-9 粉体 100g 成膜時と 3kg 成膜時の耐圧の比較

3.3.2. **量産検証機の検討**

続いて量産検証機の検討として、さらに大量の粉体に対して絶縁膜形成を行 うことができる④大型ポットミル装置および⑤アキシャルミキサー装置を用い た量産検証を行った。

④ 大型ポットミル装置(7kg 処理)

図 3. 3-10 に本検討で使用した大型ポットミル装置の外観写真を示す。大型ポットミル装置としては MM テック社製の実験用ポットミル架台を使用した。ポットミル装置に関しては、小型ロールミル装置、中型ポットミル装置、そして大型ポットミル装置のいずれにおいても、回転する 2 軸のローラーの上に粉体を投入した容器を載せて攪拌する形式であり、装置の基本的な構造は変わらない。この実験では、7kgの軟磁性体粉体について絶縁膜の形成を行った。平均粒径 10 µ m のサンプルを用意して 100g の処理を行った場合、3kg の処理行った場合 との比較を行った。100g の粉体の成膜処理には 250m1 の容器を、3kg の粉体の成膜処理には 2000m1 の容器を使用した。また、7kg の粉体の成膜処理には 5000m1 の容器を使用した。その後、絶縁膜形成後の粉体を造粒して成型することで成型品試料を作製して耐圧の評価を行った。また、断面 TEM と EDX により絶縁膜の膜厚と粒子の構造と組成を分析した。



図3.3-10 大型ポットミル装置(MMテック社製実験用ポットミル架台)

【実験内容】

·実験水準

表3.3-4の①(100g処理の結果)、②(3kg処理の結果)、③と④(本実験)の 成膜条件

| 表 3. | . 3-4 | 成膜条件 |
|------|-------|------|
| 200 | | |

| | 条件① | 条件② | 条件③ | 条件④ |
|--------------|-----|------|------|------|
| 軟磁性体粉末(g) | 100 | 3000 | 7000 | 7000 |
| 平均粒径D50(μm) | 10 | 10 | 10 | 10 |
| ローラー回転数(rpm) | 120 | 120 | 120 | 240 |

・評価項目

耐圧

断面 TEM

EDX ラインプロファイル

【実験結果】

図 3.3-11 に成膜条件と耐圧の関係を示す。

条件①の100gの成膜処理の結果や②の3kgの成膜処理の時の結果と比較すると ③の7kg成膜処理の結果では耐圧が低下していることが分かる。この一因とし て、条件③および条件④の大型ポットミルを用いた実験では、スループット向 上のため、成膜処理の時間を①や②の半分にしたことが挙げられる。一般的に 絶縁膜厚は成膜処理時間が長い方が厚くなるため、①や②に比べて③や④では 耐圧が約半分になっていることは絶縁膜厚の時間依存性で説明できる。

次に、図 3.3-11 において条件④は③に対してローラー回転数を 2 倍にした場 合の結果であり、耐圧は③と比較して約 80V/mm 改善している。この理由はロー ラー回転数を高速化することで、より強い遠心力が働くため、元の回転数では 持ち上げることのできなかった粒子サイズが大きく重い粒子も攪拌することが でき、成膜のばらつきを抑制できたためだと考えられる。ただし、ローラー回 転数の高速化には限界もある。図 3.3-12 に④の回転数を 2 倍にした場合の成膜 処理後の容器内の様子を示す。図 3.3-12 では、成膜処理後に粉体が凝集した大 きな塊が発生していることが分かる。③の場合にはこのような塊は発生してい なかった。従って、回転が高速になるほど、遠心力で壁面に付着した粒子が核 となり、粉体が凝集した塊が雪だるま式に成長していくと考えられる。この粉 体が凝集した塊ができてしまうと、この塊の内部では絶縁膜を形成する反応が 発生しにくくなるため、膜厚のばらつきの原因となる。そのため、これを抑制 する手段が必要となる。





図 3.3-12 条件④(ローラー回転数 240rpm)の成膜処理後の容器内の様子

図 3.3-13 に条件③における成膜後の粉体の断面 TEM 写真を示す。また、図 3.3-14にこの断面における EDX ラインプロファイルによる組成分析結果を示す。 断面 TEM の結果、粉体表面の Fe 酸化膜の膜厚は平均 14.8nm であった。また、 その上の Si02 膜の膜厚は平均 25.7nm であった。EDX ラインプロファイルの結果 からは、粉体の最表面の膜において Si と 0 が検出されていたことから Si02 膜 が形成されていることを確認した。図 3.3-15 に断面 TEM により粉体粒子および Si02 膜の結晶性と粒子構造を確認した結果を示す。Fe 系の母材となる粉体粒子 とその表面の Fe 酸化膜が結晶層であり、Si02 膜はアモルファス層となっている ことを確認した。以上の結果から、大型ポットミル装置を用いて一度に 7kg と いう粉体量で成膜処理を行った量産検討においても、Fe 酸化膜上に高い絶縁耐 圧を持つ Si02 膜が形成可能であることが確認できた。



図 3.3-13 条件③ 大型ポットミルで 7kg 成膜処理後の粉体の断面 TEM 写真



図 3. 3-14 条件③ 大型ポットミルで 7kg 成膜処理後の粉体の断面の EDX ラインプロファイル



図 3.3-15 条件③ 大型ポットミルで 7kg 成膜処理後の粉体の断面の 結晶性・粒子構造の確認

⑤ アキシャルミキサー装置(12kg 処理)

次に、これまで述べたロールミルやポットミルとは別の量産方式の候補として、強制的な攪拌が行える攪拌羽根を備えたミキサ装置を用いた量産検討内容 について述べる。図 3.3-16 に本検討で使用したミキサ装置であるアキシャルミ キサー装置(杉山重工社製 UA-02S:容量 7L)の外観写真を示す。



図 3.3-16 アキシャルミキサー(杉山重工社製 UA-02S)の外観写真

アキシャルミキサー装置について簡単に説明する。アキシャルとは英語の 「Axial」であり、「軸方向への運動」を意味する。混合槽の底面に傾斜角を持 たせてあり、円周及び上下方向に複雑な原料対流を発生させて、混合を促進さ せることができる。一般的な従来の円筒槽型の混合器と比較して以下のような 特徴を持つ。

- ・円筒槽と比較して低回転で均一に混合できるため低発熱である
- ・装置内への付着が極めて少ない
- ・羽根1回転毎に底部傾斜に沿って強制的に上下対流が発生するため、 上下槽の均一混合が可能

図3.3-17にアキシャルミキサー内での攪拌の様子を表すイメージ図を示す。



図3.3-17 アキシャルミキサー内での攪拌のイメージ図 (杉山重工HPを参考に記載)

http://www.e-sugiyama.co.jp/products/mixture/axialmixer-60th.html

この実験では、平均粒径 10µmのサンプル 12kg の軟磁性体粉体に対して絶縁膜 の形成を行った。使用したアキシャルミキサーの攪拌槽の容量は 7L であった。 その後、絶縁膜形成後の粉体を造粒して成型することで成型品試料を作製して 耐圧の評価を行った。また、成膜後の粒子に対して表面 SEM により成膜の有無 を確認した。そして、断面 TEM と EDX により絶縁膜の膜厚と粒子の構造と組成 を分析した。 【実験内容】

·実験水準

表3.3-5の①から③の成膜条件

| | 条件① | 条件② | 条件③ |
|------------------|-------|-------|-------|
| 軟磁性体粉末(g) | 12000 | 12000 | 12000 |
| 平均粒径D50(μm) | 10 | 10 | 10 |
| 攪拌前静置時間(min) | 0 | 5 | 5 |
| 攪拌時間(min) | 10 | 10 | 60 |
| 攪拌時主羽根回転数(rpm) | 100 | 100 | 100 |
| 攪拌時チョッパー回転数(rpm) | 300 | 300 | 300 |

表3.3-5 成膜条件

・評価項目

表面 SEM

耐圧

断面 TEM

EDX ラインプロファイル

【実験結果】

表 3.3-5 で示した条件①~③では粉体投入量は全て 12kg である。また、攪拌 時の羽根の回転数も一定である。一方、変数として、攪拌時間は①と②が 10min、 ③が 60min とした。また、攪拌羽根を回転させ攪拌を開始する前に静置した時 間は条件①が 0min、②と③が 5min とした。攪拌時間を変数とした狙いは、形成 される Si02 膜厚の時間依存性を評価するためである。また、攪拌開始前の静置 時間を変数とした狙いは、静置時間を長くすることで前述したゾルーゲル法にお ける Si02 成膜に必要な構造物であるシロキサン結合の数を増加させて、Si02 膜 形成を促進させることである。

図3.3-18に条件①~③で行った成膜処理後の粉体の表面SEM写真を示す。条件 ①や②の10minの成膜処理を行った場合には、成膜処理後の粉体表面は滑らか で付着物は少ない。一方で条件③の60minの成膜処理場合には、①や②の場合と は様相が異なり、粉体表面が明らかに何かの膜で被覆されていることが確認で きる。条件③において発生したこの膜はアキシャルミキサーでの成膜処理によ って粉体表面にSi02膜が形成されたことを示唆している。



図3.3-18 アキシャルミキサーで成膜処理後の粉体の表面SEM写真

次に図 3.3-19 に成膜条件と耐圧の関係を示す。条件①や②の結果と比較して ③の場合には耐圧が高くなっていることが分かる。前述した図 3.3-17 の表面 SEM の結果も踏まえると、③の場合のみ、粉体表面への Si02 膜の成膜が良好に行わ れており、耐圧の大幅な上昇に繋がったと考えられる。



図 3.3-19 アキシャルミキサーによる成膜実験での耐圧の比較

次に図 3. 3-20 に条件③における成膜後の粉体の断面 TEM 写真を示す。また、 図 3. 3-21 にこの断面における EDX ラインプロファイルによる組成分析結果を示 す。断面 TEM の結果、粉体表面の Fe 酸化膜の膜厚は平均 7. 1nm であった。また、 その上の Si02 膜の膜厚は平均 18. 5nm であった。EDX ラインプロファイルの結果 からは、粉体の最表面の膜において Si と 0 が検出されていたことから Si02 膜 が形成されていることを確認した。図 3. 3-22 に断面 TEM により粉体粒子および Si02 膜の結晶性と粒子構造を確認した結果を示す。Fe 系の母材となる粉体粒子 とその表面の Fe 酸化膜が結晶層であり、Si02 膜はアモルファス層となっている ことを確認した。以上の結果から、アキシャルミキサー装置を用いて一度に 12kg という粉体量で成膜処理を行った量産検討においても、Fe 酸化膜上に高い絶縁 耐圧を持つ Si02 膜が形成可能であることが確認できた。



