平成30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

報告書

平成31年2月28日

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 磁性合金の粉体を製造する。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。したがって、ナノ結晶化による特性向上、大電流化に対応した信頼性 確保が不可欠であり、実用化に向けては、損失低減、飽和磁束密度向上、耐圧 確保の課題を解決することが必要である。

軟磁性合金薄帯の粉砕粉は、図 S-1 に示すように、薄帯のプレス端材などを 回収し、粉砕、ナノ結晶化、絶縁処理を施し製造する。本実証事業では、実用 化に向けて、上記課題を解決し、軟磁性合金薄帯の粉砕粉の安定的な製造及び コア成形を行う技術の開発を行った。



図 S-1 軟磁性合金薄帯の粉体化

3. 粉砕工程の検証

薄帯を粉砕すると粉体の保磁力が 300 倍に増加することが確認できている。 保磁力は、損失と相関がある指標で、粉砕時の化合物の析出、酸化、応力歪に よって増加する。本事業では、応力を分散させながら酸化させずに粉砕し、量 産化を考慮した粉砕工法を検証した。

まず、適用商品に求められる粒径(D50%)20µm以下をターゲットとして、軟磁性合金薄帯を原料に各種粉砕方式で粉砕したときの磁気特性を比較した。比較結果を表 S-1 に示す。各種粉砕方式の中から、目標とする粉体の保磁力と飽和磁束密度を達成できるサイクロンミルが適していると判断した。

		出くなっていれ	24-14 20	「本日子」」とう	25 1 2
	date and state to	リイクロンミル	ミモリーミル	近星ホールミル	シェットミル
	粉砕媒体	気流	粉砕羽根	ボール	気流
乾式/湿式 粉砕原理		乾式	乾式	乾式	乾式
		剪断・粉衝突	衝撃	衝撃	粉衝突
	代表製造メーカー	静岡プラント	大阪ケミカル	フリッチュ	セイシン企業
	粉砕機				
	粉砕前	1 Omm	1 Omm	□5mm	□ 1 mm
形状	粉砕後 SEM写真 (×600)				粉砕できず
	粒径(D50%) (目標20μm以下)	18.8 μ m	14.4 μ m	23. 6 µ m	_
評価	保磁力Hc (目標720A/m以下)	386A/m	944A/m	1,624A/m	_
月	飽和磁束密度Bs※ (目標1.7T以上)	1.72T	1.73T	1.64T	-
	生産性(スケールアップ)	可	可	不可	미
	判定	0	Δ	×	×

表 S-1 粉砕方式のベンチマーク

※ 密度7.45g/cm3にて算出

次に、サイクロンミルを使用して、目標スペック(保磁力 720A/m以下)を達 成する粉砕条件を検証した。図 S-2 に示すように、粉砕室内に粉体が残留する ようにサイクロンミルの装置パラメータを最適化することで、角の取れた球状 粉を作製することに成功し、保磁力は 697A/m で目標スペックを達成した。サイ クロンミルでは、粉砕時、粉砕室内に一定時間粒子を滞留させることで、粒子 同士が衝突することで粉砕が進む。この結果として、温度上昇が少なく、粉砕 時の応力による歪が少ない粒子が実現できたと考えられる。



図 S-2 サイクロンミルの装置構成と球状化

更なる保磁力低減のため、粒子の酸化度抑制による保磁力の低減効果を検証 した。最適化したサイクロンミルの装置パラメータ条件において、薄帯を大気 中と窒素中で粉砕し、保磁力を比較した。比較結果を表 S-2 に示す。窒素中で 粉砕することにより、粒子表面の酸化膜の厚みを 3~6nm に抑制し(大気中粉砕 の酸化膜は 22~33nm)、粒子の酸素量を 40%低減し、その結果、保磁力も 40% 低減できた。

	大気中粉砕	窒素中粉砕	
粒度 分布	17.0μm(D50%)	15.6 µ m (D50%)	
粒子 表面 断面	酸化膜 33nm ↓ Fe	Fe S~6nm L0mm	
酸素量	1.22[wt%]	0.68[wt%]	
保磁力	679[A/m] 40% [気減 393[A/m]	

表 S-2 大気中粉砕と窒素中粉砕の比較

4. ナノ結晶化工程の検証

ナノ結晶化する熱処理工程においては、粒子の温度が不均一となり、自己発 熱により熱暴走が発生する。この時、温度が高い粒子は結晶が肥大化し、また、 熱伝導性が悪く温度が低い粒子は結晶化が不足することが確認できている。本 事業では、自己発熱の制御と熱伝導性の向上を図り、多量の粉末を熱暴走させ ず均一加熱し、量産化を考慮した粉体の加熱工法を検証した。

まず、自己発熱の制御と熱伝導性を向上させる加熱方法として、吸熱機能を 持つ熱プレス方式を選択した。上下2枚のヒーターブロックに薄板を介して加 圧しながら粉体を加熱する。熱プレス方式によるプロセスフローを図 S-3 に示 す。まず、薄板が変形しながら粉体サイズが大きい(熱容量が大きい)ものか ら順に上側の薄板に接触し加熱する。次に、ナノ結晶化による自己発熱を薄板 が吸熱し、粉体の温度を一定にし、粉体を均一にナノ結晶化する。



図 S-3 熱プレス方式によるプロセスフロー

次に、熱プレス装置を使用して、目標スペック(保磁力 720A/m 以下)を達成 する加熱条件を検証した。保磁力の粒径振り結果を図 S-4 に示す。大小粒子混 合(粒径 (D50%)約14 μ m、図 S-4 ref)状態で加熱すると、大粒子は十分に熱 が伝わらず結晶化不足となり、小粒子は自己発熱により結晶が肥大化した。そ こで、大粒子(粒径 (D50%)約53 μ m)と小粒子(粒径 (D50%)約12 μ m)を別々 に、それぞれの粒径に適した加熱条件で加熱することを考えた。その結果、保 磁力を10%低減できた(図 S-4 ①)。さらに、大粒子と小粒子の混合比率を変 えて、粒径 (D50%)を19 μ mとすることで、保磁力をさらに25%低減できた(図 S-4 ②)。



図 S-4 保磁力の粒径振り結果

更なる保磁力低減と量産性検証のため、新規に開発した熱プレス機において、 平坦性の向上・昇温速度の高速化による保磁力の低減効果を検証した。旧熱プ レス機と新熱プレス機の比較を表 S-3 に示す。装置の平坦性に関しては、旧熱 プレス機では、熱歪みがあるまま熱プレスするため、ヒーターブロックから粉 体への熱伝達で温度ムラが生じ、粉体を多量に加熱できない。一方、新熱プレ ス機では、横側に歪みを逃がした状態で熱プレスするため、温度ムラが低減で き、粉体を多量に加熱することが可能である。昇温速度に関しては、旧熱プレ ス機では、昇温速度が遅い(12sec)ため、熱量が多くなり粉体中央部で自己発 熱による熱暴走が起こり、保磁力が大きくなる。一方、新熱プレス機では、昇 温速度が速い(3sec)ため、熱量が少なく粉体は自己発熱で自己暴走せず保磁 力を小さくできる。粉体の処理量 2g で比較すると、新熱プレス機では保磁力を 17%低減できた。さらに、粉体量を 10g にしても保磁力に変化はなく、粉体の多 量処理を可能にした。



表 S-3 旧熱プレス機と新熱プレス機の比較

5. 絶縁膜形成工程の検証

ナノ結晶化した粉砕粉のような粒径・形状がバラバラで表面が凸凹した粒子 を成形すると、内部抵抗が低い粒子に電流が集中し耐圧が低下する。また、耐 圧向上のために粒子表面に形成する絶縁膜は、ナノ結晶化しない温度範囲

(200℃以下)で形成する必要があることが確認できている。本事業では、200℃ 以下で均一の絶縁膜を形成し、量産化を考慮した絶縁膜形成工法を検証した。

まず、結晶化が進まない200℃以下の温度で絶縁膜の形成が可能な方法を調査 した。調査結果を図S-5に示す。製造コストも考慮に入れ、液中化学反応の中 のゾルーゲル法とメカノケミカル法が適していると判断した。また、各工法で 形成する絶縁膜の種類は、製造コストや生産性の面から検討を行い、ゾルーゲ ル法ではSi02 膜を、メカノケミカル法ではA1203 膜を選択した。



図 S-5 絶縁膜形成方法の調査

次に、選択した2つの手法を使って、軟磁性合金薄帯の粉砕粉に絶縁膜を形成する検証を実施した。ゾルーゲル法で形成したSiO2 膜は、被膜の原料となる TEOS(オルト珪酸テトラエチル)の添加量を1~5gまで変えて膜厚を測定した ところ、8~71nmのSiO2 膜が形成できていることが確認できた。メカノケミカ ル法で形成したA1203 膜は、被膜の原料となるA1203 粉末の重量比率を5~15% まで変えて SEM 観察したところ、粉砕粉の表面を覆うA1203 の量が増加してい ることが確認できた。

それぞれに対して、絶縁耐圧測定試験用の試料片を作製し、耐圧測定を実施 した。耐圧の測定結果を図 S-6 に示す。ゾルーゲル法で形成した SiO2 膜は、耐 圧は 183V/mm から 762V/mm まで大きくばらつくが、絶縁膜を形成しない粉砕粉 に対して、耐圧が向上することがわかった。一方、メカノケミカル法で形成し た A1203 膜は、粉砕粉の表面を完全に覆う緻密な絶縁膜を形成することが困難 なため、耐圧が向上しなかった。

以上の結果より、ゾルーゲル法による Si02 膜の形成に絞り込み、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検証することとし た。



図 S-6 ゾルーゲル法により形成した Si02 膜とメカノケミカル法により 形成した A1203 膜の耐圧測定結果

Si02 膜による耐圧向上の取組み結果を図 S-7 に示す。耐圧の目標スペック (250V/mm)を目指して、高い絶縁耐圧を持つ Si02 膜を安定して形成するため、 被膜材料の混合時に自動撹拌機を使って手作業による反応速度のばらつきを低 減し、遠心分離機により Si02 残渣を除去した。加えて、攪拌時に超音波を印加 することによって、凝集していた粉砕粉を分散し、個々の粒子に均一に Si02 膜 が形成されるようにしたところ、耐圧は約2倍向上した。さらに、TEOS の添加 量を 10g から 20g へ増量することで、耐圧が 25%向上し、271V/mm となり、目標 スペックを達成した。また、サイクロンミルによる粉砕によって、粉砕粉の形 状を角のない球状粉にし、32µmの篩にかけて小粒径化することで、耐圧が 41% 向上となり、305V/mm にし、目標スペックを達成した。なお、Si02 膜の膜厚は 50~100nm であることが確認できている。



6. 総合評価

本事業で確立した、粉砕工程、ナノ結晶化工程、絶縁膜形成工程の工法検証 機を使用して磁気特性と基本信頼性の総合評価を実施した。総合評価結果を表 S-4 に示す。磁気特性は、周波数 100kHz、磁束密度 25mT におけるコア損失(ト ロイダルコア)と、飽和磁束密度(粉体)、耐圧(試料片)を確認した。また、 基本信頼性は、熱衝撃試験 100 サイクル、高温高湿放置試験 100h を確認した。 損失、熱衝撃、高温高湿は商品 A の目標を達成したが、飽和磁束密度、耐圧は 目標を達成しなかった。飽和磁束密度は、材料の鉄量に依存するため、わずか に未達であった。また、耐圧は絶縁膜形成工程の単独評価では目標スペックを 確保できていたが、総合評価では大幅に未達となった。これは、粉砕工程で形 成される酸化膜厚の差が原因として考えられる。今後、絶縁膜形成工程の前工 程の相関を分析し、量産プロセス検証の中で、耐圧を確保していく予定である。

	項目	商品A目標	商品B目標	検証結果	備考
	損失(100kHz,25mT) 🛛 🍘	80[kW/m3]以下	60[kW/m3]以下	○69[kW/m3]	
磁気 蛙性	飽和磁束密度	1.7[T]以上	1.7[T]以上	△1.68[T]	材料の鉄量による
1711	耐圧 🖉	250[V/mm]以上	500[V/mm]以上	$\triangle 84[V/mm]$	耐圧再現確認必要
t +	熱衝撃100サイクル 🛛 💣	特性変化ないこと	特性変化ないこと	○損失7%増	
基本 信頼性	高温高湿放置100h 🥳	腐食無きこと	腐食無きこと	○腐食無し	成形品での 腐食対策必要

表 S-4 総合評価結果

7. Life Cycle Assessment

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。 現状の製造プロセスでは、『高炉』、『アトマイズ粉作製』、『焼鈍』が評価 対象であり、本事業の製造プロセスでは、『粉砕』、『ナノ結晶化』を評価対 象とした。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粉 体 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 A-B は、図 S-8 に示すように、7.7kg-CO2/kg-M〔12.5-4.8 kg-CO2/kg-M〕となり、 現状の製造プロセスに対し、60%の削減をすることができた。



図 S-8 現状と本事業における CO2 排出量の評価範囲と CO2 排出量

8. 展開性·量産性

他社材料への展開を考え、他社の軟磁性合金薄帯の粉砕粉の磁気デバイスへの適用可能性を検討した。他社の薄帯材料 A, B を自社材料と同条件で粉砕し、他社の薄帯材料 A, B に適した条件で熱処理し、自社材料と同条件で絶縁膜を形成し、粉体の基本特性を測定した。評価結果を表 S-5 に示す。他社材料 A, B とも、保磁力の目標スペック(720A/mm)を達成し、磁気デバイスへの適用は可能

であると考えられる。今後、他社材料 A, B に適した粉体化プロセスを確立し、 さらに詳細な評価を実施していく予定である。

	項目	自社材料	他社材料A	他社材料B
粉体	粒径(d50%)	15.7[μm]	22.2[μm]	19.5[μm]
基本特性	保磁力(目標720[A/m]以下)	387[A/m]	○563[A/m]	○575[A/m]

表 S-5 他社材料の評価結果

次に、軟磁性合金薄帯の粉砕粉の量産化に向けて、各工程の量産設備を検討 した。特に、本年度の実証事業で作製した各工程の工法検証機の中で、スケー ルアップによるスループットの向上が必要と思われる、ナノ結晶化工程、絶縁 膜形成工程の量産設備を検討した。

ナノ結晶化工程においては、現行の熱プレス機からスケールアップが見込め る熱風炉・熱ロールプレス機で加熱処理し、粉体の保磁力を測定した。評価結 果を表 S-6 に示す。熱風炉・熱ロールプレス機とも、保磁力の目標スペック

(720A/mm)を達成し、ナノ結晶化工程の生産タクトの向上が可能であると判断 した。今後、熱風炉・熱ロールプレス機を使った量産プロセスの詳細な評価を 実施していく予定である。

	現行	検	討
工法検証機 (実験機)	「「「「」」では、「」」では、「」」では、「」では、「」では、「」では、「」では	熟風炉	ション・ション・ション・ション・ション・ション・ション・ション・ション・ション・
保磁力 (目標720[A/m]以下)	○387[A/m]	○582[A/m]	○672[A/m]

表 S-6 ナノ結晶化工程の量産設備の評価結果

絶縁膜形成工程においては、現行の撹拌機からスケールアップが見込めるロ ールミルで絶縁膜を形成し、耐圧を測定した。評価結果を表 S-7 に示す。ロー ルミルで被膜材料を削減し、現行機と同等の絶縁膜が形成できることを確認し、 絶縁膜形成工程のスケールアップが可能であると判断した。今後、ロールミル を使った量産プロセスの詳細な評価を実施していく予定である。

	現行	検討
工法検証機 (実験機)	道 井機 遠心分離機	ロールミル
被膜材料の重量比	100 被膜材	t料削减 6
耐圧	217[V/mm] 硕 扫	アップ 255[V/mm]
絶縁膜断面	Si02膜 (50~100nm) Fe	Fe Si02膜 (80~100nm)

表 S-7 絶縁膜形成工程の量産設備の評価結果

9. まとめ

本事業の一年目は、粉砕工法、ナノ結晶化工法、絶縁膜形成工法の検証を 実施し、工法検証機を構築した。

- ◆効果
 - 1. 粉体製造プロセスの省エネ化
 - 【一年目目標:アトマイズ粉の製造プロセスに対し CO2 排出量 40%程度削減】 アトマイズ粉の製造プロセスに対し CO2 排出量 60%削減
 - 2. 車載機器の性能向上による省エネ化

【一年目目標:既存の大電流デバイスに対し損失電力量10%程度削減】 既存の大電流デバイスに対し損失電力量30%削減

◆展開性

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適用可能である。

◆今後の予定と事業化検討

本事業の一年目(2018年度)は、粉砕工法、ナノ結晶化工法、絶縁膜形成 工法の工法検証を実施した。二年目(2019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、絶縁膜形成工程の量産プロセスの確立お よびスケールアップを検討する。さらに、他社材料への展開を睨んで、他社 材料との比較を実施していく。事業化に向けたマイルストーン案を表S-8に示 す。

工法検証 量産検証 量産機製作 量産機検証 信頼性 ・粉砕工法 ・スケールアップ ・ボ留向上 にて量	2018	2019	2020	2021	2022	2023	2024
・絶縁膜形成工法	工法検証 ・粉砕工法 ・オノ結晶化工法	・スケールアップ ・ホタールアップ	量產機製作	量産機検	証〉	言賴性	社内工場にて量産
他社材料比較> 他社材料	 ・絶縁膜形成工法 	一世社材料比較				>	他社材料展開

表S-8 事業化に向けたマイルストーン案

Abstract

1. Background and Objective

Japan's domestic market for soft magnetic material having high saturation magnetic flux density has been expanding with the creation of high-current devices for converters and inverters. Such devices have been developed mainly for automotive applications by using magnetic powder of high saturation magnetic flux density. This market is predicted to grow to 430 thousand tons, valued at 182.7 billion yen, by 2025. However, the current powder manufacturing process (atomization) consumes a tremendous amount of energy for melting the iron material. This verification project intends to produce soft magnetic alloy powder by utilizing recovered thin strips discarded in the manufacturing process of motors and power distribution transformers as recycled raw material. The proposed process is designed to mold cores of magnetic devices by using pulverized powder of soft magnetic alloy strips as a way to reduce power consumption below the level needed to melt metal to produce atomized powder of soft magnetic alloy. Moreover, the approach reported here can reduce the amount of carbon dioxide emissions produced.

2. Objective of Project

The pulverized powder of soft magnetic alloy thin strips uses recovered thin strips and generates a smaller quantity of carbon dioxide; however, it also causes more deterioration of magnetic characteristics compared with atomized powder due to the stress strain produced by mechanical pulverization. To overcome this disadvantage, it is essential to improve the powder's characteristics by nano-crystallization and to ensure reliability for large-current operation. To achieve commercialization, it is necessary to meet such requirements as reduction of power loss, improvement of saturation magnetic flux density, and securing of dielectric strength.

Producing pulverized powder of soft magnetic alloy thin strips involves recovering press-work thin strips, crushing them, nano-crystallization, and insulation processing (Fig. S-1). This project verified technologies for meeting the above requirements to achieve the practical use, and it demonstrated stable manufacturing of pulverized powder from soft magnetic alloy thin strips along with core molding.



Fig. S-1. Pulverization of soft magnetic alloy thin strips

3. Verification of Pulverization Process

An increase of 300 times in a powder's coercivity has been confirmed by powdering thin strips. Coercivity is an indicator of power loss, and it increases through precipitation of an alloy during powdering, oxidation and stress strain. In this project, aiming toward mass production, the powdering process was verified by pulverizing material while distributing stress but preventing oxidation.

By setting a target grain size (D50%) of 20 μ m or smaller for the applied product, magnetic characteristics were compared while applying a variety of pulverization methods to soft magnetic alloy thin strips. The comparison results are given in Table S-1. For the process of loading raw material on vapor to achieve the target coercivity and saturation magnetic flux density of the powder, a cyclone mill was determined to be the best tool for producing fine particles through pulverization by shearing force and collision with grains.

