

まつもと ひろ ゆき

氏 名 松 元 裕 之
授 与 学 位 博士 (工学)
学位 授 与 年 月 日 平成 23 年 3 月 25 日
学位 授 与 の 根 拠 法 規 学位 規 則 第 4 条 第 1 項
研究 科 , 専 攻 の 名 称 東北 大学 大 学 院 工 学 研 究 科 (博 士 課 程) 知 能 デ バ イ ス 材 料 学 専 攻
学 位 論 文 題 目 磁 性 素 子 イ ン ダ ク タ 用 Fe-P-B-Nb 系
非 晶 質 金 属 ガ ラ ス 合 金 に 関 す る 研 究
指 導 教 員 東北 大学 教 授 牧 野 彰 宏
論 文 審 査 委 員 主 査 東北 大学 教 授 牧 野 彰 宏 東北 大学 教 授 杉 本 諭
東北 大学 教 授 高 梨 弘 毅 東北 大学 教 授 川 崎 亮

論 文 内 容 要 旨

第 1 章 緒 言

現在、小型デバイスにおける集積演算回路である CPU や GPU などの処理性能の向上に伴い、電源駆動方式においても低電圧かつ大電流な駆動方式化 (1.2V→1.0V→0.9V→0.7V/36A→44A→60A) が加速され、大電流通電時においても磁気飽和を起こさない金属磁性素子の開発が求められている。同時に電源回路における高効率化への要求も強く、磁気飽和を抑制し、磁気損失も少ない磁性素子インダクタ用金属磁性材料の開発が必要となった。

そのため磁気損失の中でも大きな割合を占める結晶磁気異方性 (K) を低減させる必要があることから、本論文は、理論的には結晶磁気異方性をもたない磁性材料である非晶質金属磁性合金、その中でも一際高いガラス形成能を有し高い非晶質安定性を示す金属ガラスに着目し、磁性素子インダクタ磁心用磁性金属材料として磁気飽和を抑制できる高い B_s と高効率型の電源回路を実現できる低損失特性を両立できる新しい鉄基の磁性金属ガラス合金の創製を目的とした。

本論文では、この新しい磁性金属ガラスを実現するために基本組成の探索から過冷却液体領域拡張効果のある第 4 元素の選定を行い、基本組成系となる Fe-P-B-Nb 系金属ガラスを見出し、実用化を図るための品質特性である耐食性と熱的性質および磁気的性質の不純物含有量依存性を明確にすることで低コスト化に対応できる最適組成を確立したとともに、磁心材料として表面実装型磁性素子インダクタへ適用したときの有用性を示す。

第 2 章 新しい鉄基金属ガラス合金 Fe-P-B-Nb

従来の鉄基非晶質合金の中でも鉄との間に高い負の混合熱を有する Fe-P-B 非晶質合金を基本組成系に選択し、Fe-P-B 非晶質合金における Fe 量およびメタロイド量の最適化を行うことにより Fe-P-B 非晶質合金でも 27K の過冷却液体領域を示す $Fe_{82}P_8B_{10}$ なる組成を基本組成とした。次に井上三原則に基づき過冷却液体領域拡張効果が得られる第 4 元素の探索を行い、図 1 に示すように極めて大きな負の混合熱を持ち、図 2 に示す各種元素における熱的性質変化からも 4at% の添加量で 39K の優れた過冷却液体領域を示す Nb を第 4 元素に選定し、最終的には図 3 に示した 2at% の Nb 添加量において 1.42T の高い飽和磁束密度と 37K の広い過冷却液体領域を両立する新しい鉄基の金属ガラス組成となる $Fe_{80}P_8B_{10}Nb_2$ 磁性金属ガラス合金を見出した。