図 3.3-20 条件③ アキシャルミキサーで 12kg 成膜処理後の粉体の断面 TEM 写真



図 3.3-21 条件③ アキシャルミキサーで 12kg 成膜処理後の粉体の断面断面の EDX ラインプロファイル



図 3.3-22 条件③ アキシャルミキサーで 12kg 成膜処理後の粉体の断面の 結晶性・粒子構造の確認

3.3.3. 量産検証機による特性・歩留・スループットの検証

量産検証機を用いて絶縁膜形成を行った粉体の特性・歩留・スループットに ついて述べる。大型ポットミル装置、およびアキシャルミキサー装置を用いた 量産検証を行ったが、ここでは、スループットに大きな優位性があることから、 主にアキシャルミキサーでの結果について述べる。

【特性】

量産検証機のアキシャルミキサーを用いて作製した試料に対して得られた磁気特性および電気特性の測定結果を表 3.3-6 に示す。

表 3.3-6 量産検証機で作製した試料の磁気特性および電気特性の測定結果

| 項目 | | 成膜前 | アキシャルミキサー成膜後 |
|------|----------|-----|--------------|
| 磁気特性 | 保磁力(A/m) | 612 | 598 |
| 電気特性 | 耐圧(V/mm) | | 357 |

今回作製した試料は、磁気特性においては、アキシャルミキサーでの成膜後 において得られた保磁力は 598A/m となり、成膜前からほぼ変化がなかった。一 方、電気特性においては、十分な耐圧が確保できた。

【歩留】

先に絶縁膜形成工程における歩留の導出方法について簡単に説明する。歩留 は、成膜処理前後の軟磁性粉体の重量の差から導出した。ただし、本工程にお いて成膜処理後の軟磁性粉体の重量は、軟磁性粉体とその表面に形成された Si02 膜の重量の合算となっている。従って、成膜処理後の軟磁性粉体の重量は、 この Si02 膜の重量を割り引いて計算する必要がある。図 3.3-23 にこの歩留計 算における仮定を示す。図 3.3-23 に示すように、粉体は全て球状であると仮定 した。また、粉体の平均粒径 D50=10μm、成膜処理により形成された Si02 膜の 膜厚は図 3.3-13 や図 3.3-20 で示した断面 TEM の結果を受けて 20nm と仮定した。



粉体粒子の平均粒径D50 = $10 \mu \text{ m}$ 形成されるSiO2膜厚 = 20 nmとした。

図 3.3-23 歩留計算における仮定

上記の仮定の下で、粉体粒子1個あたりのSi02膜の体積は次のように計算で きる。

$$4/3 \times \pi \times (粉体粒子の半径 + Si02 膜厚)3 - 4/3 \times \pi \times (粉体粒子の半径)3$$
 (式 3. 3. 1)

(式 3.3.1) は球の体積計算の公式であり、これを計算すると成膜処理により形成された SiO2 膜の体積の増加分 ΔV が得られる。この ΔV に SiO2 の比重をかけることで粉体 1 粒子あたりに成膜された SiO2 の重量が計算される。

 $\Delta V \times Si02$ の比重 = 粉体1粒子あたりに成膜されたSi02の重量 (式3.3.2)

次に、以下の(式 3.3.3)により単位体積あたりに含まれる粉体の粒子数を計算する。

単位体積あたりに含まれる粉体の粒子数 = 1 / $\{4/3 \times \pi \times (% M \oplus \pi^2)^3\}$ (式 3. 3. 3)

また、以下の(式 3.3.4)により単位重量あたりの粉体の体積を計算する。
単位重量あたりの粉体の体積 = 1 / 粉体の比重

(式 3.3.4)

ここで、(式 3. 3. 2)と(式 3. 3. 3)をかけることで単位体積あたりに成膜された Si02 重量が得られる。

(式 3. 3. 2) × (式 3. 3. 3)

= 粉体1粒子あたりに成膜されたSi02の重量 × 単位体積あたりに含まれる粉 体の粒子数

= 単位体積あたりに成膜された Si02 重量 (式 3. 3. 5)

さらに、(式 3. 3. 4)と(式 3. 3. 5)をかけることで単位重量あたりの粉体に成膜された Si02 重量が得られる。

(式 3.3.4) × (式 3.3.5)

= 単位重量あたりの粉体の体積 × 単位体積あたりに成膜された SiO2 重量 = 単位重量あたりの粉体に成膜された SiO2 重量 (式 3.3.6)

この(式 3.3.6)の値が成膜処理により増加した Si02 重量となる。従って、成膜 処理後の粉体の重量から(式 3.3.6)の値を割り引いた重量が、成膜処理前からの 粉体単体での重量の変化分に相当する。従って、成膜処理工程における歩留の 計算式は以下のように計算できる。

成膜処理工程における歩留(%)

=(成膜前の粉体の重量 / 成膜後の Si02 を含まない粉体のみの重量) × 100

= 「成膜前の粉体の重量 / 「成膜後の粉体の重量 ×

(1/1+単位重量あたりの粉体に成膜された Si02 重量)}]×100(式 3. 3. 7)

上記の(式 3.3.1)~(式 3.3.7)に大型ポットミル装置、およびアキシャルミキサ ー装置での粉体の投入量および回収量、粉体である鉄粒子の比重、Si02の比重 の値を代入して歩留を計算した結果を表 3.3-7 に示す。

| | 大型ポットミル | アキシャルミキサー | | | | |
|-----------------------|---------|-----------|--|--|--|--|
| 粉体投入量(g) | 7022 | 12136 | | | | |
| 粉体回収量(g) | 6976 | 11740 | | | | |
| 鉄粒子の平均粒子径D50(µm) | 1 | 0 | | | | |
| SiO2膜厚(nm) | 20 | | | | | |
| 鉄1gあたりの Si02成膜量(g) | 0.00426 | | | | | |
| 鉄粒子の比重(g/cm3) | 7.5 | | | | | |
| SiO2の比重(g/cm3) | 2. | 65 | | | | |
| 歩留(%) | 98.9 | 96.3 | | | | |

表 3.3-7 量産検証機による歩留計算

表 3.3-7 に示すように、量産検証機として大型ポットミル、およびアキシャル ミキサーで成膜処理を行った際の歩留はそれぞれ、98.9%、96.3%となった。

【スループット】

次に、量産検証機として大型ポットミル、およびアキシャルミキサーで成膜 処理を実施した際のスループットについて述べる。スループットは以下の(式 3.3.8)によって計算することができる。

スループット = 粉体投入量 / 粉体投入から回収完了までの作業時間の和 (式 3. 3. 8)

① 大型ポットミルの場合

大型ポットミルで 7kg の軟磁性粉体に対して成膜処理を行った場合の粉体の 投入開始から粉体の回収完了までの各作業の所要時間と得られたスループット について表 3.3-8 に示す。

| 大型ポットミル | |
|---------------|-----|
| 処理量(kg) | 7 |
| 粉・薬品投入時間(min) | 15 |
| 攪拌時間(min) | 60 |
| 回収時間(min) | 20 |
| 乾燥・回収時間(min) | 55 |
| スループット(kg/h) | 2.8 |

表 3.3-8 大型ポットミルのスループット

表 3.3-8 に示すように、大型ポットミルを使用して 7kg の粉体の成膜処理を行った場合、粉体の投入から回収完了までのスループットは 2.8kg/h となった。

② アキシャルミキサーの場合

アキシャルミキサーで12kgの軟磁性粉体に対して成膜処理を行った場合の粉体の投入開始から粉体の回収完了までの各作業の所要時間と得られたスループットについて表 3.3-9 に示す。

| アキシャルミキサー | |
|----------------|-----|
| 処理量(kg) | 12 |
| 粉・薬品投入時間(min) | 10 |
| 薬品投入後待機時間(min) | 5 |
| 攪拌時間(min) | 60 |
| 乾燥時間(min) | 50 |
| 冷却時間(min)(水冷) | 15 |
| 回収時間(min) | 10 |
| スループット(kg/h) | 4.8 |

表 3.3-9 アキシャルミキサーのスループット

表 3.3-9 に示すように、アキシャルミキサーを使用して 12kg の粉体の成膜処理 を行った場合、粉体の投入から回収完了までのスループットは 4.8kg/h となっ た。

以上の結果から、アキシャルミキサーのスループットは大型ポットミルのスル ープットを大きく上回っていることを確認した。

歩留とスループットの両方の観点から大型ポットミルとアキシャルミキサーについてまとめた結果を表 3.3-10 に示す。

表 3.3-10 大型ポットミルとアキシャルミキサーの歩留と

| | 大型ポットミル | アキシャルミキサー |
|-----------------|---------|-----------|
| 歩留(%) | 98.9 | 96.3 |
| スループット(kg/h) | 2.8 | 4.8 |
| 歩留×スループット(kg/h) | 2.77 | 4.62 |

スループットの比較

上記の通り、歩留とスループットを掛け合わせた正味の粉体の回収量において も、アキシャルミキサーが大型ポットミルを大きく上回っていることを確認し た。

<量産検証機の選定>

次に昨年度(平成 30 年度)の撹拌機による絶縁膜形成工法も含めた量産検証 機の比較を表 3.3-11 に示す。

| | ①大量処理の 実施可能性 | ②大粒子への 成膜可能性 | ③均一成膜性 | ④処理後の粉体 回収の効率性 | ⑤工程の省略 可能性 |
|----------------------|--------------------------------|--|--|--|--|
| I. 搅拌機 (II30年度検証) | △ 攪拌羽根・容器 サイズともに 限界あり | △ 高速回転により ある程度は可能 | △ 高速回転で持ち上げ 可能な粒子サイズに 限度があり。 大粒子と小粒子で 膜厚のバラツキ発生 | △ 薬液を捨てた後に 粉体を回収する 必要あり | △ 別途、回収後の スラリーの乾燥が 必要 |
| II.大型ポットミル | 〇 量産スケールの 装置あり | △ 高速回転により ある程度は可能 | △ 高速回転時に塊が 発生。成膜されない 粒子が発生して 膜厚のバラツキ発生 | △ 薬液を捨てた後に 粉体を回収する 必要あり | △ 別途、回収後の スラリーの乾燥が 必要 |
| III. アキシャルミキサー | 〇 量産スケールの 装置あり | ○ 装置底面に攪拌羽根 があるため、底に 沈んだ大粒子でも 攪拌・成膜が可能 | 〇 装置側面に塊を 破壊するための 攪拌羽根により 塊の発生を抑制。 膜厚のバラツキ抑制 | ○ 薬液を装置内で 乾燥させた後、 装置下部から一気に 粉体の回収が可能 | ○ 成膜後の粉体を 装置内でそのまま 乾燥できるため 乾燥工程・装置の 削減が可能 |