		Cyclone mill	Mixer mill	Planet gear ball mill	Jet mill
	Crushing media	Air flow	Crushing blade	Balls	Air flow
Dry/wet		Dry	Dry	Dry	Dry
Crushing principle		Searing, powder collision	Impact	Impact	Powder collision
Typical manufacturer		Shizuoka Plant	Osaka Chemical	Fritsch	Seishin Enterprise
Pulverization machine					
	Before pulverization	🗆 10 mm	🗆 10 mm	□ 5 mm	□ 1 mm
Shape	After pulverization SEM photo (x600)				Cannot crush
u a	Particle size (D50%) (Target 20 µm or smaller)	18.8 µm	14.4 μm	23.6 µm	-
sment ite	Coercivity Hc (Target 720 A/m or below)	386 A/m	944 A/m	1,624 A/m	-
Asses	Saturation magnetic flux density Bs* (Target 1.7T or over)	1.72T	1.73T	1.64T	-
	Productivity (scale-up)	Yes	Yes	No	Yes
	Judgment	0	Δ	Х	Х
_					

Table S-1 Benchmark pulverization method

*Density calculated with 7.45 g/cm3

Next, by using the cyclone mill, we verified the pulverization method used to achieve the target specification (coercivity of 720 A/m or less). The equipment parameters of the cyclone mill were optimized to maintain the powder residue in the pulverization chamber, and thus ball-shaped particles without sharp edges could be produced while meeting the target

specification of coercivity of 697 A/m (Fig. S-2). It was presumed that maintaining particles in the chamber for a predetermined time period would promote powdering by mutual collision without much temperature rise and thus produce strain-free particles by stress during powdering.



Fig. S-2 Equipment structure of cyclone mill and ball-shaping

For further reduction of coercivity, we verified the reduction effect by suppressing the oxidation of particles. In setting the equipment parameters of the optimized cyclone mill, thin strips were crushed in atmosphere and in nitrogen to compare coercivity. The comparison results are shown in Table S-2. By crushing in nitrogen, the thickness of the oxide film on the particle surface was suppressed to 3-6 nm (oxide film when crushed in atmosphere is 22-33 nm). This reduced the oxygen content of particles by 40%, and as a result, the coercivity was also reduced by 40%.

	Pulverization in atmosphere	Pulverization in nitrogen
Particle-size distribution	17.0 μm (D50%)	15.6 μm (D50%)
Particle surface cross-section	Oxide 22- film 38 nm	Oxide film Fe 3-8 nm
Oxygen quantity	1.22 [wt%]	0.68 [wt%]
Coercivity	679 [A/m] 40% re	duction 393 [A/m]

Table S-2 Comparison of crushing in atmosphere and in nitrogen

4. Verification of Nano-crystallization Process

It has been confirmed that nano-crystallization heat processing generates uneven temperatures of particles. Consequently, higher temperature particles by self-heating and thermal runaway generate a larger crystal size, while low-temperature particles obtained by poor thermal transfer receive insufficient crystallization. In this project, self-heating control and thermal conductivity were improved to uniformly heat a large quantity of particles without thermal runaway. Furthermore, we verified the heating technique used for the powder while considering the ultimate aim of mass production.

As a heating method with self-heating control and improved thermal conductivity, we selected the heating press method with a heat-absorption function. This method heats the powder by pressing with two heater blocks through a thin plate on each side. The process flow of the heating press method is shown in Fig. S-3. Larger-sized particles (larger thermal capacity) contact top thin plate first while a thin plate is deforming itself during the heating cycle. Next, the thin plate absorbs self-heating by nano-crystallization to even out the particle temperature and achieve uniform nano-crystallization.



Fig. S-3 Process flow by heating press method

Next, by using the heating press equipment, the heating conditions required to achieve the target specification (coercivity of 720 A/m or less)

were verified. The results for coercivity distribution by particle size are shown in Fig. S-4. When heating particles of mixed sizes (particle size (D50%) approx. 14 μ m, Fig. S-4 ref), large particles generate insufficient crystallization due to insufficient heat transfer, while small particles increase the crystal size by self-heating. Based on this result, heating of large particles (particle size (D50%) approx. 53 μ m) and small particles (particle size (D50%) approx. 12 μ m) was applied separately with heating conditions adjusted for particle size. As a result of the experiment, coercivity was reduced by 10% (Fig. S-4 (1)). By changing the mixing rate of large and small particles to set particle size (D50%) to19 μ m, coercivity was further reduced by 25% (Fig. S-4 (2)).



Fig. S-4 Coercivity distribution by particle size

For further verification of the reduction of coercivity and the ease of mass production, a heating press was developed. Consequently, this verified the reduction effect of coercivity by flatness and high-speed elevation of temperature. A comparison of a conventional press and the new press is

shown in Table S-3. In terms of thermal flatness of the equipment, the previous heating press creates thermal strain and generates uneven temperature transfer from the heater block to the particles, thus wasting a large amount of potential heating. On the other hand, the new heating press is able to relieve strain sideways, thus providing more even temperature and the ability to heat a large quantity of particles. In terms of the speed of increasing temperature, the conventional heating press requires more time (12 sec), and the larger amount of heat causes thermal runaway at the center of the particle mass by self-heating, thus increasing coercivity. On the other hand, the new heating press provides a quick increase in temperature (3 sec), thus suppressing self-heating due to the small amount of heat, eliminating thermal runaway, and allowing only a small amount of coercivity. In a comparison on 2 g of particle processing, the new heating press reduced coercivity by 17%. With a further increase of particle quantity to 10 g, coercivity did not change, thus demonstrating large-quantity processing.



Table S-3 Comparison of conventional and new heating presses

5. Verification of Process for Forming Insulation Membrane

When particles of uneven size and shape are molded under uneven surface conditions, current concentrates in particles of low internal resistance, which reduces dielectric strength. Moreover, it has been confirmed that forming the insulation membrane on the particle surface for the purpose of improving dielectric strength requires a temperature range (200 degrees C or below) that does not generate nano-crystallization. In this project, we verified the process for forming of a uniform membrane 200 degrees C or below from the viewpoint of achieving mass production.

Methods of forming an insulation membrane at a temperature 200 degrees C or below were surveyed with the aim of suppressing crystallization (Fig. S-5). By giving consideration to manufacturing costs, the sol-gel method, among in-liquid chemical reactions, and the mechano-chemical method were evaluated as appropriate. The type of insulation membrane formed in each process was studied from the viewpoints of manufacturing cost and productivity; consequently, a silicon dioxide (SiO2) membrane was selected for the sol-gel method, and an aluminium oxide (Al2O3.) membrane was selected for the mechano-chemical method.



Fig. S-5 Survey of insulation membrane forming processes

Next, by using the two selected methods, the process of forming an insulation membrane on pulverized particles of soft magnetic alloy thin strips was verified. The thickness of the SiO2 membrane formed by the sol-gel method was measured while varying the quantity of TEOS (ortho-silicate tetraethyl), the raw material of the membrane, from 1 to 5 g, thus obtaining thicknesses of 8–71 nm. The Al2O3. membrane formed by the mechano-chemical method was observed by SEM while changing the contained weight of Al2O3. powder, the raw material of the membrane, from 5 to 15%, which confirmed that the increased quantity of Al2O3. covered the surface of the particles.

For each of these materials, test samples were produced for measuring the dielectric strength voltage. The results of dielectric strength measured as voltage are shown in Fig. S-6. The SiO2 membrane formed by the sol-gel method showed large variation in dielectric strength, from 183 V/mm to 762 V/mm, but an increase in dielectric strength was found in pulverized particles without the insulation membrane. On the other hand, the Al2O3. membrane formed by the mechano-chemical method did not show an increase in withstand voltage due to the difficulty of forming a dense insulation membrane that can fully cover the surface of pulverized particles.

Based on the test results, membrane forming was concentrated on SiO2 by the sol-gel method, and the direction was set for verification of stable forming of an SiO2 membrane with high dielectric strength voltage.



Fig. S-6 Dielectric strength measurement results of SiO2 membrane formed by sol-gel method and Al2O3. membrane formed by mechano-chemical method

The activity results of increasing dielectric strength are shown in Fig. S-7. By setting a target specification of dielectric strength (250 V/mm) and with the aim of achieving stable forming of an SiO2 membrane with high dielectric strength voltage, an automatic stirrer was adopted for mixing membrane materials while reducing the variation of reaction speed caused by manual operation, and a centrifugal separator was used to eliminate SiO2 residue. In addition, ultrasonic cleaning was applied during stirring to disperse clumping pulverized particles and to form a uniform SiO2 membrane on individual particles, and this increased dielectric strength by approximately two times. Furthermore, by increasing the added quantity of TEOS from 10 to 20 g, dielectric strength was increased by 25% to 271 V/mm, thus achieving the target specification. In addition, the use of ball-shaped particles without sharp edges made using a cyclone mill, along with smaller-diameter particles made using a $32-\mu$ m sifter, improved dielectric strength by 41% to 305 V/mm, thus achieving the target specification. With these particles, an SiO2 membrane with thickness of 50-100 nm has been confirmed.



Fig. S-7 Activity results of improving dielectric strength

6. Overall Assessment

A general assessment of the magnetic characteristics and basic reliability was made by applying process-verification equipment to the pulverization, nano-crystallization, and insulation membrane forming processes established in this project. The overall assessment results are shown in Table S-4. Magnetic properties were checked for core loss (toroidal core) at frequency 100kHz and magnetic flux density 25 mT, saturation magnetic flux density (powder), and dielectric strength (test sample). To evaluate basic reliability, a heat shock test of 100 cycles and a high-temperature, high-humidity test of 100 h were performed. Core loss, heat shock, and high-temperature, high-humidity testing achieved the target of product A, but saturation magnetic flux density and dielectric strength did not achieve the target. Saturation magnetic flux density did not meet the target by only a small margin due to the dependency on iron quantity in the material. Dielectric strength met the target specification in the independent assessment of the insulation membrane forming process but failed to achieve the target in the overall assessment by a large margin. The reason for these results is assumed to come from the difference in the oxide membrane's thickness formed in the pulverization process. In the future, the correlation of these results with the upstream process of forming the insulation membrane will be analyzed for ensuring dielectric strength in the process verification for mass production.

	ltem	Product A target	Product B target	Verified result	Remarks
Magnetic character- istics	Loss (100 kHz, 25 mT) 🔎	80 [kW/m3] or below	60 [kW/m3] or below	O 69 [kW/m3]	
	Saturation magnetic 💓 flux density	1.7 [T] or over	1.7 [T] or over	△ 1.68 [T]	By iron content in material
	Dielectric strength <i>A</i>	250 [V/mm] or over	500 [V/mm] or over	∆ 84 [V/mm]	Requires checking regeneration of dielectric strength
Basic reliability	Heat shock 100 cycles	No change in characteristics shall occur	No change in characteristics shall occur	O Loss 7% increase	
	High-temperature, 💕 high-humidity 100 h	No corrosion	No corrosion	O No corrosion	Prevention of mold rusting required

Table S-4 Ov	erall assessm	ent results
--------------	---------------	-------------

7. Life Cycle Assessment

In assessing the life cycle of magnetic devices using soft magnetic alloy powder, this project's target was the manufacturing process from resource acquisition to powder generation. The current manufacturing processes use "blast furnace," "atomized powder production," and "annealing" as assessment targets, while the manufacturing process of this project uses "pulverization" and "nano-crystallization" as targets. As the basic unit of carbon dioxide (CO_2) emission to be used for comparison, CO_2 emission quantity per 1 kg of soft magnetic alloy powder before insulating was taken as a reference.

The quantity of reduced CO_2 emissions, A-B, by the process verified in this project against the current process is 7.7 kg- $CO_2/kg-M$

[12.5-4.8kg-CO $_2$ /kg-M], indicating a 60% reduction from the current manufacturing process as shown in Fig. S-8.



Fig. S-8 CO_2 emission assessment range and amount of CO_2 emissions by the currently used process and by this project's approach

8. Deployment and Mass Production

In considering expansion to other companies' materials, the potential of applying the soft magnetic alloy thin strip powder of other companies to magnetic devices was studied. Another company's thin strip materials A and B were pulverized under the same conditions used for our company's material and heat-processed under conditions suited to the other company's thin strip materials A and B; here, an insulation membrane was formed under the same conditions as our company's material, and the basic characteristics of the powder were measured. The assessment results are shown in Table S-5. Both of that company's materials, A and B, met the target specification (720 A/mm) of coercivity, and thus application to magnetic devices is presumed possible. In the future, a pulverization process suited to these materials A and B will be established and further detailed assessment will be scheduled.

	Table 5 5 Assessment results of other company 5 materials						
ltem		Company's material	Other company: material A	Other company: material B			
Powder's Basic character- istics	Particle size (d50%)	15.7 [µm]	22.2 [µm]	19.5 [µm]			
	Coercivity (Target 720 [A/m] or less)	387 [A/m]	O 563 [A/m]	O 575 [A/m]			

Table S-5 Assessment results of other company's materials

Next, mass-production equipment in each process was reviewed for commercialization of pulverized powder of soft magnetic alloy thin strips. In particular, among the process-verification equipment fabricated in this fiscal year's verification operations, we reviewed the mass-production equipment used in the nano-crystallization process and the insulation membrane forming process, which require scale upgrading and increased production time.

In the nano-crystallization process, the same material was processed with a hot-air furnace and a hot roll-press machine in anticipation of scaled-up production from the current hot-pressing machine, and the coercivity of the powder was measured. The assessment results are shown in Table S-6. Both the hot-air furnace and the hot roll-press machine achieved the target specification (720 A/mm) and showed increased production time for the nano-crystallization process. In the future, detailed assessment of a mass-production process will be scheduled using a hot-air furnace and a hot roll-press machine.

	Current	In Review		
Process-verification equipment (experimental machine)	Heating press	Hot-air furnace	Hot roll-press machine	
Coercivity (Target 720 [A/m] or less)	O 387 [A/m]	O 582 [A/m]	O 672 [A/m]	

Table S-6 Assessment results of mass-production equipment for nano-crystallization process

In the insulation membrane forming process, a roll mill was used with the expectation that it could scale-up production from the level achieved by the current stirring equipment used for forming this membrane. The dielectric strength was measured, with the assessment results shown in Table S-7. By reducing the membrane material with the roll mill and confirming that the same insulation membrane could be produced as that by the current equipment, we demonstrated the possibility of scaling-up operations in the process of forming the insulation membrane. In the future, a detailed assessment of a mass-production process will be conducted using this roll mill.

membrane forming process					
	Current	In Review			
Process-verification equipment (experimental machine)	Stirring machine Centrifugal separator	Roll mill			
Weight ratio of insulation membrane material	100 Insulation material	membrane reduction 6			
Dielectric strength	217 [V/mm] Dielectri	estrength 255 [V/mm]			
Insulation membrane cross-section surface	SiO2 membrane (50–100 nm)	Fe SiO2 membrane (80–100 nm)			

Table S-7 Assessment results of mass-production equipment for insulation membrane forming process

9. Summary

In the first year of this project, the pulverization process, the nan o-crystallization process, and the insulation membrane forming process were verified, and process-verification equipment was constructed.

♦ Effects

- Energy conservation in powder manufacturing process
 [1st year target: Reduction of CO2 emissions by approx.40% compared with atomized powder manufacturing process]

 Reduction of CO2 emissions by 60% compared with atomized powder manufacturing process
- 2. Energy conservation in automotive equipment by improving performance

[1st year target: Reduction of power loss by approx.

10% from existing large-current devices]

Reduction of power loss by 30% from existing large-current devices

Applicability

The recycling technology achieving pulverization of soft magnetic alloy thin strips verified in this project is applicable to another company's materials, A and B, in addition to our own company's ma terial.

Future schedule and commercialization review

In the first year (Fiscal 2018) of this project, process verification was carried out for the pulverization, nano-crystallization, and insulation membrane forming processes. In the second year (Fiscal 2019) of this project, we will review ways to improve the yield of the pulverization process, to increase production volume from the nano-crystallization process, and to establish mass-production process of an insulation membrane forming process while increasing its production volume. In addition, we will compare other companies' materials with the aim of deploying them in our approach. The proposed milestones toward commercialization are shown in Table S-8.

2018	2019	2020	2021	2022	2023	2024
Process verification	Mass-production verification	Equipment introduction	Equipment verifica	ation R	eliability	Mass production in
 Pulverization Nano- crystallization Insulation membrane 	 Scale-up Yield improvement 					factory
forming	Comparison with other companies' materials				»	Deployment of other companies' materials

Table S-8 Proposed milestones toward commercialization

目次

1.		背景	と目	的	1
	1.	1.	背景		1
	1.	2.	目的	J	2
2.		取組	みの	全体像	4
3.		各工	程の	検証	8
	3.	1.	粉砕	生工程の検証結果	8
		3.1.	1.	1 次 TEG 検証(粉体)	9
		3.1.	2.	2 次 TEG 検証(成形品)	25
		3.1.	3.	粉砕工法検証機の検討	26
		3.1.	4.	工法検証機による特性検証	28
		3.1.	5.	CO2 排出量の検証	38
	3.	2.	ナノ	結晶化工程の検証結果	39
		3.2.	1.	1 次 TEG 検証(粉体)	40
		3.2.	2.	2次 TEG 検証(成形品)	56
		3.2.	3.	熱処理工法検証機の検討	56
		3.2.	4.	工法検証機による特性検証	60
		3.2.	5.	CO2 排出量の検証	69
	3.	3.	絶縁	膜形成工程の検証結果	69
		3. 3.	1.	1 次 TEG 検証(粉体)	70
		3. 3.	2.	2次 TEG 検証(成形品)	81
		3. 3.	3.	絶縁膜形成工法検証機の検討	84
		3. 3.	4.	工法検証機による特性検証	85
		3. 3.	5.	CO2 排出量の検証 1	03
	3.	4.	総合	·評価 1	03
		3.4.	1.	工法検証機による特性検証 1	04
		3.4.	2.	工法検証機による基本信頼性検証 1	10
4.		Life	e Cyc	ele Assessment	12
	4.	1.	考え	方 1	12
	4.	2.	C02	削減効果1	13
5.		展開	性・	量産性の検討1	17
	5.	1.	展開	性	17
	5.	2.	量産	性	18
6.		まと	め.		25

1. 背景と目的

1.1. 背景

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 憶円、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。



図 1.1-1 高飽和磁束密度の軟磁性材料の国内市場

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。



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ー 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 てコア成形し現在、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、 現在、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づけ

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。まず、図 2-1 に軟磁性合金薄帯の粉 砕粉の製造プロセスフローを示す。薄帯の端材を 10mm 角程度に粗くカットし、 粉砕機を用いて細かく粉砕する(粉砕工程)。このときの粒径は、20~30µm (D50%)程度にする。次に、振動篩を用いて分級を行う。このときの粒径は、 15~25µm (D50%)程度にする。次に、熱処理装置を用いてナノ結晶化を行う(ナ ノ結晶化工程)。最後に粉砕粉の粒子表面に絶縁膜を形成する(絶縁膜形成工 程)。上記工程を経て製造した軟磁性合金薄帯の粉砕粉をコア成形し、磁気デ バイスへ適用する。高飽和磁束密度が特徴の磁気デバイスでは、小粒径の粉体 が必要とされる(商品 A)。一方、低損失・高耐圧が特徴の磁気デバイスでは、 球形の粉体が必要とされる(商品 B)。図 2-1 に示すように、粉砕工程で粉砕形 状・粉体サイズを変えることによって、2 種類の商品へ適用が可能となる。



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。以下、各工程の特性劣化のメカニズムと本事業における工法検証の取 組み概要について説明する。

粉砕工程では、図 2-2 に示すように、機械粉砕による応力歪、粒子表面の酸 化、粉砕時の発熱による鉄化合物の析出により、磁気デバイスの損失と相関の ある保磁力が増加する。保磁力は、磁化された磁性体を磁化されていない状態 に戻すために必要な反対向きの外部磁場の強さをいう。保磁力が増加すること により、ヒステリシス損失が増加する。ヒステリシス損失は、粉体の磁区が交 番磁界によって磁界の向きを変えるときの損失である。

したがって、粉砕時の応力歪の抑制、粒子表面の酸化抑制、鉄化合物の析出 抑制が必要となる。そこで、薄帯の低歪粉砕、低酸化粉砕、低発熱粉砕の粉砕 工法の検証を実施したので、3.1. 粉砕工程の検証結果で、その結果について述べる。