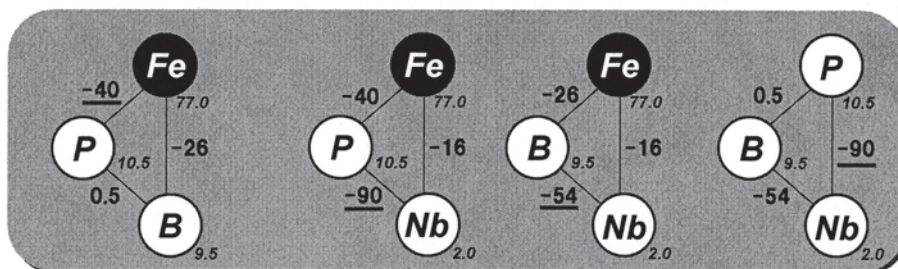
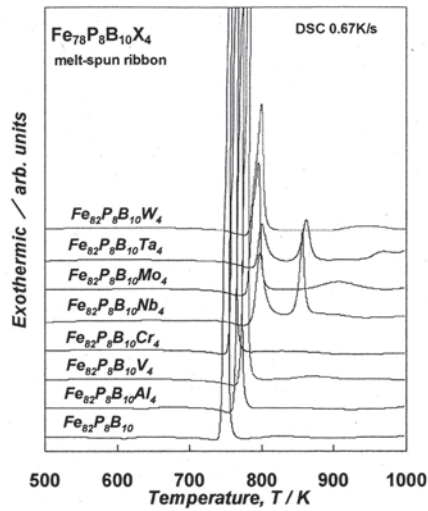
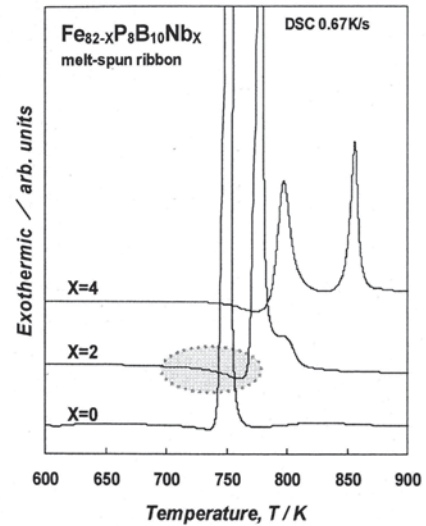


図 1. Fe-P-B-Nb における混合エンタルピー



組成	T_g [K]	T_x [K]	ΔT_x [K]	T_c [K]	d of T.M. [Å]
$Fe_{82}P_8B_{10}$	716	740	24	610	—
$Fe_{78}P_8B_{10}Al_4$	729	759	30	638	1.43
$Fe_{78}P_8B_{10}V_4$	736	768	32	513	1.34
$Fe_{77}P_8B_{10}Cr_4$	727	753	26	511	1.30
$Fe_{77}P_8B_{10}Nb_4$	749	788	39	509	1.46
$Fe_{78}P_8B_{10}Mo_4$	738	780	42	476	1.39
$Fe_{78}P_8B_{10}Ta_4$	752	792	40	504	1.49
$Fe_{78}P_8B_{10}W_4$	740	783	43	486	1.41

図 2. $Fe_{78}P_8B_{10}X_4$ 合金における添加元素と熱的挙動変化



組成	T_g [K]	T_x [K]	ΔT_x [K]	T_c [K]	B_s [T]
$Fe_{82}P_8B_{10}$	716	740	24	610	1.60
$Fe_{80}P_8B_{10}Al_2$	716	744	28	626	1.55
$Fe_{78}P_8B_{10}Al_4$	729	759	30	638	1.53
$Fe_{80}P_8B_{10}Nb_2$	732	769	37	561	1.42
$Fe_{78}P_8B_{10}Nb_4$	749	788	39	509	1.22
$Fe_{80}P_8B_{10}Mo_2$	733	760	27	536	1.39
$Fe_{78}P_8B_{10}Mo_4$	738	780	42	476	1.19

図 3. $Fe_{82-x}P_8B_{10}M_x$ 合金における添加元素と熱的挙動変化

第3章 Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金組成と物性変化

鉄基の軟磁性材料を実用化するためには、工業化するための条件となるコスト競争力の付与といった 2 つの観点から実用に耐えうる必要特性を満足できる Fe-P-B-Nb 系金属ガラス合金への組成調整を行い、図 4 に示すように 1at% の Cr を添加することで 1.29T の高い B_s を示すと同時に、表面層には Cr が濃縮し約 40nm の Cr 不動態膜が形成されることで優れた耐食性と高い飽和磁束密度を両立可能な組成となる Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金を見出した。