表 3.3-11 量産検証機の比較

※1 出典 IKA社 https://www.askul.co.jp/p/3752958/

※2 出典 MMFック株式会社ホームページ https://www.mm-tec.jp/products.html ※3 出典 杉山重工株式会社ホームページ https://www.e-sugiyama.co.jp/products/mixture/axialmixer-60th.html

歩留やスループットといった生産性以外の項目についても大型ポットミルとア キシャルミキサーの比較を行った結果について表 3.3-11 に基づいて説明する。 まず、①大量の粉体処理の実現可能性という点では、大型ポットミルもアキシ ャルミキサーも、ともに量産スケールに対応した容器サイズの装置が市販され ており優劣はない。次に②大粒子への成膜可能性という点では、大型ポットミ ルの場合、ローラーの回転数を高速にすることで、重量がある大きな粒子サイ ズの粒子でも、遠心力によりポットミル内壁に沿って粒子を引き上げて攪拌す ることはある程度は可能だと考えられる。一方、アキシャルミキサーの場合は、 装置内部の底面に攪拌用の羽根が存在しているため、攪拌回転数に依存せず重 量がある大きな粒子サイズの粒子でも攪拌することができるという利点がある。 ③均一成膜性という点では、大型ポットミルの場合、前述した高速回転を行う と、図 3.3-12 で示したような塊が発生してしまう。この塊の内部では絶縁膜を 形成する反応が発生しにくくなるため、膜厚のばらつきの原因となる。一方、 アキシャルミキサーの場合は、装置内部の側面に塊を破壊するためのチョッパ と呼ばれる羽根が備え付けられている。これにより塊の発生は抑制されるため、 均一成膜性の点で優れている。図 3.3-24 にアキシャルミキサーの装置内部の写 真を示す。



図 3.3-24 アキシャルミキサーの装置内部

次に④処理後の粉体の回収の効率性、⑤工程の省略可能性という点では、大型 ポットミルの場合、成膜処理後のスラリーから薬液を乾燥させるか、ろ過など の手法により分離してから粉体を回収する必要がある。一方、アキシャルミキ サーの場合は、成膜処理後のスラリーを、そのまま容器内で乾燥することが可 能である。このため別途乾燥炉を設置するコストや、乾燥炉にスラリーを搬送 するなどの手間を省略することが可能である。さらに、アキシャルミキサーの 装置底面は竹を斜めに切ったような傾斜がある構造になっている。そしてこの 装置底面の最下部を開放することで、乾燥後の粉体を重力により落としながら 回収することができるため、粉体回収の効率性が高い。アキシャルミキサーの 乾燥後の粉体の回収作業の様子を図 3.3-25 に示す。



図 3.3-25 アキシャルミキサーの乾燥後の粉体の回収作業の様子

以上述べてきたように、歩留、スループットに加えて大粒子への成膜可能性、 均一な成膜性、回収の効率性、工程の省略可能性など様々な観点を踏まえて考 慮した結果、量産検証機としてはアキシャルミキサーを選定する。

<絶縁膜形成工程における Si02 残渣除去の検討>

スループットの評価に関連して、絶縁膜形成工程における Si02 残渣除去の検討を行った内容と評価結果について述べる。昨年度(平成 30 年度)の取り組みである絶縁膜形成の工法検証において、成膜処理後に Si02 の粒子が残渣として析出するという現象が発生していた。その時の Si02 残渣の断面 SEM 写真を図3.3-26 に示す。



図 3.3-26 成膜処理後の Si02 残渣の断面 SEM 写真

図 3.3-26 において、粒状の粒子が Si02 残渣であり、その粒径は約 300~400nm である。この Si02 残渣は次のようなメカニズムで発生すると考えられる。①粉 体への Si02 成膜処理時に、ゾルーゲル法の加水分解反応により生成したシロキ サン結合を含む高分子が発生する。②この高分子は溶液中で粉体表面の酸化膜 の水酸基との間での脱水縮合反応により結合して粉体表面を覆う Si02 膜となる。 ③この時、成膜処理に必要な量以上の余剰な高分子が存在していると、高分子 同士の間で脱水縮合反応が起こり、Si02 粒子として溶液中に析出する。このよ うな Si02 残渣が存在していると、磁気特性が低下するため、成膜処理工程にお いては Si02 残渣は可能な限り除去することが望ましい。そこでここからは、成 膜処理後に残渣除去を行う工程を追加した場合と成膜処理工程において残渣の 発生を抑制した場合の2つのアプローチの検討結果について述べる。 <成膜処理後の Si02 残渣除去の検討>

最初に成膜処理後にSi02残渣を除去する方法として①遠心分離、②ろ過の2 種類の残渣除去の検討を行った。内容としては、これまでの検討と同じ平均粒 径10µmの水アトマイズ粉を使用し、ポットミルで3kgの粉体に対して成膜処 理を行った。それから成膜処理後のスラリーに対して上記の2種類の残渣除去 のための処理を行うことで、Si02残渣を除去することができるかどうかを確認 した。評価方法としては、各処理を行った後の粉体の成型品を作製して断面SEM 画像を確認した。また、Si02残渣と疑われる粒径の粒子のスポットEDX測定を 行うことで組成分析を行った。

① 遠心分離

【実験内容】

・実験水準

表 3.3-12 の①から⑥の条件

表 3.3-12 遠心分離条件

| | 条件① | 条件② | 条件③ | 条件④ | 条件⑤ | 条件⑥ |
|-----------|-----|-----|-----|------|------|------|
| 遠心効果(G) | 500 | 500 | 500 | 1000 | 1000 | 1000 |
| 沈降時間(sec) | 30 | 60 | 180 | 30 | 60 | 180 |

表 3.3-12 において、遠心効果と沈降時間はいずれも値が大きい方が、強度の 強い分離条件となる。

・評価項目

断面 SEM EDX (スポット)

【実験結果】

図 3.3-27 に①~⑥を代表して、条件①と③の遠心分離処理後の粉体の成型品の断面 SEM の結果を示す。断面を観察した結果、図 3.3-27 で示したような Si02 残渣の塊の析出は確認できなかった。ただし、Si02 残渣が塊ではなく単独で析出している可能性もある。

そこで、図 3.3-27 において SiO2 残渣と粒子サイズが近いいくつかの粒子について、スポット EDX による組成分析を行った結果を図 3.3-28 に示す。



図 3.3-27 遠心分離後の粉体の成型品の断面 SEM 写真



図 3.3-28 スポット EDX による組成分析結果

図 3.3-28 に示すように、EDX 分析を行ったいずれの粒子においても主成分とし て Fe が検出された。従って、これらの粒子は SiO2 残渣ではなく、ナノメート ルサイズの微小な鉄粒子に SiO2 膜が成膜された粒子だと推測される。今回の検 討では、最も遠心分離強度の弱い条件①においても SiO2 残渣が確認できなかっ たことから、今回検討した条件①~⑥の全ての条件において、Si02 残渣の除去 が可能であると考えられる。

② ろ過

【実験内容】

·実験水準

表 3.3-13 の①から⑦の条件

表 3.3-13 ろ過の条件

| | 条件① | 条件② | 条件③ | 条件④ | 条件⑤ | 条件⑥ | 条件⑦ |
|--------------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| 原液ろ過 | あり |
| リンス洗浄回数(回) | 0 | 1 | 2 | 3 | 0 | 0 | 0 |
| リスラリー洗浄回数(回) | 0 0 | 0 | 0 | 0 | 1 | 2 | 3 |

表 3. 3-13 において、リンス洗浄とは、原液ろ過後のケーキに対してエタノー ルを上から流しかける処理を意味している。また、リスラリー洗浄とは、原液 ろ過後のケーキに対して、エタノール中で再分散する処理を意味している。例 えば、リスラリー洗浄を2回行っている条件⑥の場合は、「原液ろ過→ケーキ 回収→エタノール中で再分散(リスラリー)→ろ過→ケーキ回収→エタノール中 で再分散(リスラリー)→ろ過→ケーキ回収、という処理を行っている。従って、 条件①~⑦で番号が大きい条件ほど、ろ過(洗浄)の強度が強い条件となる。

·評価項目

断面 SEM

EDX (スポット)

【実験結果】

図 3.3-29 に①~⑦を代表して、条件①と④と⑦のろ過処理後の粉体の成型品の断面 SEM の結果を示す。断面を観察した結果、図 3.3-26 で示したような SiO2 残渣の塊の析出は確認できなかった。ただし、SiO2 残渣が塊ではなく単独で析出している可能性もある。

そこで、図 3.3-29 において SiO2 残渣と粒子サイズが近いいくつかの粒子について、スポット EDX による組成分析を行った結果を図 3.3-30 に示す。



図 3.3-29 ろ過後の粉体の成型品の断面 SEM 写真



図 3.3-30 スポット EDX による組成分析結果

図 3.3-30 に示すように、EDX 分析を行ったいずれの粒子においても主成分とし てFe が検出された。従って、これらの粒子は SiO2 残渣ではなく、ナノメート ルサイズの微小な鉄粒子に SiO2 膜が成膜された粒子だと推測される。今回の検 討では、最もろ過強度の弱い条件①においても SiO2 残渣が確認できなかったこ とから、今回検討した条件①~⑦の全ての条件において、SiO2 残渣の除去が可 能であると考えられる。 <成膜処理工程における残渣発生の抑制の検討>

次に成膜処理工程における残渣発生の抑制の検討結果について述べる。成膜 処理工程において成膜に寄与しない過剰なシロキサン結合の発生自体を抑制す ることができれば、Si02 残渣の発生も防ぐことができるため、前述した成膜処 理後に Si02 残渣を除去する工程自体が不必要となる。

Si02 粒子の発生する酸化鉄の分散濃度と TEOS の限界濃度の関係を図 3.3-31 に示す。TEOS の加水分解による酸化鉄粒子へのシリカコーティングにおいて、 Si02 粒子が単独で析出する TEOS の限界濃度 CT (mol/1) と酸化鉄粒子の分散濃度 CF (mol/1)の間には簡単な直線関係があり、この直線の下側の領域で成膜を行え ば、シリカ粒子の析出を防ぐことができることが知られている。



Fig. 4. Relation between the limited precipitation concentration of TEOS ($C_{\rm T}$) and the dispersed concentration of ferric oxide ($C_{\rm F}$).