図 2-2 粉砕工程の特性劣化メカニズム

ナノ結晶化工程では、粒子サイズの大小による熱容量差により、ナノ結晶化 する熱処理で粒子の温度が不均一となる。粒子サイズが小さい粒子は、自己発 熱により粒子の温度が高くなり、結晶が肥大化する。一方、粒子サイズが大き い粒子は、熱伝導性が悪く粒子の温度が低くなり、結晶化が不足する(微結晶)。 図 2-3 は、発熱反応として熱が放出されている様子を示している。最適なナノ 結晶の状態に至らない粒子は、微結晶の状態のままか、もしくは結晶が肥大化 した状態になることを示している。これらの状態の粒子は、粉体の保磁力が増 加し、特に、微結晶の状態のままだと飽和磁束密度も低下する。飽和磁束密度 とは、磁束の単位面積当たりの面密度の磁束密度の限界をいう。

したがって、図 2-3 に示すようなナノ結晶化を起こす温度範囲での粉体の均 一加熱が必要となる。そこで、自己発熱の制御と熱伝導性の向上を図り、多量 の粉体でも熱暴走させずに均一加熱処理が可能であるナノ結晶化工法の検証を 実施した。3.2.ナノ結晶化工程の検証結果でその結果について述べる。


図 2-3 ナノ結晶化工程の特性劣化メカニズム

絶縁膜形成工程では、図 2-4 に示すように、粉砕粉の成形品に電圧を印加す ると、抵抗が低く粒子サイズの大きい粒子に電流が集中し、成形品の耐圧が低 下する。

したがって、粉砕粉の表面に絶縁膜を形成し、粒子そのものの抵抗を高くす ることで、成形品の耐圧を高くすることが必要となる。その際、耐圧向上のた めに粒子表面に形成する絶縁膜は、ナノ結晶化しない温度範囲(200℃以下)で 形成する必要がある。そこで、ナノ結晶化した粉砕粉のような、粒子サイズ・ 形状がバラバラで表面が凸凹した粒子に対して、200℃以下で均一に絶縁膜形成 する絶縁膜形成工法の検証を実施した。3.3. 絶縁膜形成工程の検証結果でその 結果について述べる。



図 2-4 絶縁膜形成工程の特性劣化メカニズム

なお、商品スペックのターゲットは、表 2-1 のとおりとし、本事業で確立した、粉砕工程、ナノ結晶化工程、絶縁膜形成工程の工法検証機を使用して磁気

特性と基本信頼性の総合評価を実施した。3.4.総合評価でその結果について述べる。

	項目	商品A目標	商品B目標
	損失(100kHz,25mT) 🛛 🍘	80[kW/m3]以下	60[kW/m3]以下
磁気 特性	飽和磁束密度	1.7[T]以上	1.7[T]以上
	耐圧 🖉	250[V/mm]以上	500[V/mm]以上
基本	熱衝撃100サイクル 🛛 🔵	特性変化ないこと	特性変化ないこと
^{盡平} 信頼性	高温高湿放置100h	腐食無きこと	腐食無きこと

表 2-1 本事業における商品スペックのターゲット

実用化に向けては、ナノ結晶化による特性向上、大電流化に対応した信頼性 確保が不可欠であり、また、損失低減、飽和磁束密度向上、耐圧確保の課題を 解決することが必要である。

軟磁性合金薄帯の粉砕粉は、薄帯のプレス端材などを回収し、粉砕、ナノ結 晶化、絶縁処理を施し製造する。本実証事業では、上記課題を解決し、軟磁性 合金薄帯の粉砕粉の安定的な製造及びコア成形を行う技術の実証を行った。

3. 各工程の検証

各工程の検証を進めるに当たり、適用する商品の求めるスペックから、目標 値を下記の通りとした。

■目標値

1)成形品で評価	
①損失	:80kW/m3以下(100kHz、25mT)
2耐圧	: 250V/mm 以上
2) 粉体状態で評価	
①粒径(D50%)	: 20µm以下
②保磁力	:720A/m 以下
③飽和磁束密度	: 1.7T 以上

3.1. 粉砕工程の検証結果

薄帯を粉砕すると粉体の保磁力が 300 倍に増加することが確認できている。 保磁力は、損失と相関がある指標で、前述したように、応力歪、酸化、化合物 の析出によって増加する。

そこで、本事業では、薄帯の粉砕において、低応力で、酸化をさせない粉砕 工法を検証した。尚、検証は次の4つのステップで実施した。

ステップ1:1次 TEG 検証(粉体)

1) 薄帯から粉体化するための粉砕方式の調査とベンチマーク

2) ベンチマーク結果で選択した粉砕方式による粉体の評価

ステップ2:2次 TEG 検証(成形品)

1次 TEG 検証で得られた粉体を用いた圧粉成形品の評価

ステップ3:粉砕工法検証機の検討

1次 TEG 検証及び2次 TEG 検証で得られた結果を基にした、工法 検証機の検討

ステップ4:工法検証機による特性評価

工法検証機を用いた粉体及び圧粉成形品の評価

3.1.1. 1次 TEG 検証(粉体)

1) 粉砕方式の調査とベンチマーク

磁性合金薄帯を粉砕する方法として、次の7つの方式について調査した。 ①ミキサーミル、②サイクロンミル、③遊星ボールミル、④アトライタ、⑤ジ ェットミル、⑥サンプルミル、⑦振動ミル

検討を実施した各粉砕方式の概要としては、下記の通りである。

①ミキサーミル

最大回転数 28000 回転の超高速モーターを搭載しており、目的物を瞬時に粉 砕する。粉砕容器に材料を投入し、粉砕ハネが高速に回転する。そのとき、材 料は粉砕ハネおよび、粉砕容器と衝突して、材料が徐々に細かく粉砕されてい く。

②サイクロンミル

2つのインペラを同方向に高速で回転させ、高速気流を発生し、粉砕室に大き なせん断力を生み出す。材料は粉砕室内にて、気流に乗りせん断力による粉砕 と粒子同士の衝突による粉砕で、次第に細かな粒子に粉砕される。大きな粒子 は遠心力により外周に誘導され、微粉は軸方向に集まる。出口側より吸引され て一定粒度の微粉のみが連続的に排出される。原料供給量、インペラ回転数・ 間隔および回収装置の吸引力などパラメータ調整により粉砕粒度をコントロー ルし、サブミクロン近くまでの極めて均一な粒度分布を得ることができる。気 流に乗った材料同士の衝突をメインとしており、低応力で粉砕できることを特 徴としている。

サイクロンミルの大きな特徴として、次の6点を挙げることができる。

- (i) 機械的摩耗、コンタミ(インペラ摩耗による不純物) が少ない
- (ii) 粉砕時の熱発生が従来の機械式粉砕機に比べて小さいために、高温での粉砕が不可能な材料でも粉砕が可能になる
- (iii) 大量の気流が発生することで、短時間で粉砕を行うことができる
- (iv) 硬度の高い原材料や比重の大きな原材料なども粉砕できる
- (v) 数mmの原材料をミクロンオーダーまでの微粉にワンパスで高精度に粉 砕できる
- (vi) エネルギーの使用効率が高く、従来の機械式粉砕機、ジェットミルと 比較すると、大幅なエコ運転が可能になる

③遊星ボールミル

粉砕容器内に材料とボールを入れ、ミルポットの自転運動と、ポットを載せ たステージの公転運動によって、材料の粉砕および、分級を行う。材料のボー ルとポットとの壁の衝突の他に、自転と公転を逆方向に行うことで、遠心力を 起こし、短時間で粉砕処理を行うことができる。

④アトライタ

超微粉砕機に属する媒体攪拌ミルであり、アトライタは3~10 mm程度のボールを用いて、棒状の攪拌アームにより、材料が細かく粉砕させるメカニズムである。

⑤ジェットミル

ノズルから噴射される音速前後に達する空気あるいは、蒸気を超高速ジェットとして、粉体粒子同士を衝突させる。この衝突によって、数ミクロンオーダーの微粒子にまで粉砕される装置である。

⑥サンプルミル

ブレードローターを回転させ、原料に衝撃を与えて、材料を微粉末に粉砕す る装置である。

⑦振動ミル

ボールミルなどの回転ミルとは異なり、粉砕容器自体を高速に振動させるこ とで、粉砕容器内に充填されている粉砕媒体の作用により、細かく粉砕されて いく装置である。

表 3.1-1 は、軟磁性合金薄帯を原料に、各種粉砕方式で粉砕した比較結果を 示している。目標とする粒径(D50%) 20 µm以下を達成している方式は、ミキサ ーミルとサイクロンミルの2方式であった。軟磁性合金薄帯は、延性があるた め、粉砕するには非常に大きなエネルギーを必要とするためである。

Г		ミキサーミル	サイクロンミル	遊見ボールミル	アトライタ	ジェットミル	サンプルミル	塩動ミル
	粉砕媒体	粉砕羽根	気流	がール	ボール	気流	粉砕刃	振動
F	乾式/湿式	乾式	乾式	乾式	乾式/湿式	乾式	乾式	乾式
F	粉砕原理	衝撃	剪断・粉衝突	衝撃	衝突・剪断	粉衝突	衝撃	衝撃
	製造メーカー	大阪ケミカル	静岡プラント	フリッチュ	日本コークス	セイシン企業	奈良機械製作所	レッチェ
粉砕機					×1			
Γ	粉砕前	1 0mm	1 0mm	□5mm	□ 1 mm	□ 1 mm	1 0mm	10mm
形状	粉砕後 SEM写真 (×600)					_		
	粒径(D50%) (目標20μm以下)	14. 4um	18. 8um	23. 6um	26. 1um	_	32. 9um	54. 2um
項日	保磁力Hc (目標720A/m以下)	944A/m	386А/ш	1,624A/m	1,128A/m	_	419A/m	730A/m
	飽和磁束密度Bs※2 (目標1.7T以上)	1.73T	1.72T	1.64T	1.71T	_	1.66T	1.57T
	生産性(スケールアップ)	미	П	不可	可	미	п	不可
	判定	Δ	0	×	×	×	×	×

表 3.1-1 各種粉砕方式での粉砕結果

※1 出典 日本コークス工業株式会社ホームページ http://www.nc-kakouki.co.jp/index_s_funsaiki_004.html ※2 密度7.45g/cm3にて算出

ミキサーミルについては、初期評価で保磁力が目標値を達成していなかった が、サイクロンミルと比べ、シンプルな装置構造であり、設備コストの観点か ら、まずは、ミキサーミルにおける実用の可能性を検証した。

2) ミキサーミルによる粉砕評価

図 3.1-1 は、ミキサーミルによる粉砕の概要を示している。粉砕ハネの回転 により、薄帯からカットされた材料と粉砕ハネの衝突、粉砕容器と材料との衝 突が起こり、材料が細かく粉砕される。



粉砕ハネと材料の衝突

図 3.1-1 ミキサーミルによる粉砕

粉体粒子の応力歪に影響を与える粉砕条件としては、①投入する材料のサイズ、②材料の投入量、③粉砕ハネの回転数、④粉砕時間、⑤粉砕ハネの形状が 想定され、それぞれの条件の保磁力への影響を評価した。

図 3.1-2は、ミキサーミルによる粉砕手順を示しており、次の通りである。

- i)薄帯材料を必要量、準備する。
- ii)薄帯を所定の寸法になるようにハサミでカットする。
- iii)カットした材料を所定の分量で、ミキサーミルの粉砕容器に入れ、粉砕 を実施する。
- iv) 粉砕後に、大粒子を除くために、分級を行う。このとき分級は、150 μ m ふるい、75 μ m ふるい、53 μ m ふるいの順で行う。
- v)分級で53µmふるいを通過した粉体について、各評価を実施する。



図 3.1-2 ミキサーミルによる粉砕手順

評価で使用した機器としては、粒度分布は、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、保磁力の評価は、振動 試料型磁力計(VSM、PV-M10-5F型、東栄科学産業製)を使用した。

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>

- 材料サイズ:10 mm角
- •材料投入量:25g
- ・粉砕ハネの回転数:28000rpm
- ·粉砕時間:20分
- ・粉砕ハネの形状:丸い刃

以下、各粉砕条件振りした評価結果を述べる。粉砕後の保磁力の目標値は、 過去の評価データより、熱処理後の保磁力の目標値から逆算し、3000A/m とした。

①材料サイズ依存性評価

投入する材料サイズによる保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

·実験水準

材料サイズ:5mm角、10mm角、20mm角、40mm角

・評価項目 粒径、保磁力(粉砕後)

【実験結果】

表 3.1-2 は、材料サイズと粒径、図 3.1-3 は、材料サイズと保磁力の関係を 示している。投入する材料サイズの違いによる、保磁力の有意差は確認できず、 いずれも目標値に達しなかった。粉砕後の粒径が同じであれば、薄帯から粉体 化するまでに材料に与えられる応力は変わらないと考えられるためである。

サイズ	5mm角	10mm角	20mm角	40mm角
粒径 (D50%)	13.36 μ m	12.56 μ m	13.33 μ m	12.97 μ m
SEM 写真				

表 3.1-2 材料サイズと粒径



図 3.1-3 材料サイズと保磁力

また、図 3.1-4 は、材料サイズと歩留の関係を示している。歩留とは、分級 後の材料取れ量/材料投入量×100%である。材料サイズが大きくなると、歩留 が低下している。材料サイズを大きくすると、粉砕する時間が不足すると考え られる。材料サイズ 5 mm角と 10 mm角では、歩留はほぼ同等だが、材料をカット する時間が異なるため(5 mm角:1時間、10 mm角:30分)、材料サイズの最適 条件を 10 mm角とした。



図 3.1-4 材料サイズと歩留

②材料投入量依存性評価

材料の投入量による保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

・実験水準

材料投入量:20g、25g、30g

・評価項目 粒径、保磁力(粉砕後)

【実験結果】

表 3.1-3 は、材料投入量と粒径、図 3.1-5 は、材料投入量と保磁力の関係を 示している。粉砕時の材料投入量を減らすことで、保磁力が低減することがわ かったが、目標値には達しなかった。材料投入量を増やすと、材料が移動でき る空間が減少し、粉砕ハネによる粒子への応力を緩和できずに、粉体粒子の応 力歪が増加したと考えられるためである。

表 3.1-3 材料投入量と粒径

薄帯量	20 g	25 g	30 g
粒径 (D50%)	12.78 μ m	12.56 μ m	12.07 μ m
SEM 写真			



図 3.1-5 材料投入量と保磁力

また、図 3.1-6 は、材料サイズと歩留の関係を示している。材料投入量を増 やすと、歩留が向上する。材料投入量を増やすと、材料の衝突回数が増加する と考えられる。材料投入量を増やすと保磁力は増加するが、生産性を考慮して、 材料投入量の最適条件を 25g とした。



図 3.1-6 材料投入量と歩留

③粉砕ハネの回転数依存性評価

粉砕ハネの回転数による保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

· 実験水準

回転数:7000rpm、28000rpm

- ※低速の 7000rpm と、ミキサーミルの装置仕様限界である 28000rpm の 2 水 準で評価した
- ・評価項目
 粒径、保磁力(粉砕後)

【実験結果】

表 3.1-4 は、粉砕ハネの回転数と粒径、図 3.1-7 は、粉砕ハネの回転数と保 磁力の関係を示している。粉砕ハネの回転数の違いによる保磁力の有意差は確 認できず、いずれも目標値には達しなかった。尚、粉砕ハネの回転数が 7000rpm のときは、粒径が大きいにも関わらず、保磁力が回転数 28000rpm と同等である が、粉砕が進まず、粉体表面の粉砕による酸化部が削られなかったと考えられ る。



表 3.1-4 粉砕ハネの回転数と粒径



図 3.1-7 粉砕ハネの回転数と保磁力

図 3.1-8 は、粉砕ハネの回転数と歩留の関係を示している。粉砕ハネの回転数が 7000rpm において、歩留が極端に低くなっている。回転数が低いことにより、材料の衝突回数が不足していると考えられる。生産性を考慮して、回転数の最適条件を 28000rpm とした。



図 3.1-8 粉砕ハネの回転数と歩留

④粉砕時間依存性評価

材料を粉砕する時間による保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

· 実験水準

粉砕時間:15分、20分、25分

・評価項目
 保磁力(粉砕後)

【実験結果】

表 3.1-5 は、粉砕時間と粒径、図 3.1-9 は、粉砕時間と保磁力の関係を示し ている。粉砕時間が 20 分と 25 分の保磁力が小さいが、いずれも目標値に達し なかった。尚、粉砕時間が 15 分のときは、粒径が大きいにも関わらず、他の粉 砕時間と比べ大きくなっているが、粉砕が進まず、粉体表面の粉砕による酸化 部が削られなかったと考えられる。

薄带量	15分	20分	25分
粒径 (D50%)	14.53 μ m	12.56 μ m	12.32 μ m
SEM 写真			

表 3.1-5 粉砕時間と粒径





また、図 3.1-10 は、粉砕時間と歩留の関係を示している。粉砕時間が短い 15 分では、歩留が低くなっている。粉砕時間が短いことにより、材料の衝突回数 が不足していると考えられる。生産性を考慮して、粉砕時間の最適条件を 20 分 とした。



図 3.1-10 粉砕時間と歩留

⑤粉砕ハネの依存性評価

粉砕ハネの形状及び材質による保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

·実験水準

粉砕ハネ

- (i) 丸いハネ形状 (SUS420)
- (ii)角ばったハネ形状 (SUS420)
- (iii)角ばったハネ形状 (SKH51) + 窒化処理 (硬質化)

図 3.1-11 は、各種粉砕ハネの外観写真を示している。



(i) 丸いハネ形状



(ii)角ばったハネ形状



(iii)角ばったハネ形状(硬質化) 図 3.1-11 各種粉砕ハネ

・評価項目

粒径、保磁力(粉砕後)

【実験結果】

表 3.1-6 は、粉砕ハネの形状及び材質と粒径、図 3.1-12 は、粉砕ハネの形状 及び材質と保磁力の関係を示している。丸い粉砕ハネが最も保磁力が小さいこ とを確認したが、目標には達しなかった。粉砕ハネ形状が丸いことで、材料と 粉砕ハネとの衝突によって発生する応力が小さくなると考えられる。

粉砕ハネ	丸いハネ	角ばったハネ	角ばったハネ 硬質化
粒径 (D50%)	12.56 μ m	12.04 μ m	12.25 μ m
SEM 写真			

表 3.1-6 粉砕ハネの形状及び材質と粒径



図 3.1-12 粉砕ハネの形状及び材質と保磁力

また、図 3.1-13 は、粉砕ハネの形状及び材質と歩留の関係を示している。粉 砕ハネに角ばったハネや硬質化したハネを使用した場合は、10%程度だが歩留 が高くなる。鋭利化や硬質化により、材料への衝突により発生する応力が大き くなる反面、材料を砕きやすくなっていると考えられる。生産性よりも保磁力 への影響が大きいため、粉砕ハネの最適条件を、丸い刃とした。



図 3.1-13 粉砕ハネの形状及び材質と歩留

以上の結果から、粉体の保磁力低減に対しては、材料投入量、粉砕ハネの回 転数、粉砕時間、粉砕ハネ形状が有効であることを確認した。そこで、最適化 した粉砕条件で、保磁力を評価した。

【実験内容】

 ・実験条件(最適化後粉砕条件) 材料サイズ:10mm角 材料投入量:25g 粉砕ハネの回転数:28000rpm 粉砕時間:20分 粉砕ハネの形状:丸い刃

・評価項目

保磁力(粉砕後、ナノ結晶化後)

【実験結果】

表 3.1-7 は、最適条件での粒径と保磁力を示している。ミキサーミルによる粉砕では、ナノ結晶化後の保磁力の目標値 720A/m 以下を満足することができなかった。

太切」 -				
	粒径(D50%)	保磁力		
粉砕後	13.52 μ m	3023A/m		
ナノ結晶化後	16.23 μ m	835A/m		

表 3.1-7 最適条件での粒径と保磁力

3.1.2. 2次 TEG 検証(成形品)

ミキサーミルで粉砕した粉体について、粒径(D50%)を振った圧粉成形品について、損失の評価を実施した。

図 3.1-14 は、粒径 (D50%) と損失の関係を示している。目標とする粒径 (D50%) 20 µ m以下で、80 k W/m3 以下を満たせなかった。





以上の検証結果から、ミキサーミルのような粉砕ハネで直接材料を粉砕する 方式では、粉体粒子に発生する衝撃応力を低減し、保磁力を目標値以下にする ことが困難であると判断し、別の粉砕方式での検討を実施することにした。