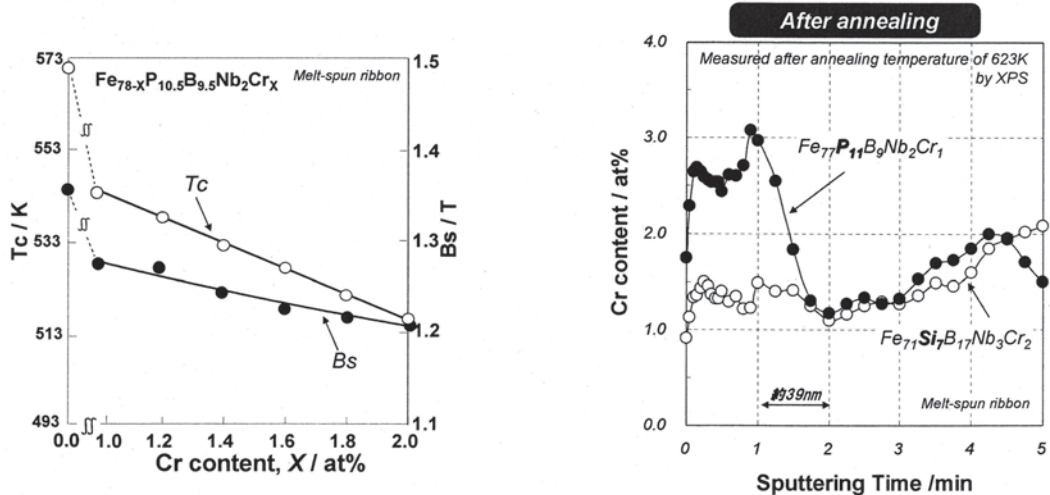


図 4. $Fe_{77}P_{10.5}B_{9.5}Nb_2Cr_1$ における Cr 量と B_s および T_c 変化と As quench リボン試料の XPS による Cr 表面分析結果

Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金は、コスト競争力の観点から不純物含有量が高いが低価格な鉄基の合金原料であるフェロ原料（フェロ燐、フェロボロン、フェロシリコン、フェロニオブ）を母合金原料に用いても、図 5 に示すように広範囲な組成領域において 30K 以上の高い過冷却液体領域 ΔT_x と 100 μm 以上の優れたガラス形成能 T_{max} を併せ持つ熱的安定性においても極めて優れた性質を有する磁性金属ガラス合金であることが確認された。

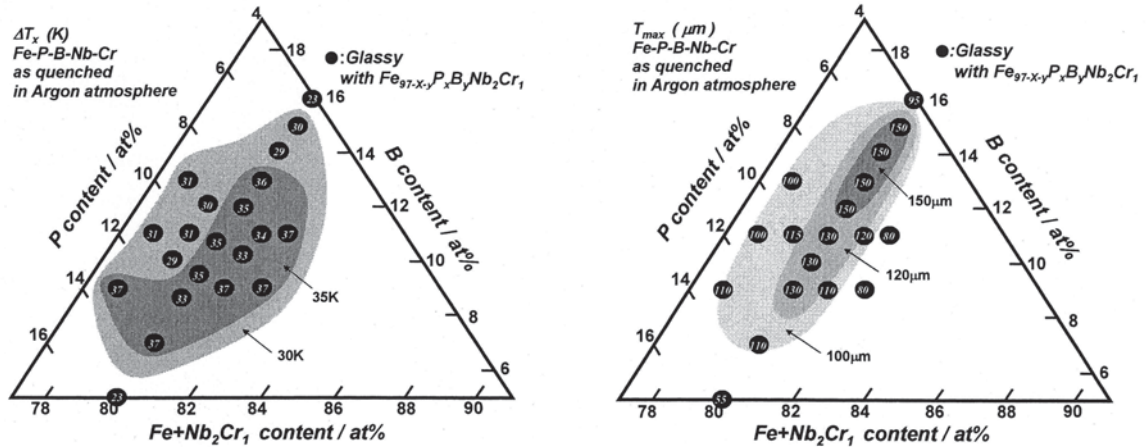


図5. Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金の ΔT_x および T_{max} の組成依存性

磁性素子インダクタ用磁心材料において重要な磁気的性質となる飽和磁束密度 B_s や保磁力 H_c においても、図6に示すように熱的性質と同様に極めて広範囲な組成領域において 1.25T 以上の高い B_s と 2.0A/m 以下の優れた低保磁力特性が両立されており、Fe-P-B-Nb-Cr 系合金は不純物含有量が多い低価格な母原料であるフェロ合金を用いても優れた熱的性質と高い磁気特性を両立可能な新しい磁性金属ガラス合金であることが確認され、実用化を考慮した最適組成を $Fe_{77}P_{10.5}B_{9.5}Nb_2Cr_1$ と決定した。