出典: Azuma et al. Journal of the Ceramic Society of Japan 100[5]646-651(1992)

図 3.3-31 Si02 粒子の発生する酸化鉄の分散濃度と TEOS の限界濃度の関係

また、図 3.3-31 によると TEOS と酸化鉄のモル濃度だけでなく、アンモニア と水のモル濃度も SiO2 粒子発生の TEOS の限界濃度に影響を与えていることが 分かる。さらに、図 3.3-31 によると、酸化鉄の分散濃度が一定の条件の下では、 アンモニアのモル濃度が 2mol/1 から 1mol/1 に減少すると SiO2 粒子が析出しや すくなる。このことはアンモニアのモル濃度が減少すると TEOS の加水分解速度 よりも、シロキサン結合を含む高分子の脱水縮合反応が早くなることを表して いると考えられる。従って、アンモニアのモル濃度の減少は SiO2 粒子が析出し やすくなる条件だと考えられる。また、図 3.3-31 から酸化鉄の分散濃度が一定 の条件の下では、TEOS のモル濃度が高くなるほど、SiO2 粒子が析出しやすくな ることがわかる。以上を踏まえると、アンモニアの TEOS に対するモル濃度は高 く、かつ、鉄粒子のモル濃度に対する TEOS のモル濃度比率は低く調整することが SiO2 残渣の発生を抑制するための鍵となることが分かる。

図 3.3-26 の断面 SEM 写真で示した昨年度の Si02 残渣が発生した成膜条件について、酸化鉄粒子に対するエタノール、アンモニア水、TEOS のモル濃度比を計算した結果を表 3.3-14 に示す。

| | 鉄に対するモル濃度比 |
|--------|------------|
| エタノール | 770 |
| アンモニア水 | 68 |
| TEOS | 27 |
| 鉄 | 100 |

表 3.3-14 Si02 残渣が発生した成膜条件

次に、前述したアキシャルミキサーにおける量産検証において使用した、SiO2 残渣発生を抑制するために調整した成膜条件を表 3.3-15 に示す。表 3.3-14の 条件と比較して、SiO2 粒子の元となる TEOS のモル濃度を鉄粒子のモル濃度に対 して減少させ、TEOS に対するアンモニアのモル濃度は高くなるように調整を行 った。

| 表 3.3-15 | Si02 | 残渣が発生を抑制す | るため | っに調整 | した成膜条件 |
|----------|------|-----------|-----|------|--------|
|----------|------|-----------|-----|------|--------|

| | 鉄に対するモル濃度比 |
|--------|------------|
| エタノール | 28 |
| アンモニア水 | 6 |
| TEOS | 2 |
| 鉄 | 100 |

表 3.3-15 に示す条件で成膜処理を行った粉体に対して成型品を作製して断面観 察およびスポット EDX 観察を行った。

【実験内容】

・実験水準
表 3.3-15 に示す成膜条件

・評価項目 断面 SEM EDX (スポット) 【実験結果】

図 3.3-32 に断面 SEM の結果を示す。断面を複数箇所に渡り観察した結果、図 3.3-26 で示したような Si02 残渣の塊の析出は確認できなかった。ただし、Si02 残渣が塊ではなく単独で析出している可能性もある。

そこで、図 3.3-32 において SiO2 残渣と粒子サイズが近い粒子について、スポ ット EDX による組成分析を行った結果を図 3.3-33 に示す。



図 3.3-32 SiO2 残渣発生を抑制する成膜条件で成膜した粉体の成型品の 断面 SEM 写真



図 3.3-33 スポット EDX による組成分析結果

図 3.3-33 に示すように、EDX 分析を行ったいずれの粒子においても主成分として Fe が検出された。従って、これらの粒子は SiO2 残渣ではなく、ナノメート ルサイズの微小な鉄粒子に SiO2 膜が成膜された粒子だと推測される。 以上の結果から、成膜処理後に遠心分離やろ過などのSiO2残渣除去の工程を 追加せずとも、成膜処理におけるアンモニア水やTEOSのモル濃度を最適化する ことで、成膜処理工程中における残渣発生の抑制が可能であることを確認でき た。従って、残渣除去工程は省略可能であり、絶縁膜形成工程における歩留お よびスループットの値はアキシャルミキサーの検討の項で述べた歩留96.3%、ス ループット4.8kg/h で変わらない。なお、本節の絶縁膜形成工程のスケールア ップ検討においては主に他社製の水アトマイズ粉を用いて評価を行ったが、粉 砕粉を使用した場合も同様の結果が得られる。

3.3.4. CO2 排出量の検証

絶縁膜形成工程については、本事業と、比較対象としたアトマイズ粉を作製 した場合との間で処理方式に大きな差異は発生しない。従って、CO2 排出量に有 意な差は現れないと考え、検証の対象外とした。

3.4. 一括ライン製造による高スループット化の検討

微粉砕、ナノ結晶化、絶縁膜形成の主要3工程を繋ぐ設備を検討し、軟磁性合 金薄帯の粉砕粉の一括ライン製造によるスループット向上を検討した。

主要3工程を繋ぐ工程として、サイクロンミルに投入できるサイズに薄帯を粉砕する「粗粉砕」、サイクロンミルで生成される粉体を分級する「分級」、熱プレス機への粉体供給を自動化するスキージによる「印刷」、絶縁膜形成過程で発生する不純物の「残渣除去」において、高スループット化を検討した。それぞれの工程で使用する設備のスループットは、主要3工程のスループット以上とした。

「粗粉砕」は、「3.1. 粉砕の歩留向上の検討」で述べたとおり、軟磁性合 金薄帯を5mm角程度に粉砕可能な三力製作所製の三力式粉砕機SF-3を使用した。 「分級」は、「3.1. 粉砕の歩留向上の検討」で述べたとおり、強力な縦振動 が特徴のエステクノ製のハイシフター701型を使用した。「印刷」は、「3.2. ナ ノ結晶化のスケールアップの検討」で述べたとおり、薄板の上に粉体を薄く広 く均一厚に広げるスキージを使用した。「残渣除去」は、「3.3. 絶縁膜形成 のスケールアップの検討」で述べたとおり、TEOSの加水分解反応を抑制するプ ロセスを確立することで、工程そのものを省略した。 それぞれの設備において、軟磁性合金薄帯およびその粉砕粉を使用して、ス ループットの試験検証を実施した。3.1~3.3項で述べたとおり、粗粉砕31.8kg/h、 分級43.4kg/h、印刷12.1kg/hで、目標スペック(粉砕工程のスループット3.5kg/h 以上)を達成した。

また、それぞれの設備において、軟磁性合金薄帯およびその粉砕粉を使用して、C02排出量を試験検証した。3.1~3.3項で述べたとおり、粗粉砕

0.144kg-C02/kg、分級0.006kg-C02/kg、印刷0.001kg-C02/kgであった。

今後、事業化に向けて、主要3工程の設備へ組み込み、自動化を図ることで、 一括ライン製造による高スループット化が実現できると考える。

3.5. 粉砕ロス材の他商品展開性の検討

3.5.1. 粉体工程において生成される粉体

表 3.5-1 は、粉砕工程において生成される粉体を示す。粉体②が本事業で主 にターゲットとしている粉体のサイズ・形状であり、用途としては、インダク タを想定している。粉体①、粉体③、粉体④は、副産物として同時に生成され る粉体である。粉体③及び粉体④は、粉砕工程の中で、軟磁性合金薄帯から粉 体②と共に分割されたものであり、粉体②と同様に高い磁気特性を有する。粉 体①は、サイクロンミル装置内の旋回気流の中で粉体同士が衝突し、球形化し ていく過程で、各粉体から削り取られたもので、応力歪や酸化の度合いが大き く、磁気損失が大きくなっている。

| | 粉体① | 粉体② | 粉体③ | 粉体④ |
|----------|-------------------|------------------|-------------------|---------------------|
| 粒径(d50%) | $1 \sim 10 \mu$ m | $10\sim 20\mu$ m | $20\sim 50 \mu$ m | $50 \sim 200 \mu$ m |
| 形状 | 扁平 | 楕円体 | 球状 | 扁平 |
| 写真 | ×1000 | ×500 | × 500 | ×100 |

表 3.5-1 粉砕工程で生成される粉体種類

3.5.2. 適用可能な用途

LCA の観点から、それぞれの粉体の商品への適用可能性を調査した。図 3.5-1 は、軟磁性合金粉体の適用が見込める市場を示している。



図 3.5-1 軟磁性合金粉体の適用市場(2018 年実績)

軟磁性合金粉体の用途としては、次の6つが候補として挙げられる。

- ① スマートフォン用インダクタ
- ② 情報機器用インダクタ
- ③ 充放電システム向けインダクタ
- ④ 車載ECU/DCDCコンバータ向けインダクタ
- ⑤ 車載リアクトル
- ⑥ ノイズ抑制シート

① スマートフォン用インダクタ

商品の市場規模は、2018 年で 2000 億円と最も大きく、粉体全体の需要として は、3000t となっている。粉体材料の中で、アモルファス及びナノ結晶材料がそ の5割を占め、1500t となっている。図3.5-2 は、スマートフォン用インダクタ に適用される粉体の粒径及び磁気損失とその市場展望を示している。



図 3.5-2 スマートフォン用インダクタに適用される粉体の粒径と磁気損失

インダクタは流れる電流によって形成される磁場にエネルギーを蓄えること ができる受動素子である。電源用と信号用があり、電源用のインダクタは電流 を平滑化する、エネルギーを蓄積するといった役割を持ち、信号用のインダク タはノイズ対策に使用される。受動部品であることから、様々な機器の回路に 搭載されている。そのため、用途はあらゆる分野に関わっている。

スマートフォンの機能付与に伴い、スマートフォン用インダクタの平均搭載 員数は増加傾向にある。最終製品の市場規模も10億台程度と大きいことから、 インダクタの市場規模はスマートフォン向けで大きく拡大していくと考えられ る。

今後は、デバイスのトレンドとして、5Gに対応した高周波化や、高機能化と 搭載員数の増加に対応した小型化が求められる。ここで、従来から用いられて いるフェライトでは、ニーズに適合しにくくなっている。アモルファス、ナノ 結晶材料は、磁気損失と飽和磁束密度のバランスで優位性があり、採用が拡大 している。2025年には、3800tある粉体市場の7割を占め、2650tの需要を見込 むことができる。また、粉体のサイズとしては、現在は、20~50μmサイズの 粉体が主流であるが、大容量化・小型化に対応できるインダクタは粒径サイズ の小型化で周波数を上げることが可能となることから性能強化を図ることが重 要になる事に加え今後のガスアトマイズの量産技術の進展により、10~20μm サイズの粉体の需要が伸びると推定される。

価格は最終製品の市場価格の低価格化が進むことが想定される。アモルファ スで1,500~2,000円/kg、ナノ結晶で5000円を若干下回る価格になり、最終製 品の市場価格下落圧力を受けて部材についても価格下落圧力が強まると考えられる。