3.1.3. 粉砕工法検証機の検討

保磁力の目標値を満足するため、ベンチマークでミキサーミルよりも良好な 結果であったサイクロンミルの検討を行なった。保磁力に影響を与える因子と しては、前述したように、応力歪み、鉄化合物の析出、酸化であり、それぞれ を抑制することで、保磁力を低減することができる。

サイクロンミルとミキサーミルとのもっとも大きな違いは、粉砕ハネによる 破砕と比べ、気流による粉体粒子同士の衝突による破砕であり、粉体への応力 が小さいが期待できることにある。

図 3.1-15 は、ミキサーミルとサイクロンミルで粉砕した後の形状を比較した 写真である。サイクロンミルで粉砕したものは、ミキサーミルで粉砕したもの と比べ、粉体の角がとれ球状に近づいている。これは、粉体粒子同士の衝突に より、低応力で、少しずつ粉体表面の角が取れていくプロセスの結果であるこ とを示している。また、粉砕時の温度上昇が抑えられることから、鉄化合物の 析出を抑制できることが期待できる。



角ばった扁平状粒子

角が取れ、丸まった粒子

図 3.1-15 ミキサーミルとサイクロンミルで粉砕した粉体の SEM 写真

サイクロンミルによる低応力球状粉の生成について、図 3.1-16 を使用して詳細に述べる。原料投入口から投入された原料(薄帯)は、気流に乗って粉砕室 へ流入する。この気流は、微粉排出口に接続された吸引装置(図示略)の吸引 力によって作り出される。粉砕室に流入した原料は、循環流に乗って、粉砕室 内を移動する。このとき、循環流に乗った原料同士が、互いに摩擦し合い、粉 砕される。この摩擦粉砕により、粉砕粉が生成される。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により、 排出口から排出される粒子より大きな粒子を、循環流によって表面を削り取ら せた状態で、粉砕室内に滞留させることに成功した。その結果、粉砕室内に、 角のない球状の粉末と角のない楕円体状の粉末、すなわち、低応力球状粉を生成した。また、もう一つの影響因子である酸化抑制のため、粉砕室に窒素を循環させる機構を追加することで、窒素雰囲気での粉砕を実現し、酸化度の低い粉末を生成した。図 3.1-17 に、本事業で開発した工法検証機のサイクロンミルの外観を示す。



図 3.1-16 サイクロンミルによる低応力球状粉の生成



図 3.1-17 サイクロンミル工法検証機の外観

3.1.4. 工法検証機による特性検証

サイクロンミルの評価では、保磁力に影響すると考えられる5つの条件、① インペラの回転数 ②インペラの間隔 ③材料サイズ ④粉砕時間 ⑤粉砕時の酸 素濃度について、保磁力への影響を評価した。

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。

- i)薄帯材料を必要量、準備する。
- ii)薄帯を所定の寸法になるようにハサミでカットする。
- iii)カットした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、粉 砕を実施する。
- iv) 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、150 μ mふるい、75 μ mふるい、53 μ mふるい、32 μ mふるいの順 で行う。(インペラの回転数依存性評価は53 μ mふるいまで)
- v)分級で 32 μ mふるいを通過した粉体について、各評価を実施する。
 (インペラの回転数依存性評価の分級は 53 μ m まで)

評価で使用した機器としては、粒度分布は、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:15000rpm
- ・インペラの間隔:37mm
- ・材料サイズ:10mm 角
- ·粉砕時間:20分
- ・粉砕酸素濃度:21.4%(大気中)

以下、粉砕条件振りした評価結果を述べる。

①インペラの回転数依存性評価

インペラの回転数による保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

·実験水準

インペラの回転数:9000rpm、11000rpm、15000rpm ※32 µ mふるいは未実施

・評価項目

粒径、保磁力

【実験結果】

表 3.1-8 は、インペラの回転数と粒径、図 3.1-18 は、インペラの回転数と保 磁力の関係を示している。粒径(D50%)はターゲットの 20 µm より大きくなっ たが、保磁力はインペラの回転数が 11000rpm、15000rpm で目標に達した。イン ペラの回転数が 9000rpm のときは、インペラの回転による遠心力に対して、吸 引装置の吸引力が強く、粉体はほぼ回収できなかった。インペラの回転数が 11000rpm のときは、粉体を回収できたが、回転数が低いため、粉砕が進まず粒 径が大きくなった。インペラの回転数が 15000rpm のときは、インペラの回転に よる粉砕と、吸引装置による吸引のバランスがとれており、粒径が小さい粉体 を回収することができたと考えられる。

インペラの回転数	9000rpm	11000rpm	15000rpm
粒径(D50%)	36.53 μ m	39.40 μ m	35.21 μ m
SEM写真	ほぼ回収でき なかったため データなし	× 600	× 600

表 3-1.8 インペラの回転数と粒径



図 3.1-18 インペラの回転数と保磁力

また、図 3.1-19 は、インペラの回転数と歩留の関係を示している。インペラの回転数が高くなるほど歩留が上がることがわかる。これは、インペラの回転数が高くなるほど粉砕エネルギーが大きくなるため、粉砕が進むからと考えられる。

以上から、インペラの回転数は15000rpm が最適である。



図 3.1-19 インペラの回転数と歩留

②インペラの間隔依存性評価

インペラの間隔による保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

·実験水準

インペラの間隔:35mm、36mm、37mm、38mm

・評価項目

粒径、保磁力

【実験結果】

表 3.1-9 は、インペラの間隔と粒径、図 3.1-20 は、インペラの間隔と保磁力 の関係を示している。保磁力はインペラの間隔が 35mm~38mm で目標に達した。 インペラの間隔が小さくなるほど粒径が大きくなっていることがわかる。これ は、インペラの間隔が小さくなると、インペラと粉砕室の間の隙間が広くなる ことで、循環流に乗る粒径が大きくなるからである。保磁力と粒径の両立を考 慮すると、37mm が最適と考えられる。

 インペラの間隔
 35mm
 36mm
 37mm
 38mm

 粒径 (D50%)
 18.81 µ m
 17.95 µ m
 15.41 µ m
 16.06 µ m

 SEM写真
 × 600
 × 600
 × 600
 × 600
 × 600

表 3-1.9 インペラの間隔と粒径





また、図 3.1-21 は、インペラの間隔と歩留の関係を示している。インペラの 間隔が大きくなるほど歩留が上がることがわかる。これは、インペラの間隔が 大きくなるほど、インペラと粉砕室の間の隙間が狭くなり粉砕エネルギーが大 きくなるため、粉砕が進むからと考えられる。



以上より、インペラの間隔は37mm が最適である。

図 3.1-21 インペラの間隔と歩留

③材料サイズ依存性評価

投入する材料サイズによる保磁力への影響を評価した。なお、本評価において、粉砕時間は25分とした。

【実験内容】

·実験水準

材料サイズ:3mm角、10mm角、20mm角

・評価項目

粒径、保磁力

【実験結果】

表 3.1-10 は、材料サイズと粒径、図 3.1-22 は、材料サイズと保磁力の関係 を示している。なお、材料サイズが 20 mm角以上のときは、材料供給時のフィー ダーに材料が詰まり、材料が供給できず、実験できなかった。保磁力は材料サ イズが 3mm 角、10mm 角で目標値に達した。投入する材料サイズの違いによる、 保磁力の有意差を確認することはできなかった。ミキサーミルと同様に、粉砕 後の粒径が同じであれば、薄帯から粉体化するまでに材料に与えられる応力は 変わらないと考えられる。

材料サイズ	3mm角	10mm角	20mm角
粒径(D50%)	15.41 μ m	18.24 μ m	_
SEM写真	× 600	×800	材料が供給で きなかったた めデータなし

表 3-1.10 材料サイズと粒径



図 3.1-22 材料サイズと保磁力

また、図 3.1-23 は、材料サイズと歩留の関係を示している。ミキサーミルと 同様に、材料サイズが 10mm 以下では、材料サイズを変更しても、歩留に有意差 は確認できなかった。材料をカットする時間を考慮し、材料サイズの最適条件 を 10 mm角とした。

以上より、材料サイズは10mm角が最適である。



図 3.1-23 材料サイズと歩留

④粉砕時間依存性評価

粉砕時間による保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

·実験水準

粉砕時間:10分、20分、25分、45分

・評価項目

粒径、保磁力

【実験結果】

表 3.1-11 は粉砕時間と粒径、図 3.1-24 は粉砕時間と保磁力の関係を示して いる。保磁力は粉砕時間が 10 分~45 分で目標値に達した。粉砕時間を短くする と、保磁力が低減することを確認した。粉砕時間の短時間化により、粉体の応 力歪みが小さくなると考えられる。ここで、粉砕時間は、短いほど保磁力とし ては、良好であるが、粉砕時間が 10 分であると、目標である粒径(D50%)の 値が 20 μ m 以下であるのに対し、粒径(D50%)の値は 22.29 μ m と大きく、粉 砕時間が不足している。したがって、粉砕時間 20 分が最適であると考えられる。

 粉砕時間
 10分
 20分
 25分
 45分

 粒径 (D50%)
 22.29 μ m
 15.94 μ m
 15.41 μ m
 17.55 μ m

 SEM写真
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×600
 ×60

表 3.1-11 粉砕時間と粒径



図 3.1-24 粉砕時間と保磁力

また、図 3.1-25 は、粉砕時間と歩留の関係を示している。粉砕時間が長くなると歩留が上がることがわかる。これは、粉砕時間が長くなるほど、粉砕エネルギーが大きくなるため、粉砕が進むからと考えられる。

以上より、粉砕時間は20分が最適である。



図 3.1-25 粉砕時間と歩留

⑤粉砕時酸素濃度依存性評価

粉砕時の酸素濃度による保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

· 実験水準

酸素濃度:21.4%(大気中粉砕)、酸素濃度:0.1%(窒素中粉砕)

·評価項目

粒径、保磁力

【実験結果】

表 3.1-12 は、粉砕時の酸素濃度と粒径、図 3.1-26 は、粉砕時の酸素濃度と 保磁力の関係を示している。保磁力は酸素濃度が 0.1%と 21.4%で目標に達した。 粉砕時に酸素濃度を減らすと、保磁力が低減できることを確認した。これは、 粉砕粉末中の酸素濃度が低くなることにより、粉末中の磁性成分の割合が多く なることによるものと考えられる。

粉末表面の酸化の進行度を確認すると、粉砕時の酸素濃度が21.4%では、酸化 膜が22~33nmであるのに対し、粉砕時の酸素濃度が0.1%では、酸化膜が3~6nm 程度にまで減少していた。また、粉体全体の酸素量は、粉砕時の酸素濃度が21.4% では、1.22wt%であったのに対し、粉砕時の酸素濃度が0.1%では、0.68wt%ま で低減できていることを確認した。したがって、粉砕時の酸素濃度は低い方が よいと考えられる。

粉砕時の酸素濃度	0.1%	21.4%
粒径(D50%)	15.64 μ m	16.98 μ m
SEM写真	× 600	× 600

表 3.1-12 粉砕時の酸素濃度と粒径



図 3.1-26 粉砕時の酸素濃度と保磁力

また、図 3.1-27 は、粉砕時の酸素濃度と歩留の関係を示している。歩留は粉 砕時の酸素濃度に依存しないことがわかる。

以上より、粉砕時の酸素濃度は0.1%(窒素中粉砕)が最適である。



図 3.1-27 粉砕時の酸素濃度と歩留

以上の粉砕条件の検討により、保磁力は393A/mであり、粉体の保磁力の目標 値720A/m以下を達成することができた。なお、本事業の工法検証機による特性 検証における歩留は10%程度と非常に低かったが、第4章で説明する総合評価で は、歩留は30%程度まで向上できている。今後、量産化に向けて、さらに粉砕工 程の歩留を向上させていく予定である。

さらに、サイクロンミルで粉砕した粉体について、成形品の損失を評価した ところ、損失は 69kW/m3 であり、成形品の損失目標値 80 k W/m3 以下を達成する ことができた。

3.1.5. CO2 排出量の検証

粉砕工程における CO2 排出量は、下記手順により導出した。

①まず、破砕工程におけるサイクロンミル装置の消費電力量を実測し、投入した薄帯端材の量、歩留、CO2排出係数を用い、薄帯の端材から粉砕粉 1kg を生成するプロセスの CO2 排出量を算出。

消費電力量(1kwh)÷薄帯端材(0.6kg)÷歩留(30%)×C02 排出係数(0.512kg/kWh) =2.8kg-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

②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、 ナノ結晶化の製造プロセスの歩留で除した。

粉砕粉 1kg を生成するプロセスの CO2 排出量(2.8kg-CO2/kg-P) ÷ナノ結晶化プ ロセスの歩留(90%)=3.1kg-CO2/kg-M

つまり、粉砕工程による、軟磁性合金粉体 1kg 当たりの CO2 排出量は、

3.1kg-CO2/kg-M であることを確認した。

3.2. ナノ結晶化工程の検証結果

ナノ結晶化工程の目的としては、粉体化した軟磁性合金に対し、熱処理によ り、応力歪みの緩和とナノ結晶化で、保磁力を低減し、飽和磁束密度を増加さ せることにある。図 3.2-1 は、軟磁性合金の熱分析 DTA 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。熱処理で、ナノ結晶が十分 に形成されないと、保磁力が高く、飽和磁束密度が低くなる。また、400℃近傍 の発熱ピークの発熱量は大きいため、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

つまり、ナノ結晶化する熱処理で粉体の温度が不均一になると、自己発熱に より熱暴走して温度が高い粒子は結晶が肥大化し、熱伝導性が悪く温度が低い 粒子は結晶化が不足する。

そこで、本事業では、自己発熱の制御と熱伝導性の向上を図り、多量の粉体 を熱暴走させず、均一加熱する加熱工法を検証した。尚、検証は次の4つのス テップで実施した。

ステップ1:1次 TEG 検証(粉体)

1) 粉体をナノ結晶化するための熱処理方式の調査

2) 選択した熱処理方式による粉体の評価

ステップ2:2次 TEG 検証(成形品)

1次 TEG 検証で得られた粉体を用いた圧粉成形品の評価

ステップ3:熱処理工法検証機の検討

1次 TEG 検証及び2次 TEG 検証で得られた結果を基にした、工法 検証機の検討

ステップ4:工法検証機による特性評価 工法検証機を用いた粉体及び圧粉成形品の評価

3.2.1. 1次 TEG 検証(粉体)

1)熱処理方式の調査

粉体を熱処理する方式としては、炉とプレスの2つの方式がある。炉方式は、 大気中や不活性ガスの窒素中などの各雰囲気中において、熱量をもった気体な どにより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 理できる半面、雰囲気中での熱の伝達のため、熱伝達率が低く、急速加熱や粉 体の自己発熱を制御することが困難である。一方、プレス方式は、熱量をもっ た金属などの板を直接的に粉体に押し当て、粉体を加熱する方式である。熱伝 達率が良い金属材料を選択することにより、炉方式と比較して、粉体の高速加 熱と、自己発熱による熱暴走を抑制することが期待できる。商品への展開性を 考慮し、より保磁力を低減し、飽和磁束密度を増加できると考えられる熱プレ ス方式を評価した。

2) 熱プレス機の熱処理条件振り評価

図 3.2-2 は、熱プレス方式によるプロセスフローを示している。上下 2 枚の ヒーターブロックに薄板を介して加圧しながら粉体を加熱する。まず、薄板が 変形しながら、粉体サイズが大きく熱容量が大きいものから順に上側の薄板に 接触し加熱する(STEP1)。次に、ナノ結晶化による自己発熱を薄板が吸熱し、粉体の温度を一定にし、粉体を均一にナノ結晶化する(STEP2)。



図 3.2-2 熱プレス方式によるプロセスフロー

保磁力と飽和磁束密度に影響を与える因子として、①粉体エリア寸法、②薄板の板厚、③加熱温度、④加圧力、⑤昇温時間、⑥加熱保持時間について、それ ぞれの条件の保磁力と飽和磁束密度への影響を評価した。

ナノ結晶化工程の実験手順としては、次の通りである。

i)粉体を薄板(SUS)の上に載せ、粉体が均一になるように、広げる。

ii)薄板で粉体を挟む

iii)熱プレス機にて、粉体に所定の熱処理を実施し、各評価を実施する。

評価で使用した機器としては、保磁力と飽和磁束密度の評価は、振動試料型 磁力計(VSM、PV-M10-5F型、東栄科学産業製)を、熱分析の評価は、示差熱熱 重量計(DTA, TG8120 Rigaku製)を使用した。

また、各評価において、水準振りする条件以外の熱処理条件は、下記標準条件で実施した。

- <標準条件>
- ・粉体:ミキサーミルで粉砕
- ・粉体量:0.5g
- 粉体エリア寸法:60 mm角
- ・薄板の板厚:50µm
- 加熱温度:440℃
- •加圧力:1000N
- ・昇温時間:12s
- •加熱保持時間:12s

次から、各粉砕条件振りした評価結果を述べる。
①粉体エリア寸法依存性評価

粉体を広げたエリアの寸法による保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

· 実験水準

粉体エリア寸法:40mm 角、60mm 角、100mm 角

·評価項目

保磁力、飽和磁束密度

【実験結果】

図 3.2-3 は、粉体エリア寸法と保磁力の関係を、図 3.2-4 は、粉体エリア寸 法と飽和磁束密度の関係を示している。保磁力は、粉体エリア寸法が小さいほ ど保磁力が低減していることを確認したが、いずれの条件も目標値の 720A/m以 下を達成できなかった。飽和磁束密度は、粉体エリア寸法が 100mm 角になると 目標値の 1.7T を下回った。粉体エリア寸法が小さいほどナノ結晶化ができてい ると考えられる。



図 3.2-3 粉体エリア寸法と保磁力



図 3.2-4 粉体エリア寸法と飽和磁束密度

今回得られた粉体エリア寸法による保磁力への影響は、装置の機構から、下 記の通りに考えられる。図 3.2-5 は、熱プレス装置の動きを示している。装置 の機構については、詳細を後述するが、ヒーターブロックが所定の温度で熱膨 張すると、ヒーターブロックの中央部が凸形状となり、平坦度が悪くなること が分かっている。よって、粉体エリア寸法が大きいと、ヒーターブロックの平 坦度の影響により、特にヒーターブロックの外周部では、粉体と薄板がヒータ ーブロックに十分に接触できずに、粉体の温度を一定に制御できないと考えら れる。



保磁力と飽和磁束密度の観点からは、粉体エリア寸法は 40mm 角が良いが、1 回のプレス当たりの粉体処理量が少なくなるため、生産性を考慮し、粉体エリ ア寸法の最適条件を 60mm 角とした。

②薄板の板厚依存性評価

粉体と接触する薄板の厚さによる保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

·実験水準

 ${ { { { { t } { b } { \mu } { m } } } } } }$

・評価項目

保磁力、飽和磁束密度

【実験結果】

図 3.2-6 は、板厚と保磁力の関係を、図 3.2-7 は、板厚と飽和磁束密度の関係を示している。25µm厚品を除き、薄板の厚さが薄いほど、保磁力を低減していることを確認したが、いずれの条件も目標値の 720A/m以下を達成できなかった。また、飽和磁束密度は、300µm厚になると目標の 1.7T を下回っていた。



図 3.2-6 薄板の板厚と保磁力



図 3.2-7 板厚と飽和磁束密度

薄板が薄いほど、薄板がヒーターブロック表面の凹凸や粉体サイズに合わせ て変形、密着しやすいため、粉体全体の温度を均一にし、且つ熱の伝達速度が 速くなると考えられる。図 3.2-8 は、薄板の板厚が 50 μ mと 100 μ mでのヒー ターブロック表面の昇温プロファイルを示している。50 μ m厚での昇温時間が 12 s であるのに対し、100 μ m厚の場合は 25 s となり、大幅に遅くなっているこ とを確認した。尚、25 μ m厚品は、取扱いが難しく、歪みが発生していた。こ の歪みにより、ヒーターブロックとの密着性が悪くなっていたと考えられる。



図 3.2-8 50 µ mと 100 µ mでの昇温プロファイル

保磁力と飽和磁束密度の結果から、板厚は50μmを最適条件とした。

③加熱温度依存性評価

粉体を加熱する温度による保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

・実験水準

加熱温度:400℃~480℃の間で10℃毎に評価

・評価項目 保磁力、飽和磁束密度

【実験結果】

図 3.2-9 は、加熱温度と保磁力の関係を、図 3.2-10 は、加熱温度と飽和磁束 密度の関係を示している。保磁力は、440℃の時が、最も保磁力が低減している ことを確認したが、いずれの条件も目標値の 720A/m以下を達成できなかった。 飽和磁束密度は、420℃未満では、目標値の 1.7T を下回った。440℃未満のもの は、ナノ結晶化が十分ではなく、450℃以上では、結晶が肥大化していると考え られる。