以上から、スマホ用インダクタとして、粉体②及び粉体③の適用を見込むこ とができる。

② 情報機器用インダクタ

商品の市場は2018年では、2500億円あり、粉体全体の需要としては4700t となっている。図 3.5-3は、情報機器用インダクタに適用される粉体の粒径と 磁気損失を示している。



図 3.5-3 情報機器用インダクタに適用される粉体の粒径と磁気損失

今後特に注目される用途としては、5G/高速通信、特に通信設備が挙げられる。 中でも高周波製品の搭載員数が増加し、これに連動してインダクタの搭載数も 増加すると考えられる。通信設備における用途はスモールセルとマクロセルで あるが、中でも注目すべきはスモールセルである。

スモールセルは、5G で採用されるミリ波帯のような超高周波帯域において、 既存の周波数帯よりもさらに直進性が強まり、通信距離も短くなることから、 市場性が期待されている。今後とも通信需要の増大は大いに期待できるもので あり、スモールセルの市場拡大と合わせて、当該用途でのインダクタの採用数 の増加も期待される。 一方、マクロセルは、先進国地域では主にLTE インフラの敷設は一巡してお り、新興国地域での投資がメインとなっている。2019年以降の5G導入に伴いマ クロセル基地局市場も需要回復の期待がかかるが、2015年以降に敷設されたLTE 基地局はソフトウェアアップデートでの5G対応が可能であることから、新設お よびリプレース需要もさほど期待できないとみられる。また、混雑地域対策は スモールセルの敷設でカバーしていくという見方が中心であり、5Gマクロセル を積極的に敷設していく意向があるのは中国のみとみられることから、マクロ セルとしての需要は縮小していくと予測される。

現状では粒径で 50 µ m以上の鉄系が主に採用されているが、低鉄損のニーズ から粒径を小さくし、渦電流の流れる範囲を小さくすることで粒子内渦電流を 抑制することが重要である。また、小型化ニーズに対応することも重要となる。 しかし、粒径の縮小は表面積の増加を招くことから、ヒステリシス損が増加す るため、最適な粒径を得ることも考慮しなければならない。粒径 15~50 µ m、 磁気損失 100~200kW/m²程度でバランスをとることが最適と考えられる。価格は アモルファスで 1,500~2,000 円/kg、ナノ結晶で 5,000 円/kg 程度の価格になる。 通信需要の増大から比較的高品質のものが求められ、価格は高止まりすると考 えられる。

以上から、情報機器用インダクタとして、粉体②及び粉体③の適用を見込む ことができる。

③ 住宅充放電システム用インダクタ

商品の市場は2018年では、0.5億円あり、粉体全体の需要としては、3kg となっている。図3.5-4は、住宅充放電システム用インダクタに適用される粉 体の粒径と磁気損失を示している。

戸建住宅向け、集合住宅向けに供される電池と充電器、変換装置等を組み合 わせたシステムのうち、系統連系タイプの製品が対象となる。

主に系統電力やPV由来の電力から充電し、災害時・停電時等における非常用 電源用途、深夜電力・日中に発生したPV電力を充電しつつピーク負荷時に放電 するピークシフト用途、契約電力の超過を防止したり/引き下げたりするピーク カット用途、PV や常用発電機と組み合わせて導入される独立電源用途で用いら れる製品が対象となる。

PV 電力の自家消費拡大を見据え、PV の発電と蓄電システムの充放電を一括 して管理するハイブリッド PCS の採用が増加している。ハイブリッド PCS のメ リットとしては、PV から蓄電池に至るまで直交変換や電圧調整の回数が少ない ためエネルギーロスが抑えられることや、PV と蓄電システムを合わせて考えた 場合の全体システムコスト及び設置スペースを抑制できることがメリットとし て挙げられる。日常的に充放電を行うため、サイクル性能に優れたリチウムイ オン電池に加え、充放電システムに対応した電力変換モジュールの役割が期待 されている。

フェライトに比ベメタル系は大電流での使用が可能となることから、省エネ の観点からアモルファスやナノ結晶に対する期待が高い。現状では20~50µm、 100~200kw/m³であるが、住宅で使用される機器の大電流化・省エネ対応の強化 が一層進むことから、10~20µm程度まで粒形の微細化することで効率向上を 図ることが可能となる。価格はアモルファスで1,500円/kg程度となる。住宅設 備は低価格であることが求められることから、構成部材についても価格は下値 で推移すると考えられる。



図 3.5-4 住宅充放電システム用インダクタに適用される粉体の粒径と磁気 損失

以上から、住宅充放電システム用インダクタとして、粉体③の適用を見込む ことができる。

④ 車載用 ECU/DCDC コンバータ用インダクタ

自動車の動力、および動力伝達を制御する ECU を商品の市場は 2018 年では、 550 億円あり、粉体全体の需要としては、150t となっている。粉体材料として は、メタル系やフェライト系などが殆どを占める。図 3.5-5 は、車載用 ECU/DCDC コンバータ用インダクタに適用される粉体の粒径及び磁気損失と市場展望を示している。



図 3.5-5 車載用 ECU/DCDC コンバータ用インダクタに適用される 粉体の粒径と磁気損失

今後は、EVの普及やさらなる電子化により市場が拡大するが、小型軽量化 且つ大電流への対応が必須である。アモルファス及びナノ結晶材料は、低鉄損、 高飽和磁東密度であることから、採用の拡大が進み、2025年には、市場 290 t の7%近くを占め、20tの需要を見込むことができる。粉体サイズとしては、50 μm以上であるが、10~20μmサイズの粉体のナノ結晶粉末を利用することで、 飽和磁東密度が上昇し、高周波帯域での利用が拡大することに加え、今後のガ スアトマイズの量産技術の進展により需要も伸びると推定される。

価格はアモルファスで 2,000 円/kg、ナノ結晶で 5,000 円/kg 以上の価格になる。自動車業界の保守性から採用には他業界での豊富な採用実績が欠かせないが、いったん採用されると安定した需要が見込まれる重要な市場と考えられる。 スペックインとその後の自動車メーカーとの継続的な取引関係の構築が重要な市場といえ、各社にとって技術力の差別化が図られる領域といえる。

粉体②及び粉体③の適用を見込むことができる。

⑤ 車載リアクトル

商品の市場は2018年では、82億円あり、粉体全体の需要としては、230万t となっている。図3.5-6は、車載リアクトルに適用される粉体の粒径及び磁気 損失と市場展望を示している。

リアクトルは、入力された電圧を昇圧して出力する昇圧コンバータの基幹部 品の1つである。誘導リアクタンスを有効に利用したもので、磁気エネルギー を蓄積すると共に電流の高周波成分を除去する機能がある。使用される目的と しては、バッテリの直流電圧を上げたり、整流したりするものとなる。本項で 取り上げる車載リアクトルは、ハイブリッド車の昇圧インバータを対象として、 車両の高出力化に伴う昇圧コンバータに使用されるものとする。

コア材料から見た場合に、圧粉コアと電磁鋼板の2つに分けることができる が、要求スペックから圧粉コアが大半を占めている。高電圧化のニーズに対応 して昇圧コンバータを搭載する環境対応車が増えており、市場拡大が期待され る。車両の電動化の進行に伴い、単なる燃費対策だけでなくガソリン車並みの 走行性能、加速性能を実現するため、モータの高出力化が求められている。放 熱性の問題から、高周波鉄損が低く、また飽和磁束密度の高いものが求められ ている。

現状では鉄系が主に採用されており、粒径サイズは 60~70 µ m程度、飽和し にくく比較的柔らかいという特徴が評価されている。今後は 10~20 µ m、50 k W/m³程度のアモルファスなどが採用される可能性があり、低損失の特徴を生か すことが期待されている。しかし、採用が進むには価格面での対応と、特性を 生かすべく密度を上げる必要があるが、材料が固いことから成形性に劣るとい う課題があり、需要量は不明である。

価格はアモルファスで 2,000 円/kg、ナノ結晶で 5,000 円/kg 以上の価格になる。④ 車載用 ECU/DCDC コンバータ用インダクタ同様、自動車業界向けという 点で、いったん採用されると安定した需要が見込める市場と考えられる。



図 3.5-6 車載リアクトルに適用される粉体の粒径と磁気損失

以上から、車載リアクトルとして、粉体②の適用の可能性はあるが、需要量 は不明である。

⑥ ノイズ抑制シート

ノイズ抑制シートは特定の周波数の電磁波を吸収し、筐体の内部干渉、筐体 外へのノイズ干渉を防ぐためのシート製品である。ノイズ対策用途は、設計段 階では予測されていなかったノイズが製品段階で検出された場合や、あらかじ めノイズの発生が想定されていた場合も対策として使用される。

商品の市場規模は2018年では、460億円あり、粉体全体の需要としては、230t となっている。材料としては、フェライト及びセンダストの粉体が殆どを占め る。図3.5-7は、ノイズ抑制シートに適用される粉体の粒径及び透磁率と市場 展望を示している。今後は、高周波が進み、センダストよりも低鉄損で直流重 畳特性が優れるアモルファス及びナノ結晶材料の採用の拡大を想定することが できる。2025年には、粉体市場680tのうち、10%の70tを見込むことができ る。

粉体のサイズとしては、50μm以上が大半であり、形状は、ノイズ抑制シートを薄くするために、扁平である必要がある。さらに扁平の場合、粒径が大きいほど、同じ充填率では磁性シートの実部透磁率をより大きくできる一方、高密度充填が困難になることやシート表面が粗くなることから、軟磁性合金粉末の50%粒子径D50は、50μm~100μm程度であることが好ましいとされる。一方で、平均粒径を50μm以下程度に抑えることにより、シート成形性が良くな

るとされている。配向状態になると充填しにくくなるため、粒径の異なる扁平 粉との併用は不向きとの意見があるほか、高周波特性は充填度が低い状態の方 が特性がよいとされる。扁平粉の粒径を小さくすると、高周波特性が良くなる と想定されることから、10μm以下の単独採用の可能性はある。

価格はアモルファスで 1,500~2,000 円/kg、ナノ結晶で 5,000 円/kg 程度の 価格になる。



図 3.5-7 ノイズ抑制シートに適用される粉体の粒径と透磁率

よって、粉体④が適しているが、シート内の軟磁性粉体の充填率を高め、透 磁率を向上することができれば、粉体①も適用の可能性はある。

以上の調査結果より、生成した粉体②、粉体③、粉体④について、それぞれ 商品へ展開することができると考えられる。

図 3.5-8 は、2025 年を想定した各種粉体の商品への展開を示している。

| | 粒径(μm) | 5 | 10 | 15 | 20 | 25 | 30 | 35 | 40 | 45 | 50 | 55 | 60 | 65 | 70 | 75 | 80 | 85 | 90 |
|----------|---------------------------|--------------------|--------------------------------|------------------|-----------------|----------|----------------------|------------|-----|--------------|----------------|-----------------|-----|-----|---------|-------------|---------------|------------|--------|
| 粉体 材料 | 本事業開発品 | 扁平 形状 | 楕円 |]体形状 | | T | 球形状 | | | | | | | 扁光 | i平 状 | | | | \Box |
| | スマホ用 インダクタ | ~10µm 球形 11% | 10~ # | 20µm 求形 7% | | I | 20~50µ1 球形 82% | m | | | | | | 1 | アモル | ファ | ス/ナノ 2650t | /結晶1 | 市場 |
| | 情報機器用 インダクタ | ~10µm 球形 10% | 10~: 現 1 | 20µm 秋形 0% | | | 20~50 µ 球形 80% | m | | | | | | | アモル | ファン | ス/ナノ 260t | 結晶市 | 市場 |
| र्ज्य म | 住宅充放電システム 用インダクタ | ~10µm 球形 20% | | | | ۲ | 20~50 µ 球形 80% | m | | | | | | 7 | アモル | ファン 1 | ス/ナノ LOkg | 結晶市 | 5場 |
| 间面 | 車載ECU/DCDC用 インダクタ | ~10µm 球形 10% | 10~ £ | 20µm 求形 5% | | | 20~50 µ 球形 85% | m | | | | | | 7 | モル | ファン | ×/ナノ 20t | 結晶市 | 7場 |
| | 車載リアクトル | | | | | | | | | | | | , | 7 | モル | ファン | x/ナノ − t | 結晶市 | ī場 |
| | ノイズ抑制シート | ~10µ ■ 扁平 | ~10 <i>µ</i> m 扇平 30% | | | | | | | | 50 以上 70 | µm :扁平)% | 7 | アモル | ファン | ス/ナノ 70t | 結晶市 | 5場 | |
| | | | | | APR 144 1919 19 | . | D. starts | | | | h th nau | (nana In | | | | | | too that a | |
| | スマホ用 情報機器用 インダクタ インダクタ | | | | 1 7 | 任宅充 1 | 放電シ 'ンダク | ステム! 1タ | # 1 | 車載ECU インタ | /DCDC用 ダクタ | | 車載り | アクト | JL | ノイズ | 抑制シ | | |
| | 需要量見込み | 0 | | | 0 | | | 0 | | | C | | | | × | | | 0 | |

図 3.5-8 各種粉体の商品展開(2025 年予想)

3.6. 他社薄帯材料への展開性の検討

粉砕、ナノ結晶化、絶縁膜形成の3工程で構築した設備を用いて、他社薄帯 材料への展開性を検討した。

他社薄帯材料として、本事業で使用した自社薄帯材料と同程度の保磁力を有 する2社の薄帯を選択した。他社薄帯材料に用いる製造プロセスフローは、前 項までに述べた自社薄帯の粉体化で確立したプロセスレシピを用いた。展開性 は、粉体の基本特性を評価して判断した。他社薄帯材料の粉砕粉を作製したプ ロセスレシピを表 3.6-1 に示す。

| 薄帯材料 | 粗粉砕 | 微粉砕 | 分級 | ナノ結晶化 | 絶縁処理 |
|----------------------|------|---------------|------------|----------|--------------|
| | | | | | Sec. |
| 自社薄帯 A社薄帯 B社薄帯 | 5mm角 | 15000rpm, 20分 | 32µm以下,10分 | 450℃, 4s | 攪拌120rpm, 3h |

表 3.6-1 他社薄帯材料の粉砕粉を作製したプロセスレシピ

他社薄帯材料の評価結果を表 3.6-2 に示す。粉体の基本特性として、粉体の 基本特性として、SEM 画像、粉体の粒径(D50%)、保磁力、飽和磁束密度を自社 材料と比較した。SEM 画像を確認すると、A 社材料、B 社材料とも自社材料と同 程度のサイズ、形状まで粉砕できていることがわかる。粒径(D50%)は、自社 材料が 21.4 µ mに対して、A 社材料が 22.0 µ m、B 社材料が 23.2 µ mであった。 他社材料も自社材料と同程度まで微粉化できることが確認できる。保磁力は、 自社材料が 345A/m に対して、A 社材料が 546A/m、B 社材料が 483A/m であった。 自社材料と比較して、保磁力が大きく、磁気特性が良くないが、保磁力の目標 値である 720A/m を満足し、他社材料も十分な実力があると考える。飽和磁束密 度は、自社材料が 1.76T に対して、A 社材料が 1.61T、B 社材料が 1.6T であった。 自社材料と比較して、飽和磁束密度が低いが、薄帯材料の物性差によるもので ある。

| | 項目 | 自社材料 | A社材料 | B社材料 | |
|-------|-------------------|----------|-----------|-----------|--|
| SEM画像 | | ×1000 | ×1000 | ×1000 | |
| 粉体 | 粒径(D50%) | 21.4[μm] | 22.0[μm] | 23.2[μm] | |
| 基本 | 保磁力(目標720[A/m]以下) | 345[A/m] | ○546[A/m] | ○483[A/m] | |
| 特性 | 飽和磁束密度 | 1.76[T] | 1.61[T] | 1.61[T] | |

表 3.6-2 他社薄帯材料の評価結果

 α Fe 結晶相の結晶化度は、X線回折装置によって得られた粉末試料のX線回 折パターンから得ることができる。自社材料のX線回折分析の結果を図3.6-1 に、A 社材料のX線回折分析の結果を図3.6-2に、B 社材料のX線回折分析の結 果を図3.6-3に示す。 $\theta = 44 \sim 45^{\circ}$ に α Fe 結晶相のピークを持つことが確認で きる。結晶化度の導出方法は以下のとおりである。 α Fe 結晶相の回折パターン と、アモルファス相に特有のブロードな回折パターンを分離する。次に、それ それの回折強度を求めた後、全回折強度に対する α Fe 結晶相の回折強度の比を 計算することによって、結晶化度が得られる。自社材料の結晶化度は77[%]、A 社材料の結晶化度は39[%]、B 社材料の結晶化度は27[%]であった。また、結晶 性ピークの半値幅から Scherrer の式を用いて、結晶サイズを解析した。自社材 料の結晶子サイズは15[nm]、A 社材料の結晶子サイズは9[nm]、B 社材料の結晶 子サイズは7.4[nm]であった。A 社材料、B 社材料は、アモルファス材料のため、 結晶化度が低く、結晶子サイズが小さくなっていると考えられる。



図 3.6-2 A 社材料の X 線回折プロファイル



図 3.6-3 B 社材料の X 線回折プロファイル

他社薄帯材料の粉体化について考察する。

自社材料とA社材料の粉砕後の粒子サイズの割合を図 3.6-4 に示す。他社材料は自社材料より薄帯の硬度が高いため、細かく粉砕することが難しく、32 μ m以下の微粉が減少している。粉砕条件の最適化により、32 μ m 以下の微粉の割合を自社材料のレベルまで増やすことは可能と考える。



図 3.6-4 自社材料と A 社材料の粉砕後の粒子サイズの割合

自社材料、A 社材料、B 社材料の加熱温度と保磁力の関係を図 3.6-5 に示す。 自社材料の加熱温度は、保磁力の最小温度から 450℃としている。ところが、自 社材料と同じ温度で他社材料を加熱すると、保磁力が最小とはならない。A 社材 料の保磁力が最小となるのは 410℃である。B 社材料の保磁力が最小となるのは 430℃である。したがって、材料ごとに加熱温度を最適化することにより、磁気 特性を改善することが可能と考える。他社材料はアモルファス材料のため、結 晶化が進むと、保磁力が大きくなるため、結晶化が進まない温度で加熱するこ とが重要で、その温度が他社材料の最適温度であると言える。ただし、自社材 料と同じ加熱温度でも、保磁力の目標値は達成しているため、自社材料と同じ プロセスレシピで使用することは可能である。



図 3.6-5 自社材料、A 社材料、B 社材料の加熱温度と保磁力の関係

以上の結果から、他社材料も自社薄帯の粉体化で確立したプロセスレシピを 用いて保磁力の目標値 720A/m を達成し、磁気デバイスへの適用が可能である。 したがって、本事業で開発した軟磁性合金薄帯の粉体化の技術は、他社薄帯材 料へも展開可能と考える。

4. 軟磁性合金薄帯の粉体化による実証検証

4.1. 信頼性の試験検証

軟磁性合金薄帯の粉砕粉の信頼性試験の結果について述べる。試験は、①高 温放置試験、②低温放置試験、③熱衝撃(ヒートサイクル)試験、④高温高湿 試験の4種類の信頼性試験を行い、軟磁性合金粉体における磁気特性の経時変 化を検証した。以下、各信頼性試験の内容と結果について示す。

① 高温放置試験

図 4.1-1 に高温放置試験の試験槽の外観写真を示す。高温放置試験槽としては ESPEC 社製 PHH-201M を使用した。



図 4.1-1 高温放置試験槽の外観写真(ESPEC 社製 PHH-201M)

【試験内容】

・試料の初期(0時間)の磁気特性を測定後、試料を150℃の試験槽内に放置。500時間、1000時間、1500時間、2000時間で試験片を抜き取り、磁気特性を測定。 初期からの特性変化を評価。

・評価項目

保磁力

【試験結果】

図 4.1-2 に 2000 時間までの粉体の保磁力の評価結果を示す。保磁力の変動は 小さく、目標値である 720A/m 以下を達成した。



図 4.1-2 粉体の保磁力の高温放置試験結果

② 低温放置試験

図 4.1-3 に低温放置試験の試験槽の外観写真を示す。低温放置試験槽としては ESPEC 社製 PG-2J を使用した。



図 4.1-3 低温放置試験槽の外観写真(ESPEC 社製 PG-2J)

【試験内容】

・試料の初期(0時間)の磁気特性を測定後、試料を-40℃の試験槽内に放置。500時間、1000時間、1500時間、2000時間で試験片を抜き取り、磁気特性を測定。 初期からの特性変化を評価。

・評価項目

保磁力

【試験結果】

図 4.1-4 に 2000 時間までの粉体の保磁力の評価結果を示す。保磁力の変動は 小さく、目標値である 720A/m 以下を達成した。



図 4.1-4 保磁力の低温放置試験結果

③ 熱衝撃試験

図4.1-5に熱衝撃試験の試験槽の外観写真を示す。熱衝撃試験槽としてはETAC 社製 WINTECH KEYLESS を使用した。



図 4.1-5 熱衝撃試験槽の外観写真(ETAC 社製 WINTECH KEYLESS)