図 3.2-10 加熱温度と飽和磁束密度

図 3.2-11 は、粉砕後及び、400℃~480℃で加熱した粉体の DTA 結果を示して いる。420℃以下の条件では、400℃近傍のナノ結晶形成の発熱ピークがあり、 完全にはナノ結晶化ができていないことが確認できた。



図 3.2-11 粉砕後及び各加熱温度の DTA

保磁力と飽和磁束密度の結果から、加熱温度は、最適条件を440℃とした。

④加圧力依存性評価

粉体ヘプレスする加圧力による保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

・実験水準

加圧力:100N、500N、1000N、2000N、3000N、4000N

・評価項目 保磁力、飽和磁束密度

【実験結果】

図 3.2-12 は、加圧力と保磁力の関係を、図 3.2-13 は、加圧力と飽和磁束密度の関係を示している。加圧力による保磁力の有意差は確認できず、いずれの条件も目標値の 720A/m以下を達成できなかった。飽和磁束密度については、100N から 1000N までは、目標値の 1.7T を下回った。1000N 未満では加圧力が足りず、ナノ結晶化が不足していると考えられる。









飽和磁束密度の結果から、加圧力は、最適条件を1000Nとした。

⑤昇温時間依存性評価

ヒーターブロックの昇温時間による保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

·実験水準

昇温時間:12s、30s

図 3.2-14 は、各条件の昇温プロファイルを示している。



図 3.2-14 昇温プロファイル

·評価項目

保磁力、飽和磁束密度

【実験結果】

図 3.2-15 は、昇温時間と保磁力の関係を、図 3.2-16 は、昇温時間と飽和磁 束密度の関係を示している。昇温時間が速いほど、保磁力を低減していること を確認したが、いずれの条件も目標値の 720A/m以下を達成できなかった。飽和 磁束密度は、両条件で、目標値の 1.7T を満足した。これは、昇温時間が速い方 が、Fe のナノ結晶状態を形成しやすくなっていると考えられる。昇温時間が遅 い場合には、結晶化がゆっくり進むため、結晶が肥大化しやすく、昇温時間が 早い場合は、結晶化が一気に進むため、全体で均一にナノ結晶化しやすくなる と考えられる。







図 3.2-16 昇温時間と飽和磁束密度

保磁力と飽和磁束密度の結果から、昇温時間は、最適条件を12sとした。

⑥加熱保持時間依存性評価

加熱保持時間による保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

·実験水準

加熱保持時間:2s、12s、30s

・評価項目

保磁力、飽和磁束密度

【実験結果】

図 3.2-17 は、加熱保持時間と保磁力の関係を、図 3.2-18 は、加熱保持時間 と飽和磁束密度の関係を示している。保持時間が長くなるほど保磁力を低減で きていることを確認したが、いずれの条件も目標値の 720A/m以下を達成できな かった。飽和磁束密度は、全ての条件で目標値の 1.7T を満足していることを確 認した。



図 3.2-17 加熱保持時間と保磁力



図 3.2-18 加熱保持時間と飽和磁束密度

保磁力と生産性から、加圧保持時間の最適条件を、12sとした。

以上の評価結果から、粉体を熱プレスする条件としては、粉体エリア寸法 60mm 角、薄板の板厚 50 µm、加熱温度 440℃、加圧力 1000N、昇温時間が 12s、加圧 保持時間 12s が最適条件であることを確認した。

次に、さらなる改善として、粉体の粒径に着眼した検討を実施した。具体的 には、粒径が異なると熱プレスにおける熱伝達速度や熱容量が異なるため、同 ーの熱プレス条件では、均一なナノ結晶を形成することができない。そこで、 粉体を追加分級し、大粒子と小粒子を別々に分け、それぞれの粒径に適した熱 プレス条件で加熱し、最後に混合することを検討した。

【実験内容】

·実験水準

- i) 追加分級無し (Reference)
- ii) 大粒子(粒径(D50%)約53µm)のみ
- iii) 小粒子(粒径(D50%)約12µm)のみ
- iv) 大粒子と小粒子の混合 粒径 (D50%) 14 µ m

v) 大粒子と小粒子の混合 粒径 (D50%) 19 µ m





·評価項目

保磁力、飽和磁束密度

【実験結果】

図 3.2-20 は、粒径 (D50%) と保磁力の関係を、図 3.2-21 は、粒径 (D50%) と飽和磁束密度の関係を示している。保磁力は、 i) 追加分級無しの 1048A/m と比較し、iv) 大粒子と小粒子の混合 粒径 (D50%) 14 μ mでは、912A/m とな り、保磁力を 10%低減することができた。さらに、粒径を調整した、v) 大粒子 と小粒子の混合 粒径 (D50%) 19 μ mでは、保磁力が 670A/m まで低減し、保磁 力を 25%低減することができた。飽和磁束密度は、混合したiv) とv) のそれ ぞれの条件で、目標値である飽和磁束密度 1.7T を満足していることを確認した。





以上のナノ結晶化工程の検討により、粉体の保磁力の目標値 720A/mと同等レベルまで達成できていることを確認した。安定した品質の確保のためには、さらなる保磁力の低減が必要である。

3.2.2. 2 次 TEG 検証(成形品)

図 3.2-22 は、熱プレスした粉体について、粒径(D50%)を振った成形品について、損失の評価結果を示す。粒径(D50%)20 μ m以下において、損失の目標値 80kW/m3 以下と同等レベルまで達成できていることを確認した。安定した品質の確保のためには、保磁力の低減によるさらなる損失の低減が必要である。



図 3.2-22 成形品の損失

3.2.3. 熱処理工法検証機の検討

保磁力を低減するには、粉体に均一に、迅速に熱を伝達することが重要である。そこで、①ヒーターブロックの温度ばらつき低減、②ヒーターブロックの 平坦性改善、③高速昇温化を検討した。

①ヒーターブロックの温度ばらつき低減

粉体をプレスするエリア 60mm角内で温度を測定すると、面内温度ばらつき は、上部ヒーターブロックで 14℃、下部ヒーターブロックで 11℃であった。 この面内温度ばらつきの原因を調査したところ、装置内のファンの対流によ る影響を受けていることが判明した。図 3.2-23 は、従来と新規の熱プレス機の 装置内のファンの配置を示している。



図 3.2-23 熱プレス機のファンの配置

ファンは、装置内のモーターの高温化による故障を防ぐために、モーターを 冷却する目的で配置されている。図 3.2-23 (a) に示すように、装置筐体の片側 に設置されたファンから入った空気が装置内で循環し、その気流がヒーターブ ロックに当たることで、温度ばらつきが発生していた。そこで、装置内の空気 の流れを制御し、ヒーターブロックに気流が当たらない機構にした。図 3.2-23 (b) に示すようなファンの配置均等化(両側配置)、ファン動作の変更(吸い

込み式⇒吐き出し式)などのファン機構の適正化を実施し、気流が当たらない 機構にした。本改善により、温度ばらつきは、上部ヒーターブロックで4℃、下 部ヒーターブロックで2℃となり、大幅に改善した。

②ヒーターブロックの平坦性改善

図 3.2-28 は、従来の熱プレス機のヒーターブロックの駆動機構を示している。 ヒーターブロックのコーナー部が4本のガイド軸で固定されている。ヒーター ブロックが所定の温度に加熱され、熱膨張すると、4本のガイド軸によりヒー ターブロックが規制され、ヒーターブロックの中央部が凸形状となっていた。



図 3.2-24 従来の熱プレス機のヒーターブロックの駆動機構

図 3.2-25 は、新規熱プレス機のヒーターブロックの駆動する軸の関係を示し ている。新規熱プレス機では、ヒーターブロックを駆動するガイド軸が無い構 造に変更することで、ヒーターブロックによる熱膨張が規制されない構造とな り、平坦度を確保できるように改善した。また、4本のガイド軸が無いことに より、加圧によりヒーターブロック同士がならうようになり、ヒーターブロッ ク同士の平行度の改善も期待できる。



図 3.2-25 新規熱プレス機のヒーターブロックの駆動機構

③高速昇温化

図 3. 2-26 は、従来の熱プレス機のプロセスフローを示しており、下記の(i) から(iii)の流れで粉体を加熱する。

i)下部ヒーターブロックの上に、薄板に挟まれた粉体を配置

- ii)上部ヒーターブロックが下降、薄板と粉体を加圧
- iii)上部ヒーターブロックが上昇し、加圧終了



図 3.2-26 従来の熱プレス機のプロセスフロー

ここで、従来の熱プレス機では、下部ヒーターブロック⇒上部下部ヒーター ブロックの順で、粉体が接触する機構のため、昇温速度を速くすることができ なかった。そこで、新規熱プレス機では、遮蔽板の追加と、上部下部ヒーター ブロックの同時駆動の2点について改善を実施した。図3.2-27は、新規熱プレ ス機のプロセスフローを示しており、次のようになる。

- i) 下部ヒーターブロック上方に、遮蔽板がある状態で、遮蔽板上方に薄板 に挟まれた粉体を配置
- ii) 遮蔽板が待避すると共に、上部ヒーターブロックの下降と下部ヒーター ブロックの上昇が同時に実施され、薄板と粉体を加圧
- iii)上部ヒーターブロックの上昇と下部ヒーターブロックの下降が同時に実施され、加圧終了。



図 3.2271 新規熱プレス機のプロセスフロー

遮蔽板があることにより、下部ヒーターブロックの熱が加圧直前まで付与さ れず、また、上部下部のヒーターブロックの同時駆動により、粉体を一気に加 熱することが可能となった。上記2点の改善により、従来の熱プレス機では、 昇温速度が 12s であったが、新規熱プレス検証機では、昇温速度を 3s に短縮で きることを確認した。

3.2.4. 工法検証機による特性検証

新規熱プレス機において、特に改善効果が見込める、①粉体エリア寸法、② 昇温時間、③粉体量について、保磁力と飽和磁束密度への影響を評価した。 ナノ結晶化工程の実験手順としては、次の通りである。

i)粉体を薄板(SUS)の上に載せ、粉体を均一になるように、広げる。

ii)薄板で粉体を挟む

iii)熱プレス機にて、粉体に所定の熱処理を実施し、各評価を実施する。

評価で使用した機器は、保磁力の評価は、自動計測保磁力計(K-HC1000型 東 北特殊鋼株式会社製)を、飽和磁束密度の評価は、振動試料型磁力計(VSM、

PV-M10-5F型、東栄科学産業製)を、熱分析の評価は、示差熱熱重量計

(DTA, TG8120 Rigaku 製)を使用した。

また、各評価において、水準振りする条件以外の熱処理条件は、下記標準条件で実施した。

<標準条件>

・粉体:サイクロンミルで粉砕

- ・粉体量:1g
- ・粉体エリア寸法:90 mm角
- ・薄板の板厚:50 μm
- 加熱温度:450℃
- ・加圧力:1000N
- •昇温時間:3s
- ・加熱保持時間:10s

次から、各粉砕条件振りした評価結果を述べる。

1)粉体エリア寸法依存性評価

粉体エリア寸法による保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

・実験水準

粉体エリア寸法:60、90、120mm角

・評価項目

保磁力、飽和磁束密度

【実験結果】

図 3.2-28 は、粉体エリア寸法と保磁力を、図 3.2-29 は、粉体エリア寸法と 飽和磁束密度の関係を示している。従来の熱プレスと同様に、粉体エリア寸法 が小さい方が保磁力を低減できることを確認した。また、全ての条件で、保磁 力の目標値の 720A/m以下を達成した。飽和磁束密度は、若干ではあるが、120mm 角では、飽和磁束密度が低くなっていると考えられる。



図 3.2-28 粉体エリア寸法と保磁力



図 3.2-29 粉体エリア寸法と飽和磁束密度

保磁力、生産性の観点から、粉体エリア寸法の最適条件は、90mm 角とした。 従来の熱プレス機の 60mm 角と比べ、生産性を向上できることを確認できた。

②昇温時間依存性評価

昇温時間による保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

·実験水準

昇温時間:3s、11s、17s

図 3.2-30 は、各昇温時間での温度プロファイルを示している。



・評価方法

保磁力、飽和磁束密度

【実験結果】

図 3.2-31 は、昇温時間と保磁力の関係を、図 3.2-32 は、昇温時間と飽和磁 束密度の関係を示している。従来の熱プレス機と同様に 11s 以下で保磁力が低 減できていることを確認できた。11s と 3s では有意差を確認できなかった。 飽和磁束密度は、全ての条件で、目標値の 1.7T 以上を満足した。







図 3.2-32 昇温時間と飽和磁束密度

次に、追加評価として、昇温時間 3s と 11s で、粉体量による保磁力への影響 を評価した。 【実験内容】

·実験水準

昇温時間:3s、11sのそれぞれに対し、粉体量を振った。

粉体量 :1g、2g、5g、10g

※粒径 (D50%) は、22.56 µ m で実施

・評価方法

保磁力、飽和磁束密度

【実験結果】

図 3.2-33 は、昇温時間、粉体量と保磁力の関係を、図 3.2-34 は、昇温時間、 粉体量と飽和磁束密度の関係を示している。昇温時間 11s と比較し、昇温時間 3s は粉体量の増加に対する保磁力の増加が緩やかになっている。また、飽和磁 束密度は、昇温時間 3s では、全ての条件で目標値の 1.7T 以上であるが、昇温 時間 11s では、粉体量が 2g を超えると目標値の 1.7T を下回っている。



図 3.2-33 粉体量と保磁力



図 3.2-34 粉体量と飽和磁束密度

以上の保磁力の結果から、昇温時間を 11s から 3s に短縮することによる効果 を確認できた。

③粉体量依存性評価

まず、従来の熱プレス機と新規熱プレス機で、材料投入量による保磁力への 影響を比較評価した。

【実験内容】

·実験水準

新規熱プレス機 粉体量:1g、2g、5g
 従来の熱プレス機 粉体量:0.5g、1g、2g
 ※粉体エリア寸法は、90mm角で固定とし、粉体量の変化に伴って、

粉体厚さが変化する。

※粉体:ミキサーミルで粉砕

・評価項目

保磁力、飽和磁束密度

【実験結果】

図 3.2-35 は、粉体量と保磁力の関係を、図 3.2-36 は、粉体量と飽和磁束密度の関係を示している。従来の熱プレス機では、粉体量の増加により、保磁力が増加するが、新規熱プレス機では、5gまで粉体量を増加させても、低い保磁力を維持できた。粉体量 2gで比較すると、新規熱プレス機(保磁力 1074A/m)では、従来の熱プレス機(保磁力 1365A/m)と比較し、保磁力を 21%低減できていることを確認した。また、飽和磁束密度は、従来の熱プレス機は、粉体量の増加により、目標値の 1.7T を下回ったが、新規熱プレス機は、目標値を全ての条件で満足することを確認した。



図 3.2-35 粉体量と保磁力



図 3.2-36 粉体量と飽和磁束密度

さらに、新規熱プレス機において、粉体量を 10g よりさらに増やした場合の 保磁力への影響を評価した。

【実験内容】

·実験水準

·粉砕後(参考)

・新規熱プレス機での熱処理後 粉体量:1g、2g、5g、10g、30g、50g
 ※粉体エリア寸法は、90mm角で固定とし、粉体量の変化に伴って、
 粉体厚さが変化する。

※粉体:サイクロンミルで粉砕

·評価項目

保磁力

【実験結果】

図 3.2-37 は、粉体量と保磁力の関係を示している。粉体量が 10g までは、低い保磁力を維持できていることを確認できた。粉体量が 30g になると保磁力が 大幅に増加する。



図 3.2-37 粉体量と保磁力

図 3.2-38 は、薄帯、粉砕後、熱処理した粉体量別の DTA 結果を示している。 熱処理後の粉体量 1g と 10g は、400℃近傍のピークが消失し、500℃近傍のピー クが残存している。つまり、ナノ結晶化できていることが確認できる。しかし、 熱処理後の粉体量 30g と 50g では、400℃近傍のピークが消失し、500℃近傍の ピークが殆ど残っていない。つまり、ナノ結晶化による自己発熱で、熱暴走し、 結晶が肥大化したと考えられる。これは、粉体量が 30g 以上になると粉体が厚 いため、粉体中心部の自己発熱の熱を薄板で吸熱できなくなったと考えられる。



以上の結果から、ヒーターブロックの温度ばらつき低減と平坦度改善、高速 昇温化により、目論見通り、低い保磁力を維持し、粉体量の多量化を実現でき た。

さらに、新規熱プレス機で熱処理した粉体について、成形品の損失を評価したところ、損失は 60kW/m3 であり、成形品の損失目標値 80 k W/m3 以下を達成していることを確認した。

3.2.5. CO2 排出量の検証

ナノ結晶化工程における CO2 排出量は、下記手順により導出した。 熱プレス装置の消費電力量を実測し、投入した粉体の量、歩留、CO2 排出係数を 用い、粉体から軟磁性合金粉体 1kg を生成するプロセスの CO2 排出量を算出。 消費電力量(0.03kwh)÷粉体(0.01kg)÷歩留(90%)×CO2 排出係数(0.512kg/kWh) =1.7kg-CO2/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、ナノ結晶化工程より、粉体から軟磁性合金粉体 1kg を生成するプロセスの CO2 排出量は、1.7kg-CO2/kg-M となることを確認した。

3.3. 絶縁膜形成工程の検証結果

ナノ結晶化した粉砕粉のような粒径・形状がバラバラで表面が凸凹した粒子 を成形すると、内部抵抗が低い粒子に電流が集中し耐圧が低下する。また、耐 圧向上のために粉体粒子表面に形成する絶縁膜は、結晶化が進行しない温度範 囲(200℃以下)で形成する必要があることが確認できている。本事業では、200℃ 以下で均一の絶縁膜を形成する工法を検証した。尚、検証は次の4つのステッ プで実施した。

ステップ1:1次 TEG 検証(粉体)

1) 粉体に絶縁膜を形成するための絶縁膜形成方式の調査とベン チマーク 2) ベンチマーク結果で選択した絶縁膜形成方式による粉体評価 ステップ2:2次 TEG 検証(成形品)

1次 TEG 検証で得られた粉体を用いた圧粉成形品の評価

ステップ3:絶縁膜形成工法検証機の検討

1次 TEG 検証及び2次 TEG 検証で得られた結果を基にした、工法 検証機の検討

ステップ4:工法検証機による特性評価 工法検証機を用いた粉体及び圧粉成形品の評価

3.3.1. 1次 TEG 検証(粉体)

1) 絶縁膜形成方式の調査とベンチマーク

粉体粒子表面に薄膜を形成する方法としては、気相で行う方法、液相で行う 方法、固相で行う方法の3つに分けることができる。気相中で成膜を行う方法 としては、例えば、熱処理やCVD(Chemical Vapor Deposition:化学気相成長法) などがある。また、液相中で成膜を行う方法としては、例えば、ゾルーゲル法や 沈殿法などがある。また固相で成膜を行う方法としては、例えば、メカノケミ カル法などがある。

図 3.3-1 は、各種の絶縁膜形成方式と成膜時の温度を示している。



図 3.3-1 絶縁膜形成方式の種類

絶縁膜を形成する軟磁性合金薄帯の粉体は、200℃以上に加熱すると結晶化が 進行し、特性の劣化が起こる材料である。図 3.3-1 に挙げた各種の絶縁膜形成 方式のうち、成膜時のプロセス温度が 200℃以下であるという制約条件のもと、 利用可能な方法は青色の点線で囲んだ枠内のものに限られる。

これらの絶縁膜形成方式の中からさらに絶縁膜形成実験の実施候補の絞込み を行った。青色の点線で囲まれた方式のうち、気相中で成膜を行える方式とし ては、①粉体 ALD (Atomic Layer Deposition:原子層成長法)、②バレルスパ ッタがあり、液相中で成膜を行う方式としては、③ゾルーゲル法、④沈殿法、⑤ リン酸化成処理があり、固相反応を用いた成膜方法としては、⑥メカノケミカ ル法がある。各絶縁膜形成方式の概要としては、下記の通りである。