【試験内容】

・試料の初期(0時間)の磁気特性を測定後、試料を試験槽内に放置。試験槽内で は-40℃ 10min/150℃ 10minを1サイクルとして試料に熱ストレスを印加。500 時間(500サイクル)、1000時間(1000サイクル)、1500時間(1500サイクル)、2000 時間(2000サイクル)で試験片を抜き取り、磁気特性を測定。初期からの特性変 化を評価。

・評価項目
保磁力

【試験結果】

図 4.1-6 に 2000 時間までの粉体の保磁力の評価結果を示す。保磁力の変動は 小さく、目標値である 720A/m 以下を達成した。



図 4.1-6 粉体の保磁力の熱衝撃試験結果

④ 高温高湿試験

図 4.1-7 に低温放置試験の試験槽の外観写真を示す。熱衝撃試験槽としては ESPEC 社製 SH-221 を使用した。



図 4.1-7 高温高湿試験槽の外観写真(ESPEC 社製 SH-221)

【試験内容】

・試料の初期(0時間)の磁気特性を測定後、試料を温度 85℃、相対湿度 85%RH の試験槽内に放置。500時間、1000時間、1500時間、2000時間で試験片を抜き 取り、磁気特性を測定。初期からの特性変化を評価。また、粉体の外観を観察 して錆の発生の有無を確認。

·評価項目

保磁力

外観

【試験結果】

図 4.1-8 に 2000 時間までの粉体の保磁力の評価結果を示す。保磁力の変動は 小さく、目標値である 720A/m 以下を達成した。



図 4.1-8 粉体の保磁力の高温高湿試験結果

また、図 4.1-9 に 2000 時間経過時点での粉体の錆の評価結果を示す。図 4.1-9 の左側の写真が高温高湿試験槽投入前の粉体の様子、右側の写真が高温高湿試 験開始後 2000 時間経過時点の粉体の様子である。2000 時間経過時点でも、赤茶 色の錆は発生していなかった。この結果は、絶縁膜形成工程において形成され た Si02 膜が粉体粒子を被覆して、それにより水分の浸透を防いでいることを示 している。



図 4.1-9 粉体の高温高湿試験後の外観の確認

4.2. 歩留・スループットの試験検証

粉砕、ナノ結晶化、絶縁膜形成の3工程の設備を構築し、各工程の歩留・ス ケールアップを検証した。

各工程の歩留・スループットの試験検証方法は、3.1~3.3 項で述べたとおり である。歩留・スループットの試験検証結果を表 4.2-1 に示す。各工程とも目 標値を達成した。

| | | 粉砕工程 | | | ナノ結晶化工程 | | 絶縁膜形成工程 | |
|---------------|----|------|-----|------|---------|-------|---------|------|
| | | 粗粉砕 | 微粉砕 | 分級 | 印刷 | ナノ結晶化 | 絶縁膜形成 | 残渣除去 |
| 歩留(%) | 目標 | 99 | 66 | 98 | 99 | 91 | 96 | 99 |
| | 実績 | 99 | 66 | 98 | 99 | 91 | 96 | 工程省略 |
| | 判定 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| | 目標 | 2.1 | 2.1 | 2.1 | 1.5 | 1.5 | 1.4 | 1.4 |
| スループット (kg/h) | 実績 | 31.8 | 3.5 | 43.4 | 12.1 | 11.8 | 4.8 | 工程省略 |
| | 判定 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |

表 4.2-1 歩留・スループットの試験検証結果

事業全体の歩留は、粉砕工程 0.64(粗粉砕 0.99×微粉砕 0.66×分級 0.98) ×ナノ結晶化工程 0.9(印刷 0.99×ナノ結晶化 0.91)×絶縁膜形成工程 0.96(絶 縁膜形成 0.96) =55%で、目標値 54%を達成した。

また、事業全体のスループットは、粉砕工程 3.5kg/h(粗粉砕 31.8kg/h、微 粉砕 3.5kg/h、分級 43.4kg/h)、ナノ結晶化工程 11.8kg/h(印刷 12.1kg/h、ナ ノ結晶化 11.8kg/h)、絶縁膜形成工程 4.8kg/h(絶縁膜形成 4.8kg/h)の最小工 程となり 3.5kg/hで、目標値 2.1kg/hを達成した。

事業化に向けて、少量生産から多量生産へ増産体制を整えるには、ボトルネ ックとなる粉砕工程の更なるスループット向上が必要である。
4.3. 粉体製造プロセスの CO2 削減効果の試験検証

軟磁性合金粉体を製造する各プロセスにおいて算出した CO2 排出量を図4.3-1 に示し、導出根拠を表4.3-1 に示す。尚、本事業の CO2 排出量は、2019 年度に 実証した実績値を示している。図4.3-1 から、本事業で実証した工程による、 現状の工程に対する CO2 排出量は、2.9 kg-CO2/kg-M となり、本事業の本年度の ゴール目標値である、3.6 kg-CO2/kg-M を達成することができた。これは、現状 の製造プロセスに対し、76%の削減を達成できたことになる。



※1 絶縁処理工程は、現状と本事業で製造プロセスに大差がないと仮定し、評価範囲外とした ※2 CO2排出量は、各工程のロスを考慮

図 4.3-1 軟磁性合金粉体の製造による CO2 排出量

| | 製造プロセス | 導出根拠 | | | | |
|----|--------|-------------------------------|--|--|--|--|
| 現状 | 高炉 | まず、鉄鉱石採掘から粗鋼 1kg を製造するまでの CO2 | | | | |
| | | 排出量について、以下の出典の項目"粗鋼(転炉法)" | | | | |
| | | から、1.71kg-C02/kg-S を導出。 | | | | |
| | | ・出典 | | | | |
| | | LCI データベース IDEA version 2.1.3 | | | | |
| | | 国立研究開発法人 産業技術総合研究所 安全科学研究 | | | | |
| | | 部門社会と LCA 研究グループ | | | | |
| | | 一般社団法人 産業環境管理協会 | | | | |
| | | 次に、絶縁処理前の軟磁性合金粉体 1kg 当たりの CO2 | | | | |

表 4.3-1 軟磁性合金粉体の製造による CO2 排出量の導出根拠

| | | 排出量とするために、弊社調査に基づき、高炉以降の製 | | | | | |
|-----|----------|---|--|--|--|--|--|
| | | 造プロセスの歩留で除した。 | | | | | |
| | | 粗鋼 1kg を製造するプロセスの C02 排出量 | | | | | |
| | | (1.71kg-C02/kg-S)÷アトマイズ粉作製プロセスの歩留 | | | | | |
| | | (30%)÷焼鈍プロセスの歩留(90%)≒6.3kg-C02/kg-M | | | | | |
| | アトマイズ粉作製 | まず、ガスアトマイズ法によりアトマイズ粉 1kg を製 | | | | | |
| | | 造するプロセスの CO2 排出量について、弊社調査に基づ | | | | | |
| | | き導出。 | | | | | |
| | | 消費電力量(750kWh)÷粗鋼(260kg)÷歩留(30%)×C0 | | | | | |
| | | 排出係数(0.512kg/kWh)=4.9kg-C02/kg-A | | | | | |
| | | ※CO2 排出係数 0. 512kg/kWh は、下記出典から導出。 | | | | | |
| | | ・出典 | | | | | |
| | | 環境省 温室効果ガス排出量算定・報告・公表制度 | | | | | |
| | | 平成 30 年度提出用 電気事業者別排出係数 代替値使用 | | | | | |
| | | 次に、絶縁処理前の軟磁性合金粉体 1kg 当たりの CO2 | | | | | |
| | | 排出量とするために、弊社調査に基づき、焼鈍の製造プ | | | | | |
| | | ロセスの歩留で除した。 | | | | | |
| | | アトマイズ粉 1kg を製造するプロセスの CO2 排出量 | | | | | |
| | | (4.9kg-C02/kg-A)÷焼鈍プロセスの歩留(90%)= | | | | | |
| | | 5.5kg-C02/kg-M | | | | | |
| | 焼鈍 | 電気炉により、アトマイズ粉に熱処理し、軟磁性合金 | | | | | |
| | | 粉体 1kg を製造するプロセスの C02 排出量について、弊 | | | | | |
| | | 社調査に基づき導出。 | | | | | |
| | | 消費電力量(50kWh)÷アトマイズ粉(40kg)÷歩留(90%) | | | | | |
| | | ×C02 排出係数(0.512kg/kWh)≒0.7kg-C02/kg-M | | | | | |
| | | ※CO2 排出係数 0.512kg/kWh は、下記出典から導出。 | | | | | |
| | | ・出典 | | | | | |
| | | 環境省 温室効果ガス排出量算定・報告・公表制度 | | | | | |
| | | 平成 30 年度提出用 電気事業者別排出係数 代替値使用 | | | | | |
| 本事業 | 粉砕 | 粉砕は、①粗粉砕、②微粉砕、③分級の3つの製造プ | | | | | |
| | | ロセスに分けられる。 | | | | | |
| | | ① 粗粉砕 | | | | | |
| | | まず、薄帯の端材から粉砕片 1kg を生成するプロセス | | | | | |
| | | の CO2 排出量について、弊社調査に基づき導出。 | | | | | |
| | | 消費電力量(1.26kwh)÷薄帯端材(7.82kg)÷歩留(99%) | | | | | |
| | | ×C02 排出係数(0.512kg/kWh)=0.084kg-C02/kg-P | | | | | |
| | | ※CO2 排出係数 0.512kg/kWh は、下記出典から導出。 | | | | | |