①粉体 ALD

粉体粉体表面に対して1原子層ずつ膜を堆積していく手法であり、膜厚の制 御性に優れ、数 nm 以上の非常に薄く、膜厚の均一性が高い膜を形成することが できるという利点がある。しかしながら、成膜速度が遅く、量産を考慮した時 に生産性や製造コストの点で課題がある。

②バレルスパッタ

通常のスパッタ装置がシリコンウェハなど、平面状の試料表面にしか成膜を 行えないのに対して、粉体試料を中に入れた担体を回転させることで、粉体を 攪拌した状態で成膜を行うことができるスパッタ装置である。しかしながらこ の装置は装置構成として磁石を使用しており、本報告で使用した Fe を多く含有 している軟磁性粉体の場合は、磁石に引き付けられてしまう。このため粉体の 攪拌がうまく行われず、粉体表面への均一な絶縁膜成膜を行うことが困難であ る。

よって、上記①、②の理由から、気相中での成膜方式は今回の検討候補から除 外した。

③ゾル-ゲル法

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が起こし、 その後、金属アルコキシドと粉体表面の間で脱水縮合反応が起こることで粉体 粒子表面に膜を形成する手法である。特殊な装置や薬品を必要としない簡便な 方法である。

④沈殿法

凝集剤を添加することで、溶媒中の浮遊物を沈殿させる方法である。この沈 殿反応を利用して粉体粒子表面に膜を形成することもできる。この方法は短時 間で大量に処理できるという利点があるが、溶媒と沈殿物の分離工程が必ず必 要になるため、絶縁膜形成における処理工程数が増加し、製造コストの点で課 題がある。

⑤リン酸化成処理

リン酸塩を用いた表面処理方法であり、鉄や亜鉛の表面に化学反応により、 塗装下地皮膜、防錆皮膜、摺動皮膜などを形成する目的で行われる。高い防錆 性能を持つ皮膜が形成可能であるが、脱脂→洗浄→リン酸塩による処理→洗浄 →乾燥と、処理にかかる工数が多く、生産性や製造コストの面で課題がある。

上記③、④、⑤から、液相中での成膜方式としては、ゾル-ゲル法が最も簡便で、 コストもかからない方法であり、この方法を今回の検討候補とした。

⑥メカノケミカル法

この方法では表面に皮膜を形成したい粉体粒子(母材)と、皮膜の材料とな る粉体粒子(皮膜粒子)を装置内に投入する。それから粉体粒子を投入した装 置内の容器部分を高速で回転させて、母材表面に皮膜粒子を衝突させることで 母材表面に皮膜粒子を物理的に吸着させて膜を形成する手法である。気相や液 相の手法と比較して非常に短時間での処理が可能である。また、薬品を使用し ないため、成膜後の乾燥工程が不要である、などの利点がある。

この方式も処理プロセスが簡便であること、と乾燥コストが不要になる点から今回の検討候補とした。

表 3.3-1 は、各種の絶縁膜形成方式の比較結果を示している。上述のとおり、 いくつかの成膜方式の中から特に有望な方法として、液相におけるゾル-ゲル法 と固相におけるメカノケミカル法の2つの方式を絶縁膜形成のための検討を行 う工法として絞り込んだ。また、各工法で形成する絶縁膜の種類としては、コ ストや生産性の面から検討を行い、ゾル-ゲル法ではSi02 膜を、メカノケミカ ル法では A1203 膜をそれぞれ選択した。

72

	今回検討		今回検討	
	液相 ゾル-ゲル法	液層 リン酸化成処理	固相 メカノケミカル	気相 バレルスパッタ
処理方式	湿式	湿式	乾式	乾式
膜形成方法	加水分解	リン酸化成処理	メカノケミカル	スパッタリング
絶縁膜	Si02	リン酸塩被膜	A1203,	A1203,
材料	TEOS (オルト珪酸 テトラエチル) アンモニア水 エタノール	リン酸塩溶液	A1203微粒子	A1203微粒子
温度	乾燥100℃	50∼60℃	180°C	室温~200℃
膜厚	10~100nm	1um以上	数10~数100nm	数10~数100nm
絶縁性	高	中	高	高
コスト	低	中	低	中
生産性	〇(量産装置が存在)	△(ライン構築必要)	〇(量産装置が存在)	× (量産装置が存在せ ず)
長所/短所	安価・衛便/乾燥工程が 別途必要でコスト増加	高い防錆性能/ 工程数が増えコスト増加、 厚い膜のため磁気特性低 下	乾式成膜で乾燥工程不要 金属酸化物成膜容易	乾式成膜、金属酸化物成 膜容易/鉄粉がマグネッ トに吸着するため磁性体 の処理は困難

表 3.3-1 絶縁膜形成方式の比較

次から、ゾルーゲル法とメカノケミカル法の成膜評価について述べる。

2) 各種絶縁膜形成方式による粉体への成膜評価

①ゾル-ゲル法による Si02 膜の形成

ゾルーゲル法により、軟磁性体粉体上に SiO2 膜を形成する評価を行った。 最初に、ゾルーゲル法における SiO2 膜の形成反応について簡単に説明する。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。

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

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。

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。

 $2HO-Si(OC2H5)3 \rightarrow (C2H5O)3Si-O-Si(OC2H5)3 + H2O$

この反応により0-Si-0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。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0H基との間でも脱水縮合を 起こし、Si02膜が形成される。

図 3.3-2 は、ゾルーゲル法による Si02 膜形成実験のフローを示している。



図 3.3-2 ゾル-ゲル法による Si02 膜形成実験フロー

図 3.3-2 のとおり、軟磁性体粉末に対して、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 SiO2 の被膜を形成した。

ここで、ゾルーゲル法によるSi02の成膜の粉体状態の検証としては、加水分解、 脱水縮合反応を起こすi)攪拌時間依存性とii)TEOS量依存性の2点について評 価を行った。尚、軟磁性体粉末上へのSi02膜の形成状態を確認するため、ゾルー ゲル法によりSi02膜を形成、乾燥した後の軟磁性体粉末の成型を行い、それぞ れの試料について、三菱ケミカルアナリテック社製ハイレスタ-UP MCP-HT450を 用いて、試料表面の抵抗値の測定を行った。

i)攪拌時間依存性評価

攪拌時間による抵抗率への影響を評価した。

【実験内容】

・実験水準

攪拌時間:1h、1.5h、2h、3h

・評価項目

抵抗率

【実験結果】

図3.3-3は、攪拌時間と抵抗値の関係を示している。攪拌時間を1時間から3時間まで延ばすと、試料表面の抵抗率が1.0e⁴ Ω ・cmから1.0e¹¹ Ω ・cmまで増加していることが確認できた。また、攪拌時間2時間で表面抵抗率が飽和していることが確認できた。攪拌時間が1時間から2時間の間で表面抵抗率が急激に上昇していることから、この間の攪拌時間でSi02膜の形成反応が進行していると考えられる。



図3.3-3 攪拌時間と抵抗値

ii) TEOS量依存性評価

TEOS量による抵抗率への影響を評価した。

【実験内容】

- 実験水準
 TEOS量: 0.01g、0.2g、0.5g、1g、2g、3g、4g、5g、10g
- ・評価項目

抵抗率

【実験結果】

図3.3-4は、TEOS量と抵抗率の関係を示している。TEOS量を0.01g~10gまで増加させていくと、試料表面の抵抗率が1.0e⁴ Ω ・cmから1.0e¹¹ Ω ・cmまで増加していることが確認できた。また、TEOS量が3g~4gの付近で抵抗率が飽和していることが確認できた。TEOS量が0.5g~2gの間で表面抵抗率が急激に上昇していることから、この間のTEOS量でSi02膜の形成反応が促進されると考えられる。



図3.3-4 TEOS量と抵抗値

次に、高解像度SEMにより、TEOS量を1g~5gまで変化させた時の軟磁性体粉末 表面に形成されたSiO2膜の膜厚評価を行った。その結果を図3.3-5に示す。



(a) TEOS量 1g



(b) TEOS量 2g



(c) TEOS量 5g図3.3-5 軟磁性体粉末表面のSiO2形成膜厚の高解像度SEM写真

表 3.3-2 は、高解像度 SEM による膜厚測定結果をまとめたものである。
	1	2
(a)TEOS量 1g	8	20
(b)TEOS量 2g	51	12
(c)TEOS量 5g	71	13

表 3.3-2 軟磁性体粉末表面の Si02 膜厚(単位:nm) (高解像度 SEM)

この断面 SEM 結果より、ゾルーゲル法により、軟磁性体粉末表面には SiO2 膜が確かに形成されていることが確認できた。また、TEOS 量を増加させることで、 ばらつきはあるものの、SiO2 膜厚を制御できることが確認できた。図 3.3-6 に は TEOS 添加量 5g の場合の軟磁性粒子の断面 SEM 写真と EDX 写真の Si マッピン グ像を示す。また、図 3.3-7 にこの SiO2 膜上における各種元素のスペクトル強 度比率を示す。



図 3.3-6 TEOS 添加量 5g の場合の軟磁性粒子の断面 SEM 写真と EDX 写真の Si マッピング像



図 3.3-7 軟磁性体粉末表面の Si02 膜のスペクトル強度比率

図 3.3-6 の Si マッピング像(Si Kal)では、緑色の部分が Si 元素の位置を 示している。この図を見ると、軟磁性粒子の表面に沿って緑色の Si 元素が確認 できることから、表面には Si02 膜が形成されていることが確認できる。また、 図 3.3-7 はこの Si02 膜について各種元素のスペクトル強度比率を測定した結果 である。ここで、Fe(鉄)のピークは軟磁性粒子から発生したものである。残る Si(珪素)と0(酸素)のピークにおいて、0 のピーク強度が Si のピーク強度の 2 倍以上となっている。この結果も、今回の実験において、軟磁性粒子表面に Si02 膜が形成していることを示唆している。

②メカノケミカル法による A1203 膜の形成

この方法では表面に皮膜を形成したい粉体粒子(母材)と、皮膜の材料となる粉体粒子(皮膜粒子)を装置内に投入する。それから粉体粒子を投入した装置内の容器部分を高速で回転させて、母材表面に皮膜粒子を衝突させることで 母材表面に皮膜粒子を物理的に吸着させて膜を形成する手法である。他の気相 や液相の手法と比較して非常に短時間での処理が可能である。メカノケミカル 法による成膜手段としては、奈良機械製作所製ハイブリダイゼーションシステム装置 NHS-0 型を用いて、軟磁性体粉末表面への A1203 膜の形成を行った。

ここでハイブリダイゼーションシステム装置について簡単に説明する。ハイ ブリダイゼーションシステム装置は、物理的手法を用いて、乾式で微粉体の表 面を微粉体で表面改質して、機能性複合粉体材料を形成する装置である。高速 回転するローター、ステーター、および循環回路で構成されており、装置内に 投入された被処理物は、これらの作用により装置内に分散されながら衝撃力を 主体に、粒子の相互作用 も含めて圧縮、摩擦、剪断力等の機械的作用を繰り返 し受け、短時間(~10分)で固定化、成膜化、球形化等の処理が均一に行われて、 捕集器で回収される。このようにして、母粒子(今回は磁性粒子)表面に微粒 子(今回はA1203)を固定化することができる。図 3.3-8 は、装置の外観写真を 示している。



図 3.3-8 ハイブリダイゼーションシステム装置外観写真 出典 株式会社奈良機械製作所ホームページ http://www.nara-m.co.jp/product/particle/nhs.html

メカノケミカル法による A1203 膜の形成の粉体状態での検証としては、A1203 粉末の重量比率による被覆量への影響を評価した。

【実験内容】

·実験水準

軟磁性体粉末に対するA1203粉末の重量比率:5%、10%、15%、20% ※軟磁性体粉末の平均粒径:10µm

A1203粉末:高純度化学研究所製 平均粒径0.3µm

・評価項目

抵抗率

【実験結果】

図 3.3-9 は、成膜処理後の軟磁性体粉末表面の SEM 写真を示している。 軟磁性体粉末に対する A1203 粉末の重量比率を増加させるに従い、軟磁性体粉 末表面を覆う A1203 の量が増加していることが確認できた。



図 3.3-9 A1203 膜成膜処理後の軟磁性体粉末表面の SEM 写真

3.3.2. 2次 TEG 検証(成形品)

ここまでの実験で作製したゾルーゲル法により、表面に SiO2 膜を形成した軟磁性体粉末、および、メカノケミカル法により、表面に Al2O3 膜を形成した軟磁性粉体のそれぞれについて、絶縁耐圧測定試験用の試料片を作製した。そして、この試料片に対して、エーディーシー社製デジタル超高抵抗/微少電流計5451を用いて耐圧測定を行った。

【実験内容】

·実験水準

①Reference 絶縁膜なし
②ゾルーゲル法 TEOS量5g Sample1
③ゾルーゲル法 TEOS量5g Sample2
④ゾルーゲル法 TEOS量5g Sample3
⑤メカノケミカル法 A1203粉末の重量比率5%
⑥メカノケミカル法 A1203粉末の重量比率10%

⑦メカノケミカル法 A1203粉末の重量比率15%※②~④は同一条件で作製。

・評価項目

耐圧

【実験結果】

図 3.3-10 は、各条件における耐圧を示している。



図 3.3-10 ゾルーゲル法またはメカノケミカル法と耐圧

②~④ではゾルーゲル法により同じ条件で SiO2 膜を形成しているにも関わら ず、耐圧の値は 700V/mm を超える高耐圧から、200V/mm 以下の低耐圧まで、大き くばらついている。これは TEOS を攪拌して、加水分解、脱水縮合反応を発生さ せる時に、ビーカー内の溶液と軟磁性体粉末を、スパチュラ(薬さじ)を用いて 手動で 15 分毎に攪拌していることが原因で発生したものだと考えられる。従っ て、ゾルーゲル法による SiO2 膜の形成においては安定して均一な膜厚の SiO2 膜 形成が行えるプロセスの確立が次の課題となる。図 3.3-11 に②ゾルーゲル法 TEOS 5g の条件(耐圧 762V/mm)で成膜した成形品の断面 SEM 写真を示す。



図 3.3-11 ゾルーゲル法 TEOS 5g(条件②)で成膜後の成形品の断面 SEM 写真

図 3.3-11 では、粒子サイズの大きい軟磁性粒子よりも粒子サイズの小さい軟磁性粒子の割合が多くなっている、この場合、成形品の高さ方向に占める絶縁膜の厚さとしては厚くなり、結果として耐圧の値は大きくなると考えられる。

また、⑤~⑦のハイブリダイゼーション装置を用いたメカノケミカル法によ 9 A1203 膜を形成した場合は、耐圧が、いずれも低い値であった。これは、図 3.3-9 の処理後の表面 SEM 写真から考察すると、メカノケミカル法では軟磁性体 粉末表面を完全に覆う緻密な絶縁膜を形成することが困難であるため、A1203 膜 がうまく形成されていない領域を起点とした絶縁破壊が起こったためだと考え られる。図 3.3-12 は、図 3.3-10 に示す⑦メカノケミカル法 A1203 15%(耐圧 23.3V/mm)の条件で成膜した成形品の断面 SEM 写真を示している。



①倍率 1000 倍



②倍率 5000 倍 図 3.3-12 メカノケミカル法 A1203 15%(条件⑦)で成膜後の成形品の 断面 SEM 写真

軟磁性粒子が A1203 膜によって被覆されていることが確認できる。しかし、 倍率を拡大して観察してみると、軟磁性粒子表面を被覆できていない部分が存 在していることが分かった。この結果は、図 3.3-9 の表面 SEM 写真の結果とも 一致しており、メカノケミカル法による A1203 成膜の場合には、軟磁性粒子表 面を、絶縁膜で完全には被覆できていないことが、成形品において低い耐圧を 引き起こした原因だと推測している。

以上の結果から、メカノケミカル法で形成した A1203 膜による耐圧の確保は 困難であると判断し、ゾルーゲル法による Si02 膜の形成に絞りこみ、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することを 目標とした。

3.3.3. 絶縁膜形成工法検証機の検討

ゾルーゲル法により軟磁性体粉末表面に Si02 膜を形成できることが確認でき たが、その Si02 膜厚は不均一であると推測され、耐圧にも大きなばらつきが発 生していた。そこで安定して高い耐圧を得られる Si02 膜形成プロセスの開発が 次の課題となる。

この耐圧ばらつきを抑制するためのプロセス開発において、3 点の大きな検討 を実施した。1 点目は遠心分離機の導入である。ゾルーゲル法において、溶液中 で形成される Si02 は、必ずしも軟磁性体粉末表面に結合するわけではなく、化 学種同士の間で脱水縮合反応が起こり結合して、シリカ粒子として析出するも のも存在する。これをここでは仮に Si02 残渣と呼ぶことにする。この Si02 残 渣が増加すると、シリカ粒子自体は絶縁体であるため耐圧は向上すると推測さ れる。しかし、成型した時の単位体積あたりの磁性粒子の割合(充填率)は低 下するため、磁気特性は低下してしまう。また、発生する Si02 残渣の量によっ ても耐圧のばらつきが大きく変動すると考えられる。このため、できるだけ、 ゾルーゲル法による Si02 膜形成後の Si02 残渣は除去しておくことが望ましい。

2点目は自動攪拌機の導入である。前述のとおり、同じ成膜条件でSiO2膜を 形成したにも関わらず、その耐圧が大きく変動した。この現象の一因として、 ゾルーゲル法における攪拌を手動で行っていたため、加水分解と脱水縮合反応が 起きる状態が毎回、一定ではなかったことが挙げられる。従って、安定な状態 での反応を起こし、均一なSiO2膜を形成するために、現状のスパチュラ(薬さ じ)を用いた手動の攪拌から、攪拌機を用いた自動攪拌への工程変更を検討する こととした。

3点目は超音波洗浄機の導入である。磁性体粉末は凝集しやすい材料であるため、ゾルーゲル法によるSiO2成膜工程において、個々の粒子ではなく、複数の 粒子が凝集した塊に対してSiO2膜を成膜してしまう恐れがある。この場合、磁 性体粒子が凝集した塊の外側にしかSiO2膜が被覆されず、内側の粒子にはSiO2 膜が被覆されないため、耐圧の低下が懸念される。そこで、ゾルーゲル法による SiO2成膜工程において、攪拌機による攪拌の実施に加えて、超音波洗浄機によ る超音波の印加による粒子の分散を検討することにした。

3.3.4. 工法検証機による特性検証

1) 遠心分離機の導入

遠心分離機を用いて Si02 残渣の除去を検討した。遠心分離機としては、Sigma laborzentrifugen 社製テーブルトップ高速冷却遠心機 3K30C を使用した。 図 3.3-13 は、遠心分離機の外観写真を示している。



図 3.3-13 テーブルトップ高速冷却遠心機 3K30C (Sigma laborzentrifugen 社製) 【実験内容】

·実験水準

①遠心分離なし

②8000回転/分の条件で10分間の遠心分離

・評価項目 断面 SEM 観察、耐圧

【実験結果】

ゾルーゲル法により TEOS 10g を用いて SiO2 膜を形成した後、乾燥を行う前の 溶液を遠沈管に移して、遠心分離を行った。遠心分離実施後の遠沈管の写真を 図 3.3-14 に示す。遠心分離処理後の遠沈管を確認すると、比重の大きな軟磁性 粉末の黒色の層が底に堆積し、その上に比重の軽い SiO2 残渣の白色の層が堆積 していることが分かる。従って、遠心分離処理を行うことで SiO2 残渣の層を分 離して取り除くことができることが確認できた。



図 3.3-14 遠心分離実施後の遠沈管の写真

また、図 3.3-15 に同一の条件で Si02 膜を形成した後、乾燥前に遠心分離を 行わなかった試料と、8000 回転/分の条件で 10 分間の遠心分離を行った試料の 成形品の断面 SEM 写真を示す。



図 3. 3-15 遠心分離処理の有無による成形品試料の断面 SEM 写真の比較

①遠心分離なしの図中、黄色の矢印で示された粒子間の灰色の領域は Si02 残 渣の領域を表している。これを拡大すると、丸い Si02 粒子が多数析出している ことが確認できる。また、適切な条件で遠心分離処理を行うことで②遠心分離 ありのように、Si02 残渣を除去することが可能となることが確認できた。さら に、①遠心分離なしの場合の成形品試料の充填率は 49.3%, 一方で、②遠心分離 ありの場合の成形品試料の充填率は 81.3%となり、充填率が大きく向上した。こ のことから、ゾルーゲル法による Si02 膜形成後の遠心分離処理工程の追加によ り、磁気特性を大きく改善することができると推測される。