| ・出典 |
|---|
| 環境省 温室効果ガス排出量算定・報告・公表制度 |
| 平成 30 年度提出用 電気事業者別排出係数 代替値使用 |
| 次に、絶縁処理前の軟磁性合金粉体 1kg 当たりの CO2 |
| 排出量とするために、弊社調査に基づき、粗粉砕以降の |
| 製造プロセスの歩留で除した。 |
| 粉体 1kg を生成するプロセスの CO2 排出量 |
| (0.084kg-C02/kg-P) ÷微粉砕プロセスの歩留(66%)÷分 |
| 級プロセス(98%)÷粉体供給プロセス(99%)÷ナノ結晶 |
| 化プロセスの歩留(91%)=0.144kg-C02/kg-M |
| ② 微粉砕 |
| まず、粉砕法により、粉砕片から粉砕粉 1kg を生成す |
| る製造プロセスの CO2 排出量について、弊社調査に基づ |
| き道出 |
| 2 (1kg) 消費電力量(2 56kwh)÷粉砕片(1kg)÷歩留(66%)×C02 |
| 批任经数(0.512kg/kWh)=1.983kg-C02/kg-P |
| ※CO2 排出係数 0 512kg/kmb は 下記出曲から道出 |
| · 出曲 |
| 出へ 環境省 温室効果ガス排出量筧定・報告・公表制度 |
| 平成 30 年度提出用 雷気事業者別排出係数 代替值使用 |
| 次に 絶縁処理前の軟磁性合金粉体 1kg 当たりの CO2 |
| 排出量とするために 弊社調査に基づき 微粉砕以降の |
| 製造プロセスの歩留で除した。 |
| 粉体 1kg を生成するプロセスの CO2 排出量 |
| (1 983kg-CO2/kg-P) - 分級プロセス(98%) - 粉休供給プ |
| (1.500 kg + 0.02) kg + 1 + 1 結晶化プロセスの歩昭 (91%) = |
| 2 $246k_{\pi}$ -CO2/ka-M |
| 3. 小班 |
| ● 万版 まず 分級に上り 粉砕粉から分級後粉体 1kg を生成 |
| する制造プロセスの CO2 排出島について 敵社調本に其 |
| うる表担クロビスの 602 評山重に クロ て、井江調査に座 |
| ンマ守山。 消费電力景(0_01kmb)・粉砕粉(1kg)・歩矽(08%)>C02 |
| 17 頁 电/J 里 (V· VIAWII) · ///叶/// (IKg) · 少田 (30//) へ(02) 排出 |
| 127日小教 (V. 512kg/ kml) - U. UUJkg UU2/ kg-F ※C09 排出区粉 0 519kg/ kml) け 下記出曲かた道山 |
| へい2 リト山(示数 い 012Kg/ Kणll /よ、 記山栗/ハ*り等山。 ・ 中曲 |
| 四代 |
| |
| 十成 50 十皮顶面用 电风争来有别仍面除数 11 谷偃伙用 |

| | 次に、絶縁処理前の軟磁性合金粉体 1kg 当たりの CO2 |
|-------|---|
| | 排出量とするために、弊社調査に基づき、分級以降の製 |
| | 造プロセスの歩留で除した。 |
| | 粉体 1kg を生成する製造プロセスの CO2 排出量 |
| | (0.005kg-C02/kg-P)÷粉体供給プロセス(99%)÷ナノ |
| | 結晶化プロセスの歩留(91%)=0.006kg-C02/kg-M |
| | 上記①粗粉砕~③分級を合計し、粉砕プロセスの CO2 |
| | 排出量は、2.396kg-C02/kg-M≒2.4kg-C02/kg-Mとなる。 |
| ナノ結晶化 | ナノ結晶化は、①粉体供給、②ナノ結晶化の2つの製造 |
| | プロセスに分けられる。尚、ナノ結晶化プロセスには、 |
| | 粉体回収プロセスを含めている。 |
| | ③ 粉体供給 |
| | スキージ印刷により、分級した粉体を、熱処理前に 1kg |
| | 印刷成形する製造プロセスの CO2 排出量について、弊社 |
| | 調査に基づき導出。 |
| | 消費電力量 (0.01kwh) ÷粉体(3.6kg) ÷歩留(99%) ×C02 |
| | 排出係数(0.512kg/kWh)=0.001kg-C02/kg-C |
| | ※C02 排出係数 0.512kg/kWh は、下記出典から導出。 |
| | ・出典 |
| | 環境省 温室効果ガス排出量算定・報告・公表制度 |
| | 平成 30 年度提出用 電気事業者別排出係数 代替値使用 |
| | 次に、絶縁処理前の軟磁性合金粉体 1kg 当たりの CO2 |
| | 排出量とするために、弊社調査に基づき、印刷以降の製 |
| | 造プロセスの歩留で除した。 |
| | 粉体 1kg を生成する製造プロセスの CO2 排出量 |
| | (0,001kg-C02/kg-C) ÷ナノ結晶化プロセスの歩留(91%) |
| | = 0.001 kg - C02/kg - M |
| | ④ ナノ結果化 |
| | 執プレス注により 印刷成形した粉体に執処理し 載 |
| | 磁性合金粉体 1kg を制造するプロセスの CO2 排出量につ |
| | 14日 並初件 Ing を表起す 57 日 ビバッ 602 所田重に 5 いて 敝社調本に 其べき道山 |
| | v (、 井江 祠 直 (2 ± 2) ご 寺山。 |
| | 相負电分量(3.10kwii) · 初本(3.0kg) · 少亩($91/0$) ~ 002 地田孫粉(0.519kg/kwi) - 0.407kg-C02/kg-M |
| | 沙山(示数 (0.512kg/ kwii) - 0.497kg-002/ kg-M ※C02 排出核粉 0.519kg/ lwi) さ 下記出曲かた道出 |
| | へい2 까山际效 いり12kg/ kmi は、「記山央ハ*り今山。 ・ 中曲 |
| | 四代 |
| | |
| | 半成 30 年度促出用 电风争兼有別排出除数 代替值使用 |

| | 上記①印刷~②ナノ結晶化を合計し、ナノ結晶化プロセ |
|--|---|
| | スの CO2 排出量は、0.498kg-CO2/kg-M≒0.5kg-CO2/kg-M |
| | となる。 |

図 4.3-2 は、軟磁性合金粉体の製造に関連した CO2 排出量の全体像を示して いる。現状は、薄帯の端材は、電気炉により粗鋼ヘリサイクルされているが、 本事業では、粉体製造に活用されるため、相当分を鉄鉱石から粗鋼を製造する ことになる。表 4.3-2 は、粗鋼製造の導出根拠を示している。現状の CO2 排出 量 13.3kg-CO2/kg-M に対し、本事業では、5.6kg-CO2/kg-M まで削減できた。今 後も引き続き、各工程におけるスループット及び歩留を改善し、さらなる CO2 削減を図っていきたい。



※1 絶縁処理工程は、現状と本事業で製造プロセスに大差がないと仮定し、評価範囲外とした ※2 CO2排出量は、各工程のロスを考慮

図 4.3-2 軟磁性合金粉体の製造に関連した CO2 排出量

| | 製造プロセス | 導出根拠 | | | | |
|----|--------|------------------------------------|--|--|--|--|
| 現状 | 電気炉 | モータ用薄帯の端材 1.8kg から、リサイクルにより、 | | | | |
| | | 歩留 90%で粗鋼 1.6kg を製造するまでの CO2 排出量につ | | | | |
| | | いて、以下の出典から、0.53kg-C02/kg-S×1.6kg≒ | | | | |
| | | 0.8kg-C02を導出 | | | | |
| | | ・出典 | | | | |
| | | 一貫製鉄プロセスにおける二酸化炭素排出理論値に関 | | | | |
| | | する調査報告,ふぇらむ Vol.3(1998)No.1 | | | | |

表 4.3-2 粗鋼製造における CO2 排出量の導出根拠

| 本事業 | 高炉 | 鉄鉱石採掘から粗鋼 1.6kg を製造するまでの CO2 排出 | | | | |
|-----|----|--------------------------------------|--|--|--|--|
| | | 量について、以下の出典の項目"粗鋼(転炉法)"から、 | | | | |
| | | 1.71kg-C02/kg-S×1.6kg≒2.7kg-C02 を導出。 | | | | |
| | | ・出典 | | | | |
| | | LCI データベース IDEA version 2.1.3 | | | | |
| | | 国立研究開発法人 産業技術総合研究所 安全科学研究 | | | | |
| | | 部門社会と LCA 研究グループ | | | | |
| | | 一般社団法人 産業環境管理協会 | | | | |

4.4. 試験検証等で得られた有用性評価

「4.2. 歩留・スループットの試験検証」「4.3. 粉体製造プロセスの CO2 削減効果の試験検証」により、採算性を確保でき、CO2 排出量の削減となりえるため、有用である。

5. まとめ

【課題】

軟磁性合金薄帯の粉砕粉は、薄帯の端材を利用するため二酸化炭素の排出量 が少ないが、機械粉砕の応力歪により、従来のアトマイズ粉に比べ磁気特性が 劣化する。そこで、実用化に向けて、平成30年度は、粉砕工程、ナノ結晶化工 程、絶縁膜形成工程の工法検証を実施し、ターゲットスペックを達成すること が必要であった。平成31年度は、量産に向けて、各工程の生産性向上(歩留向 上、スループット向上)を図ることが必要であった。

【実証事業の目標と実績】

・平成 30 年度は、粉砕工法、ナノ結晶化向上、絶縁膜形成工法の検証を実施し、 工法検証機を構築した。

・平成 31 年度は、粉砕工程、ナノ結晶化工程、絶縁膜形成工程の生産性向上を 図り、量産検証機を構築した。

1. 歩留:55%(事業全体) 〔目標 54%以上〕

2. スループット: 3.5kg/h (事業全体) 〔目標 1.4kg/h 以上〕

3. CO2 排出量: 2.9kg-CO2/kg-M(事業全体) 〔目標 3.6kg-CO2/kg-M以下〕

【事業実施の効果概要】

1. 事業性

事業化に向けたマイルストーンを表 5-1 に示す。2018 年度(平成 30 年度)は、 粉砕工法、ナノ結晶工法、絶縁膜形成工法の工法検証を実施し、ターゲットス ペック達成に目処付けした。2019 年度(平成 31 年度)は、粉砕工程の歩留向上、 ナノ結晶化工程のスケールアップ、絶縁膜形成工程のスケールアップを図った。 さらに、他社材料への展開可能性を検討した。

2020年より量産機の製作、検証、信頼性を経て、2024年より社内工場で量産 を開始、同時に、他社材料への展開も図っていく予定である。

| 2018 | 2019 | 2020 | 2021 | 2022 | 2023 | 2024 | 2025 |
|---|---------------------------------|---------|------|------|------|-------|------|
| 工法検証 ・粉砕工法 ・ナノ結晶化工法 ・絶縁膜形成工法 | 量産検証 ・スケールアッ ・歩留向上 | ✓ 量産機製作 | 量產機 | 検証 | 信頼性 | 社内にて | 工場 |
| |)他社材料比較 | | | | > | ~ 他社材 | 料展開 |

表5-1 事業化に向けたマイルストーン

2. 採算性

本事業で実証した軟磁性合金薄帯の粉砕粉は、低コストの薄帯の端材を原材料として粉体化して製造するため、低コストで軟磁性合金薄帯を製造できる。 平成31年度の生産性向上の取組みにより、低コストの軟磁性合金粉体の実現が可能となった。53~100µmの粉体を53µm以下への粉砕検討を継続することで、 高付加価値な市場への展開拡大が見込める。

3. 普及の見通し

本事業で実証した軟磁性合金薄帯の粉砕粉によるリサイクル技術は、自社材料に加えて他社材料にも展開の可能性があることを確認できた。

6. 参考

 T.Fujimoto, M. Maede, H. Imamura, H. Ebihara: Development of Micronized Technology by Pulverizing Soft Magnetic Ribbon, 令和元年度学術講演 会 2019, pp. 42-43