次に、同じ条件でSi02 膜形成した軟磁性体粉末について、遠心分離処理の有 無による耐圧への影響を調べた結果を図 3.3-16 に示す。

TEOS 10g を添加して SiO2 膜形成した場合の、遠心処理の有無による成形品試料の耐圧の比較評価結果である。この結果を見ると、遠心分離処理により SiO2 残渣が除去されたため、耐圧が約 10V/mm 程度低下していることが確認できた。この結果から、遠心分離処理により SiO2 残渣を除去した場合でも、絶縁耐圧への影響は軽微だと判断した。



図 3.3-16 遠心分離処理の有無による耐圧比較結果

2)自動攪拌機の導入

攪拌機を用いて自動攪拌を行うことによる Si02 膜の膜厚の均一化(成膜プロ セスの安定化・再現性の確保)を検討した。

はじめに、手動攪拌の場合と軟磁性体粉末量や TEOS 量、攪拌時間などは同一 の条件で、攪拌方法だけを自動攪拌機による攪拌に変更して成形品試料を作製 し、手動攪拌と自動攪拌機で耐圧を比較した。

【実験内容】

·実験水準

①手動攪拌 TEOS量10g

②自動攪拌 TEOS量10g

図3.3-17は自動攪拌機の外観写真を示している。



図 3.3-17 自動攪拌機

(IKA 社製 RW20 digital)

出典 https://axel.as-1.co.jp/asone/d/1-9945-01/

·評価項目

耐圧

【実験結果】

図 3.3-18 は、手動攪拌の場合と自動攪拌の場合を比較した耐圧の測定結果を 示している。攪拌を手動から自動に切り替えたところ耐圧が約2分の1に低下 した。この時、①の手動攪拌の場合も②自動攪拌の場合も、攪拌は溶液へのTEOS 添加後15分経過時点で開始していた。また、手動攪拌の場合は、15分経過ごと に1分間。スパチュラ(薬さじ)を用いてビーカー内の溶液の攪拌を行った。一 方、自動攪拌の場合は、TEOS 添加後15分経過時点から継続して回転数600回転 /分での攪拌を行った。手動攪拌の場合も自動攪拌の場合も、TEOS 添加後から2 時間経過時点を攪拌の終了時間とした。

攪拌終了後の①の手動攪拌の溶液と②の自動攪拌の溶液を比較すると、①の手 動攪拌の溶液の方が白濁していた。この溶液の白濁は加水分解反応と脱水縮合 反応の結果、析出した SiO2 粒子だと考えられる。自動攪拌を行った溶液よりも 手動攪拌を行った溶液の方が、SiO2 粒子の析出が多い、つまり反応が進行した 理由は、手動攪拌の場合、1 分間の攪拌ごとに 15 分間の放置時間があり、この 間に加水分解反応と脱水縮合反応が進行したためだと考えられる。自動攪拌の 場合は、この攪拌後の放置時間を空けずに攪拌を継続するために、十分な反応 が進行していない可能性がある。



図 3.3-18 手動攪拌と自動攪拌の場合の耐圧比較結果

次に、攪拌機の回転数の耐圧への影響を調べるため、攪拌機の回転数を 300 回転/分に下げて、600回転/分の場合と耐圧を比較した。

【実験内容】

·実験水準

攪拌機回転数: 300回転/分、600回転/分

・評価項目

耐圧

【実験結果】

図 3.3-19 は、攪拌機の回転数と耐圧の関係を示している。



図 3.3-19 攪拌機の回転数と耐圧の関係

成膜時の攪拌機の回転数を 600 回転から 300 回転に下げた場合も耐圧は大き く変化していないことが分かる。回転数を高速化していった場合、溶媒のエタ ノールの蒸発速度が速くなり、エタノール量の減少スピードが速くなるため、 成膜中にエタノールの補給が必要になる。これは量産段階においては材料コス トの増加要因になると考えられる。従って、今回のこの後の工程では自動攪拌 時の攪拌機の回転数は 300 回転/分として実験を行った。

ここまでの結果を踏まえて、自動攪拌においても手動攪拌の場合と同様の絶 縁膜を形成するのに最適な量のSiO2の析出反応を引き起こす時間を調べるため、 TEOS 添加後の経過時間と溶液の色の変化を観察した。

【実験内容】

·実験水準

TEOS添加後の時間:1分、3分、5分、7分、10分、15分、30分

・評価項目
 溶液の色の観察

【実験結果】

図 3.3-20 は、TEOS 添加後の経過時間と溶液の色の変化を示している。 TEOS 添加後の経過時間が長くなるにつれて、溶液の白濁が進行していることが 確認できた。前述の図 3.3-19 における②自動攪拌の耐圧 49V/mm は、TEOS 添加 後15分経過時点から攪拌を開始した結果である。図3.3-20を見ると分かるように15分経過時点では溶液は既に十分に白濁しており、これは溶液中で軟磁性体粉末表面に形成されるSi02膜とは別に、多量のSi02粒子が溶液中に析出していることを表していると考えられる。粒子として析出したSi02は軟磁性体粉末表面へのSi02膜形成には用いられないと考えられるため、溶液の白濁があまり進行しない時点、つまり、十分な加水分解反応が起こっているが、脱水縮合反応はあまり進行していない時点で攪拌を開始することが、攪拌機を用いた自動攪拌の場合には、軟磁性体粉末表面へのSi02膜形成の点においては望ましいと考えられる。



図 3.3-20 TEOS 添加後の溶液の色の経時変化

そこで、自動攪拌における TEOS 添加後の自動攪拌開始までの時間の耐圧への 影響を評価した。

【実験内容】

·実験水準

TEOS添加後の自動攪拌開始までの時間:1分、5分、15分、30分

・評価項目

耐圧

【実験結果】

図 3.3-21 は、TEOS 添加後の攪拌開始までの時間と耐圧の関係を示している。 自動攪拌の場合の攪拌開始時間を溶液への TEOS 添加後 5 分経過後とすると耐圧 が 103V/mm となった。従って、自動攪拌の場合には、攪拌開始の時間を溶液へ の TEOS 添加後 5 分経過時点とすることで、図 3.3-18 における手動攪拌の場合 の耐圧 106V/mm とほぼ同等の耐圧を得られることを確認できた。



図 3.3-21 TEOS 添加後の自動攪拌開始時間と耐圧

3) 超音波洗浄機の導入

しかしながら、今回この軟磁性体粉末を利用した商品に求められる耐圧は 250V/mmであり、より一層の耐圧向上が必要である。軟磁性体粉末への均一な膜 形成という観点においては、磁性体粉末は凝集しやすい性質を持つため、攪拌 機による攪拌だけでは、凝集が解けず、個々の粒子に対する均一な膜形成が行 われていない可能性が高い。そこで、超音波洗浄機を導入して、攪拌と同時に 溶液を攪拌中のビーカーに対して超音波を印加した。これにより、凝集した軟 磁性体粉末を分散させて、個々の粒子表面に対する Si02 成膜を促進させ、その 耐圧への影響を評価した。超音波洗浄機としては、本多電子株式会社製卓上型 超音波洗浄機 W-113 を使用した。図.3.3-22 に超音波洗浄機の外観写真を示す。



図 3.3-22 超音波洗浄機 (本多電子株式会社製 卓上型超音波洗浄機 W-113)

【実験内容】

·実験水準

①TEOS添加後15分後に自動攪拌開始 超音波による分散なし
 ②TEOS添加後15分後に自動攪拌開始 超音波による分散あり
 ③TEOS添加後5分後に自動攪拌開始 超音波による分散なし
 ④TEOS添加後5分後に自動攪拌開始 超音波による分散あり

・評価項目

耐圧

【実験結果】

図 3.3-23 は、超音波印加による粒子の分散の有無と耐圧の関係を示している。 ①と②は SiO2 膜形成反応における TEOS 添加後の攪拌開始時間が 15 分の場合の 比較、また③と④は TEOS 添加後の攪拌開始時間が 5min の場合の比較結果であ る。どちらの場合も攪拌時に超音波印加を実施することで耐圧が 2 倍近く上昇 していることが確認できた。この理由は、事前の予想通り、超音波印加によっ て凝集していた軟磁性粉末が分散され、個々の粒子に対してより均等に SiO2 膜 が形成されたため、また、超音波印加時の溶媒の温度上昇により反応が活性化 されたためだと推測される。自動攪拌の開始時間を TEOS 添加の 5 分後とするこ と、および攪拌中に超音波を印加することで耐圧が 210V/mm まで上昇したが、 まだ目標耐圧である 250V/mm には約 20%不足していた。



図 3.3-23 Si02 膜形成中の超音波印加の有無による試料の耐圧比較

次に、さらに超音波印加の発振周波数と耐圧との関係を調べた

【実験内容】

·実験水準

①TEOS10g添加後5分後に自動攪拌開始 超音波発振周波数 28kHz ②TEOS10g添加後5分後に自動攪拌開始 超音波発振周波数 38kHz ③TEOS10g添加後5分後に自動攪拌開始 超音波発振周波数 100kHz ・評価項目

耐圧

【実験結果】

図 3.3-24 は超音波の発振周波数を 28kHz、38kHz、100kHz と変化させて成膜 を行った時の成形品の耐圧を示している。この結果を見ると、成形品の耐圧に 関して、超音波の発振周波数依存性は確認できなかった。今回はわずかではあ るが高い耐圧 217V/mm を得られた発振周波数 28kHz の条件を用いて以降の実験 を進めることとした。



図 3.3-24 超音波の発振周波数と耐圧との関係

ここまで、自動攪拌機、遠心分離機、超音波洗浄機を加えた構成で絶縁耐圧 の向上を検討してきた。図 3.3-25 は、これらの装置を組み合わせた、絶縁膜形 成工程における工法検証機の外観を示している。



図 3.3-25 絶縁膜形成工程の工法検証機

上記の工法検証機を用いて、さらなる耐圧向上のため、もう一段階の対策を 実施した。具体的には、TEOS 量の増加、及び軟磁性粉体の粒子サイズの小粒子 化の検討を行った。ここで、粉体の小粒子化については、これまでの実験では 軟磁性粉体として 53 μ m のふるいで分級した粒径が 53 μ m 以下の粉体を材料に 使用していた。これをさらに 32 μ m のふるいにより分級して、粒子径が 32 μ m 以下の粉末を用意した。

【実験内容】

·実験水準

①TEOS10g添加 53 µ m以下の分級

②TEOS20g添加 53 µ m以下の分級

③TEOS10g添加 32 µ m以下の分級

※全ての条件で、TEOS添加5分後に自動攪拌開始、超音波印加による 分散あり。

①、②はミキサーミルで粉砕、③はサイクロンミルで粉砕

・評価項目

耐圧

【実験結果】

図 3.3-26 は、TEOS 量の増加と粉体の小粒子化と耐圧の関係を示している。① と②に示すように、SiO2 膜成膜時の TEOS 量を 10g から 20g へと 2 倍にすること で、耐圧が 217V/mm から 271V/mm まで上昇し、目標耐圧である 250V/mm を達成 することができた。これは TEOS 量を増加させたことで軟磁性粉体表面に形成さ れる SiO2 膜が厚膜化したためだと考えられる。また、①と③に示すように小粒 子化することにより、耐圧が 217V/mm から 305V/mm まで上昇することを確認し た。これは、大きなサイズの粒子を除いたことで、成形品中に占める SiO2 膜の 割合が増えたことが原因だと考えられる。さらに、①、②のミキサーミルで粉 砕した粉砕粉の場合には粒子形状がいびつな扁平形状になる。その一方で、③ のようにサイクロンミルで粉砕した粉砕粉の場合には、粒子形状が角の取れた 楕円体形状になる。このため、③の場合には、粒子表面において SiO2 膜が均一 な厚さに成膜されやすくなると考えられる。このことも③における耐圧向上の 一因だと考えられる。



図 3.3-26 TEOS 量増加及び粒子サイズ小粒子化と耐圧

次に、図 3.3-27 は、TEOS 量 10g で SiO2 膜の成膜を行った時の断面 TEM 写真 を示している。TEOS 量 10g で、約 50nm の均一な厚さの SiO2 膜が形成されてい ることが確認できた。



図 3.3-27 TEOS 量 10g の断面 TEM 写真

また、図 3.3-28 は、形成した Si02 膜の EDX ラインプロファイルを示してい る。Si02 膜に対して、粒子の外側から粒子の中心方向に向かって元素分析 (EDX ラインプロファイル測定)を行った結果である。粒子表面に形成されている膜の 部分で Si と酸素の強いピークが検出されていることから、軟磁性体粉末表面に 形成されているのが Si02 膜であることを確認した。



図 3.3-28 形成した SiO2 膜の EDX ラインプロファイル

4) 粒子サイズと耐圧の関係

絶縁耐圧は、絶縁膜形成プロセスだけでなく、その前後の工程にも大きく影響を受ける。例えば絶縁膜形成後の工程では、前述のとおり、絶縁膜形成後の Si02 残渣の除去を行わない場合、耐圧は上昇する。そこで、絶縁膜形成工程の 前工程である、粉砕工程における粉砕粉の粒子サイズ(D90%における粒度分布) が耐圧に与える影響について評価した。

【実験内容】

·実験水準

①32µm以下の粉体100%

②32μm以下の粉体80%、32μm以上53μm以下の粉体20%

③32μm以下の粉体20%、32μm以上53μm以下の粉体80%

④32µm以上53µm以下の粉体100%

※32µmのふるいと53µmのふるいにより粉末を分級

・評価項目

耐圧

【実験結果】

図 3.3-29 は、粒子サイズ(D50%における粒度分布)と耐圧の関係を示している。図中、①~④の番号は上記の各実験水準に対応している。

全体的に D50%における粒度分布の値が大きなサンプルでは耐圧が低下する傾向 にあることが分かる。この原因の1つとして、粒子サイズの大きな粒子が増加 するほど、成形品中に占める Si02 膜の割合が減少したことが挙げられる。また、 粒子サイズの大きな粒子の Si02 膜が絶縁破壊すると、その内側の磁性体粒子は 導電性であるため、電子が磁性体粒子中を流れることになる。すると、試料表 面から裏面までを短絡する経路が発生しやすくなり、この結果、耐圧が低下す ると考えられる。図 3.3-30 に①32 μ m 以下に分級した軟磁性粉末の比率 100%(耐 圧 305V/mm)の条件で成膜した成形品の断面 SEM 写真を示す。また、図 3.3-31 に は④32 μ m 以上 53 μ 以下に分級した軟磁性粉末の比率 100%(耐圧 20V/mm)の条件 で成膜した成形品の断面 SEM 写真を示す。



図 3.3-29 粒子サイズ(D50%における粒度分布)と耐圧



図 3.3-30 32 µ m 以下に分級した軟磁性粉末の比率 100%(耐圧 305V/mm)の条件 で成膜した成形品の断面 SEM 写真



図 3.3-31 32 µm以上 53 µ以下に分級した軟磁性粉末の比率 100%(耐圧 20V/mm) の条件で成膜した成形品の断面 SEM 写真

図 3.3-31 では、大きい粒子サイズの粒子の間を小さい粒子サイズの粒子が埋 まることで全体として密になっていることが分かる。その一方で、図 3.3-32 を 見ると大きい粒子サイズの粒子のみに分級されているため、空隙のサイズが大 きくその数も多い。これらの結果は、粒子サイズが大きくなると成形品に占め る絶縁膜の割合が減少して耐圧が低下するという上述の考察を裏付けるもので ある。

本結果から、所望の耐圧を得るためには絶縁膜形成プロセスだけでなく、そ の前工程の粉砕工程における粒子サイズの制御、また、粒子サイズに合わせた 絶縁膜形成プロセスの開発が求められる。

以上、述べてきたように、絶縁膜形成工程においては、自動攪拌機の導入と 成膜プロセス条件の最適化、加えて遠心分離機、超音波洗浄機の導入を行った。 この結果、目標となる耐圧 250V/mm を達成でき、且つ、再現性のある SiO2 膜の 成膜工法を確立することができた。表 3.3-3 は、その成膜条件を示している。

材料	軟磁性体粉末 10g エタノール アンモニア水	
	アジビニア水 TEOS量 10g	
自動攪拌	TEOS添加 5分後に攪拌開始	
	回転数 300rpm 2時間	
超音波洗浄 発振周波数	28kHz	
遠心分離	回転数 8000rpm 10分	

表 3.3-3 Si02 膜の成膜条件

3.3.5. 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. 総合評価

本事業において、ここまで評価した①粉砕、②ナノ結晶化、④絶縁膜形成の 工程の工法検証機、および開発したプロセスを用いて試作した、成形品試料の 磁気特性や電気特性に対する評価結果について述べる。図 3.4-1 は本事業にお ける工程の取り組み範囲を示す。



図 3.4-1 本事業における工程の取り組み範囲

3.4.1. 工法検証機による特性検証

確立した工法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 3.4-1 に示す。

表 3.4-1 工法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	商品A目標	商品B目標	検証結果	備考
磁気 特性	損失(100kHz,25mT)	80[kW/m3]以下	60[kW/m3]以下	○69[kW/m3]	
	飽和磁束密度	1.7[T]	1.7[T]	△1.68[T]	材料の鉄量による
電気 特性	耐圧	250[V/mm]以上	500[V/mm]以上	$\triangle 84[V/mm]$	耐圧再現確認必要

今回作製した成形品試料は、磁気特性においては、得られた損失は 69kW/m³ となり、商品 A の 80kW/m³以下という目標値を満たしている。また、飽和磁束密 度は、材料の鉄量に依存するため、商品 A の目標値 1.7T に対して 1.68T とわず かに未達であった。

次に、軟磁性合金薄帯の粉砕粉の出来栄え評価のため、種々の分析を実施した。粉体の保磁力は387[A/m]、酸素量は0.53[wt%]、粒径(D50%)は15.7[µm]で想定通りの結果であった。粉体のSEM画像を図3.4-2に、粒度分布を図3.4-3に示す。また、DTA分析結果を図3.4-4に示す。400℃付近のピークが消えて、ナノ結晶が生成できていることが確認できる。



図 3.4-2 総合評価の粉体の SEM 画像



図 3.4-3 総合評価の粉体の粒度分布



図 3.4-4 総合評価の粉体の DTA 測定結果

次に、粉砕工程で粉砕機に含まれる元素(A1, Zr, Cr, W) がコンタミとして混 入していないことを確認するため、ICP 分光分析により粉砕直後の粉体の組成分 析を行った。その結果、A1:60[ppm], Zr:90[ppm], Cr:130[ppm], W:700[ppm] で あった。いずれも鉄量に対して、微量であり、磁気特性に影響を与えることは ないことを確認した。

さらに、粉体の真密度を確認するため、気相置換法により粉砕直後の粉体の 真密度を分析した。その結果、7.32[g/cm3]であった。粉砕前の薄帯の真密度は、 7.4[g/cm3]程度であるため、粉砕により真密度が低下していることがわかる。 これは、粉砕時の粉体の表面の酸化により、粉体の真密度が低下したものと考 えられる。なお、飽和磁束密度は、真密度の測定値を使用して算出した。

さらに、粉体のナノ結晶化状態を確認するため、ナノ結晶化直後の粉体の X 線回折分析を行った。その結果を図 3.4-5 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、ナノ結晶が生成されていることがわかる。他 の位相にはピークを持たないため、鉄化合物が生成されていないことも同時に 確認できる。また、 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。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(図 3.4-5 水色部)と、アモル ファス相に特有のブロードな回折パターン(図 3.4-5 桃色部)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(図 3.4-5 実線部)に対する α Fe 結晶相(図 3.4-5 水色部)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。今回の結晶化度は86[%]であった。この結果からも、ナノ結晶が生成されていることがわかる。



図 3.4-5 X 線回折プロファイル

さらに、結晶子サイズの体積分布を図 3.4-6 に示す。結晶子サイズの体積分 布の導出方法は以下のとおりである。X 線回折装置によって得られた粉末試料の X 線回折プロファイル(図 3.4-5)を取得する。次に、プロファイル形状を、体 積荷重分布関数を用いて表現し、直径に対する体積比率を計算することによっ て、結晶子サイズの体積分布を算出する。図 3.4-6を見ると、結晶子サイズの 最頻値は 79Å(=7.9nm)となり、これからもナノ結晶が生成されていることがわ かる。



図 3.4-6 結晶子サイズの体積分布

最後に、透過電子顕微鏡(TEM)を用いて、粉体のナノ結晶化状態と絶縁膜を 観察した。観察した粉体の全体像を図 3.4-7 に示す。楕円体形状で長辺が 9.5 μmの粒子において、視野 1~2 の2箇所のナノ結晶化状態と絶縁膜を観察した。



図 3.4-7 透過電子顕微鏡 (TEM) 観察 (全体像)

視野1のTEM 画像を図 3.4-8 に、視野2のTEM 画像を図 3.4-9 に示す。いず れも、10~20nm 程度のきれいなナノ結晶が生成されていることが確認できる。 また、粒子表面に 35~90nm 程度のコーティング膜ができていることが確認でき る。これは、絶縁工程で形成した SiO2 膜であり、狙い通りできていることが確 認できる。



図 3.4-8 透過電子顕微鏡 (TEM) 観察 (視野 2)



図 3.4-9 透過電子顕微鏡 (TEM) 観察 (視野 3)

次に、電気特性において得られた耐圧は、84V/mm となり商品 A の目標値 250V/mm 以上という値を未達であった。この理由の1つとしては、TEG 検証およ び工法検証において使用した粉末と、総合評価による検証で使用した粉末では 粉砕工程の雰囲気が異なることが挙げられる。絶縁膜形成工程の検証において 使用した粉砕粉は全て大気雰囲気中で粉砕が行われたのに対し、工法検証機で 使用した粉末では全て窒素雰囲気中で粉砕が行われた。このため前者では、軟 磁性体粉末表面に22~33nm 程度の自然酸化膜が形成されており、このために耐 圧が上昇した可能性がある。従って、工法検証機による検証で使用した粉末を 用いた場合でも、耐圧 250V/mm の再現性を確認することが今後の課題である。

3.4.2. 工法検証機による基本信頼性検証

次に確立した工法を用いて作製した試料に対して得られた基本信頼性の測定 結果を表 3.4-2 に示す。

	項目	商品A目標	商品B目標	検証結果	備考
#+	熱衝撃100サイクル	特性変化ないこと	特性変化ないこと	○損失7%増	
盘伞 信頼性	高温高湿放置100h	腐食無きこと	腐食無きこと	○腐食無し	成形品での 腐食対策必要

表 3.4-2 工法検証機で作製した試料の基本信頼性の測定結果

100サイクルの熱衝撃試験(試験槽としてはETAC 社製WINTECH KEYLESS を使用) の後で損失を測定したところ、損失の増加は7%程度であり、これは特性のスペ ックに収まっていることが分かった。また、絶縁膜形成後の粉末に対して、100 時間の高温高湿試験を実施した。試験槽としては ESPEC 社製の SH-221 を使用し た。高温高湿試験実施前後の軟磁性体粉末の外観写真を図 3.4-10 に示す。

絶縁膜あり 絶縁膜なし

高温高湿試験 実施前

高温高湿試験 100時間実施後

図 3.4-10 絶縁膜形成後の軟磁性粉末表面の高温高湿試験前後の外観写真

高温高湿試験100時間実施後の粉末表面の状態を観察したところ、絶縁膜を つけていない粉末表面には腐食が発生しているのに対して、絶縁膜を形成した 粉末表面に腐食は発生していなかった。この結果から、軟磁性体粉末の表面を、 今回確立した絶縁膜形成工法によりSi02膜で被覆できていることが確認できた。 しかしながら、絶縁膜を形成した粉末においても、成形品の状態にするとは高 温高湿試験後に腐食が発生することを確認している。これはプレス成型時の圧 力により粉末表面のSi02膜に亀裂が入り、そこから水分が進入するためである と考えられる。従って、今後はプレス圧力の緩和や成形品表面への防食コーテ ィングなど成形品の状態での腐食対策が必要となる。

なお、総合評価における各工程の歩留は、粉砕工程:約30%、ナノ結晶化工程:約90%、絶縁膜形成工程:約95%で、全工程合計で25%であった。今後、量産化に向けて、特に、粉砕工程の歩留向上に取り組んでいく予定である。

4. Life Cycle Assessment

本事業で実証した製造プロセスによる、現状の製造プロセスに対する CO2 排 出量の削減量を算出した。

4.1. 考え方

図 4-1 に、今回算出する CO2 排出量の対象範囲を示す。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。現状の製造プロセスで は、『高炉』、『アトマイズ粉作製』、『焼鈍』が評価対象であり、本事業の 製造プロセスでは、『粉砕』、『ナノ結晶化』を評価対象とした。尚、『絶縁 処理』プロセスは、現状と本事業で、製造プロセスが同等であると仮定し、CO2 排出量の算出の評価対象外とした。また、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粉体 1kg 当たりの CO2 排出量とした。各製造プロ セスの CO2 排出量としては、現状の製造プロセスは、高炉: a kg-CO2/kg-M、ア トマイズ粉作製: b kg-CO2/kg-M、焼鈍: c kg-CO2/kg-M とすると、トータルの CO2 排出量 A は、a+b+c となる。また、本事業の製造プロセスは、各製造プロ セスの CO2 排出量を、粉砕: d kg-CO2/kg-M、ナノ結晶化: e kg-CO2/kg-M とす ると、トータルの CO2 排出量 B は、d+e となる。よって、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、A-B となる。



図 4-1 現状と本事業における CO2 排出量の評価範囲

4.2. CO2 削減効果

各製造プロセスにおいて算出した CO2 排出量を図 4-2 に示し、導入根拠を表 4-1 に示す。尚、本事業の CO2 排出量は、2018 年度に実証した実績値を示して いる。図 4-2 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 出量の削減量 A-B は、7.7 kg-CO2/kg-M [12.5-4.8 kg-CO2/kg-M] となり、現 状の製造プロセスに対し、60%の削減をすることができた。ここで、本事業の 本年度のゴール目標値は、40%の削減であり、ゴール目標値を達成することがで きた。次年度の 2019 年度では、粉砕プロセスの歩留向上及び、ナノ結晶化プロ セスの高スループット化により、生産効率を高め、さらに CO2 削減効果を向上 する実証を行なう。


図 4-2 現状と本事業における CO2 排出量

表 4-1	各製造プロセスの CO2 排出量の導出根拠
11 1 1	

	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 排
		出量とするために、弊社調査に基づき、アトマイズ粉作
		製と焼鈍の各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-CO2/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%)×
		CO2 排出係数(0.512kg/kWh)=4.9kg-CO2/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
		月 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 CO2 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%)×
		CO2 排出係数(0.512kg/kWh)=0.7kg-CO2/kg-M
		※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
本事業	粉砕	まず、粉砕法により、薄帯の端材から粉砕粉 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(1kwh)÷薄帯端材(0.6kg)÷歩留(30%)×C02
		排出係数(0.512kg/kWh)=2.8kg-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、ナノ結晶化の製
		造プロセスの歩留で除した。
		粉砕粉 1kg を生成するプロセスの CO2 排出量
		(2.8kg-C02/kg-P) ÷ナノ結晶化プロセスの歩留(90%)=
		3.1kg-C02/kg-M
	ナノ結晶化	熱プレス法により、粉砕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(0.03kwh)÷粉体(0.01kg)÷歩留(90%)×C02
排出係数(0.512kg/kWh)=1.7kg-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

5. 展開性・量産性の検討

5.1. 展開性

他社材料への展開を考え、他社の軟磁性合金薄帯の粉砕粉の磁気デバイスへの適用可能性を検討した。他社材料として、本事業で使用した自社の薄帯材料と同程度の保磁力を有する薄帯を選択した(他社材料 A, B)。このとき、飽和磁 束密度は、鉄量の含有量によって大小様々であるが、図 1.2-1 に示す各種磁気 デバイスへ適用が見込める。

表 5-1 は、他社材料への展開性を検討した製造プロセスフローを示している。 他社の薄帯材料 A, B は、自社材料と同条件で粗粉砕、微粉砕、分級し、他社の 薄帯材料 A, B に適した条件で熱処理することでナノ結晶化し、自社材料と同条 件で絶縁膜を形成し、粉体の基本特性を測定した。

薄带材料	粗粉砕	微粉砕	分級	ナノ結晶化	絶縁処理
自社材料	10×10mm以下	15000rpm, 20m	32μm以下	450°C, 10s	攪拌600rpm, 2h
他社材料A	同上	同上	同上	410°C, 10s	同上
他社材料B	同上	同上	同上	500°C, 60s	同上

表 5-1 他社材料への展開性を検討した製造プロセスフロー

表 5-2 は、他社材料の粉体の基本特性の結果を示している。粉体の基本特性 として、粉体の粒径(D50%)、保磁力、飽和磁束密度を測定して、自社材料と 比較した。粒径(D50%)は、自社材料が15.7[μm]に対して、他社材料 A が22.2[μ m]、他社材料 B が19.5[μm]であった。他社材料は、自社材料に対して結晶化温 度が高いため、同条件の粉砕では粉砕が進んでいないことを示している。粉砕 条件を変えることにより、自社材料と同程度まで粉砕することは可能と考える。

保磁力は、自社材料が387[µm]に対して、他社材料Aが563[µm]、他社材料 Bが575[µm]であった。他社材料A,Bは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720[A/m]を満足し、他社材料A,B も十分な実力があると考える。なお、他社材料は、自社材料に対して結晶化温 度が高いため、自社材料の粉砕よりも大きな粉砕エネルギーを必要とするため、 粉砕時の応力歪が大きくなり、保磁力が大きくなったと考えられる。粉砕条件 を変えることにより、自社材料と同程度まで保磁力を低減することは可能と考 える。

飽和磁束密度は、自社材料が1.64[T]に対して、他社材料Aが1.56[T]、他社 材料Bが1.23[T]であった。他社材料の飽和磁束密度は、薄帯のカタログ値を示 す。他社材料は、自社材料と比較して、鉄量が少ないため、飽和磁束密度が低 くなっている。

項目		自社材料	他社材料A	他社材料B	
粉体	粒径(d50%)	15.7[μm]	22.2[μm]	19.5[μm]	
基本特性	保磁力(目標720[A/m]以下)	387[A/m]	○563[A/m]	○575[A/m]	
	飽和磁束密度	1.64[T]	1.56[T] 💥	1.23[T] 💥	

表 5-2 他社材料の粉体基本特性の結果

※薄帯のカタログ値

以上の結果から、他社材料 A, B とも、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と考えられる。今後、他社材料 A, B に適した粉 体化プロセスを確立し、さらに詳細な評価を実施していく予定である。

5.2. 量産性

軟磁性合金薄帯の粉砕粉の量産化に向けて、各工程の量産設備を検討した。 特に、本年度の実証事業で作製した各工程の工法検証機の中で、スケールアッ プによる高スループット化が必要と思われる、ナノ結晶化工程、絶縁膜形成工 程の量産設備を検討した。

1) ナノ結晶化工程の量産性検討

3.2. ナノ結晶化工程の検証結果において、本事業で新規開発した熱プレス機 を使用して、ナノ結晶化工程の検証を行い、自己発熱の制御と熱伝導性の向上 を図り、多量の粉末を熱暴走させず均一加熱する熱処理工法を確立した。しか しながら、熱プレス機は、一度に処理できる粉体が少なく、量産を睨んではス ケールアップによる高スループット化が必要となる。そこで、ナノ結晶化工程 の今後の量産に向けた工法検証を行ったため、その結果について述べる。

ナノ結晶化工程のスケールアップ機として、熱風炉と熱ロールプレス機にお いて、スケールアップの可能性を検証した。

図 5-1 は、今回の検証に用いた熱風炉(エスペック製)を示している。熱風 炉は、一度に多量の粉体を処理できるため、スケールアップには適する。とこ ろが、熱風炉は、熱プレス機と同じ450℃で加熱すると、自己発熱により熱暴走 し、粉体を均一加熱できないため、本事業の熱処理工法としては適さない。そ こで、自己発熱が起こらない低温で長時間加熱することにより、高温で短時間 加熱するのと同程度の保磁力が得られることを見出した。高温で短時間の熱処 理と比較して、飽和磁束密度は低下するデメリットはあるが、図1.1-3に示す 磁気デバイスに十分適用可能である。



図 5-1 熱風炉の外観写真(エスペック製)

図 5-2 は、今回の検証に用いた熱ロールプレス機(自社製)を示している。 熱ロールプレス機は、連続的に粉体を投入できるため、スケールアップには適 する。熱プレス機と同じ SUS の薄板に粉体を挟み、450℃に加熱したロールの間 に投入し、ロールで加圧しながら加熱した。ロールの径と回転速度から計算す ると、粉体は約 1s 加圧されていることになる。



図 5-2 熱ロールプレスの外観写真(自社製)

表 5-3 は、熱風炉と熱ローププレス機のスケールアップの検討結果を示している。各加熱工法で作製した粉体の保磁力を測定したところ、両方の加熱工法とも、現行の熱プレス方式と比較して、保磁力は増加するが、保磁力の目標スペック(720A/mm)を達成することができた。

したがって、ナノ結晶化工程のスケールアップ・生産タクトの向上は十分可 能であると判断した。今後、熱風炉・熱ロールプレス機を使った量産プロセス の詳細な評価を実施していく予定である。

	現行	検討	
	熱プレス機	熱風炉	熱ロールプレス機
保磁力 (目標720[A/m]以下)	○387[A/m]	○582[A/m]	○672[A/m]
備考	_	飽和磁束密度低下 1.7[T]→1.6[T]	_

表 5-3 熱風炉と熱ロールプレス機の検討結果

2) 絶縁膜形成工程の量産性検討

3.3. 絶縁膜形成工程の検証結果において、絶縁膜形成工程の検証を行い、攪 拌機と遠心分離機を用いて軟磁性体粉末上に目標の耐圧を実現できる SiO2 膜を 形成する工法を確立した。しかしながら、被膜材料である TEOS は高額であり、 また、溶媒であるエタノールは攪拌中に気化してしまうため、成膜中の追加が 必要であること、攪拌機の大型化が困難であることなど、この成膜プロセス自 体にも、まだ問題点が残っている。そこで実際の量産を見越して、攪拌機を用 いた場合よりも材料の使用量を削減できて、かつ、大型化がしやすい、という2 つの観点から、絶縁膜形成工程の今後の量産へ向けた工法検証を行ったため、 その結果について述べる。

絶縁膜形成工程における攪拌機の代替機として検討したのはロールミルと呼 ばれる装置である。ここで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が形成される、という装置である。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。図 5-3 は、ロール ミル装置の外観写真を示している。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。



図 5-3 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、軟磁性体粉末、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、評価した。

【実験内容】

実験水準
 表 5-4 の①から⑥の成膜条件

表 5-4 成膜条件

	条件①	条件②	条件③	条件④	条件⑤	条件⑥
軟磁性体粉末(g)	10	10	10	10	10	10
TEOS (g)	0.5	1	0.5	1	1	1.5
ローラー回転数(rpm)	80	80	80	80	120	120

·評価項目

耐圧

【実験結果】

図 5-4 は、成膜条件と耐圧の関係を示している。

①の Reference に対して④の TEOS 量を2倍にして、かつ、溶媒量も2倍にした成形品試料では耐圧が255V/mmと目標値である250V/mmを達成していることが分かる。また①に対して、TEOS 量と溶媒量を2倍にして、ローラーの回転数を増加させた⑤では耐圧が335V/mmに上昇し、①に対して TEOS 量を3倍に、溶媒量を2倍にして、ローラーの回転数も増加させた⑥では370V/mmまで耐圧が上昇することを確認した。①や②の場合に耐圧が低い理由は、溶媒量が少ないと、軟磁性体粉末が水分を吸収してしまい、ローラーで回転させても、材料が容器の壁面に付着した状態となり、反応が進まないためだと考えられる。溶媒量を①の2倍にした③では溶媒中に軟磁性体粉末が浸漬するため、反応が進行して耐圧が上昇する。そこから TEOS 量を増やすと、SiO2 膜の厚膜化が起こる。また、ローラーの回転数を高速化すると混合・攪拌が激しくなるため反応が促進されて、結果として耐圧が上昇したと考えられる。



図 5-4 ロールミル成膜の耐圧測定結果

図 5-5 は、表 5-4 の④の条件で絶縁膜を形成したときの SEM の断面図を示している。80~100nm の Si02 膜が形成されているため、3.3. 絶縁膜形成工程の検証結果で検討した攪拌機と同程度の Si02 膜を形成できていると考えられる。



図 5-5 ロールミル成膜の粉体の SEM 断面図

図 5-6 にロールミルで成膜した SiO2 膜の EDX ラインプロファイル測定の結果 を示す。図を見ると軟磁性粒子表面の部分において Si を示す紫色のピークと酸 素を示す水色のピークの強度が明らかに増加していることが分かる。これによ りロールミル成膜においても軟磁性粒子表面に SiO2 膜の形成が可能であるとい う裏づけを取ることができた。



図 5-6 ロールミル成膜の SiO2 膜の EDX ラインプロファイル

また、ロールミルの場合、ゾルーゲル法の加水分解・脱水縮合は密閉された容器の中で行われる。一方で、3.3. 絶縁膜形成工程の検証結果で検討した攪拌機を用いた場合は、溶液の入ったビーカー上部が開いた状態の開放系であるため、溶媒のエタノールや触媒のアンモニア水は常に揮発が進行している。このため、反応は不安定である。ロールミルによる成膜では密閉系のため反応が安定しており、少量の材料での均一な成膜が可能になると考えられる。加えて、TEOSの使用量を削減できるため、SiO2残渣が発生しにくく、前述の攪拌機を用いた絶縁膜形成工程の場合のような遠心分離の工程が不要になる。さらに、ロールミルはその装置構成がシンプルであり、材料を投入する容器の大きさを変えるだけで大型化の検証が可能なため、量産化に適している。従って、今後はロールミルを用いた量産プロセスの検証・確立を推進していく。

6. 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。したがって、ナノ結晶化による特性向上、大電流化に対応した信頼性 確保が不可欠であり、実用化に向けては、損失低減、飽和磁束密度向上、耐圧 確保の課題を解決することが必要であった。

【実証事業の目標と実績】

本事業の一年目は、粉砕工法、ナノ結晶化工法、絶縁膜形成工法の検証を 実施し、工法検証機を構築した。

- 粉体製造プロセスの省エネ化
 〔一年目目標:アトマイズ粉の製造プロセスに対し CO2 排出量 40%程度削減〕
 アトマイズ粉の製造プロセスに対し CO2 排出量 60%削減
- 車載機器の性能向上による省エネ化
 〔一年目目標:既存の大電流デバイスに対し損失電力量10%程度削減〕
 既存の大電流デバイスに対し損失電力量30%削減

【事業実施の効果概要】

1. 事業性

表 6-1 に、事業化に向けたマイルストーン案を示す。本事業の一年目(2018 年度)は、粉砕工法、ナノ結晶化工法、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。二年目(2019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、絶縁膜形成工程の量産プロ セスの確立およびスケールアップを検討する。さらに、他社材料への展開を 睨んで、他社材料との比較を実施していく。

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
工法検証	量産検証	量產機製作	量産機検	証/	言頼性	社内工場
 ・粉砕工法 ・ナノ結晶化工法 ・絶縁膜形成工法 	 スケールアップ ・歩留向上 					/ にて量産 /
	他社材料比較				>	他社材料展開

表 6-1 事業化に向けたマイルストーン案

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粉体を製造できる。 本事業の一年目完了時の課題である各工程の歩留向上、スケールアップにより、 軟磁性合金薄帯の粉砕粉の製造スループットを上げることで、低コストの軟磁 性合金粉体の実現が可能となる。表 6-2 に、歩留・スループットの一年目の実 績、および二年目の量産検証における歩留・スループットの目標値を記す。

表 6-2 各工程の歩留・スループット(現状と二年目目標)

	①粉砕	②ナノ結晶化	③絶縁膜形成	合計
歩留 (一年目実績→二年目目標)	30% →64%	90%	95%	25% →54%
スループット (一年目実績→二年目目標)	1.4kg/h	0. 6kg/h →1. 4kg/h	5g/h →1. 4kg/h	5g/h →1. 4kg/h

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した。今後は、他 社材料に適した粉体化プロセスを確立していく。