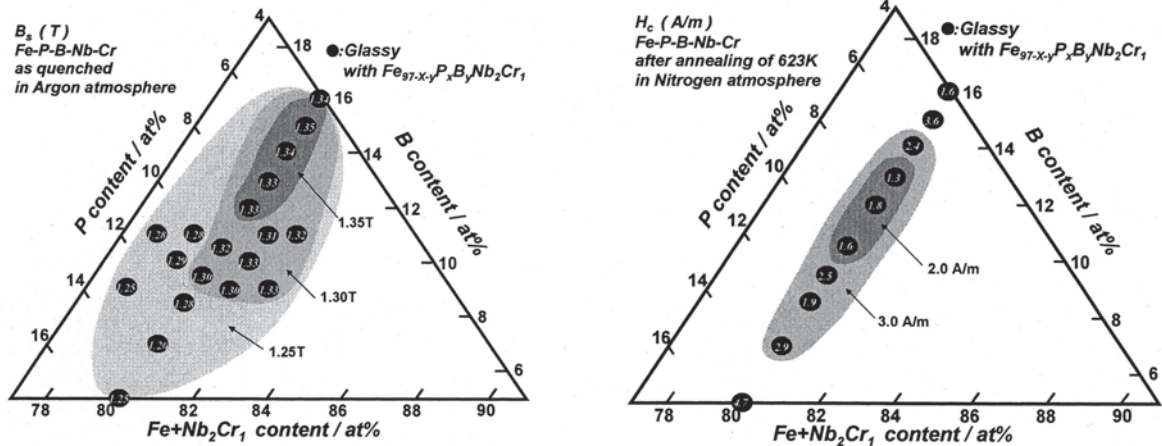


図6. Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金の B_s および H_c の組成依存性

第4章 応力緩和アニールと微細組織

表面実装型磁性素子インダクタはコイルが磁心の中に直接埋め込まれた一体成形構造を持つことから、非晶質材料のポテンシャルを最大限に引き出すために必要となる応力緩和を目的としたアニール処理の温度は、コイル表面の絶縁被服剤の耐熱温度である 673K 以下である必要があるが、図7に示すように Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金は 623K のアニール温度において最も低い保磁力を示すとともに、623K のアニール後の微細組織においても極めて優れた非晶質状態を保つことができる一体成形構造を持つ表面実装型磁性素子インダクタ用磁心材料として十分対応可能な被熱処理性を有することが確認された。

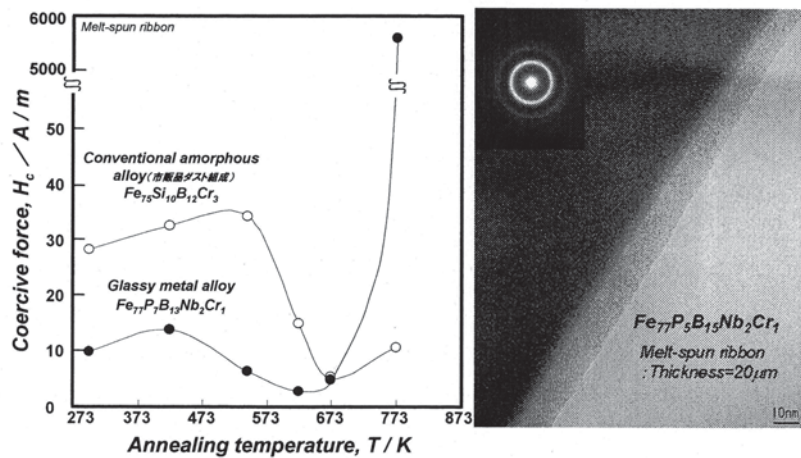


図7. Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金の H_c のアニール温度依存性と 623K アニール処理後の微細組織 TEM 観察像

第5章 Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金粉末とコアロス変化および製品特性

Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金の合金設計において熱的性質および磁氣的性質に加え、粉末化を考慮しP組成の最適化を図り低融点特性も付与したことで、図8に示すように磁性金属粉末としては極めて微細・球状化に優れた磁心用 Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金粉末を実現することができた。

それら Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金粉末を適用したトロイダル磁心は図9に示したように 300kHz、50mT の励磁条件下において 761kW/m³ の優れた低損失特性を示し、従来から用いられている鉄基アモルファス合金粉末磁心に比べて 1/2、結晶系の磁心材料である電磁ステンレス合金粉末や純鉄粉末を用いた圧粉磁心に比べると 1/4 以下となる優れた低損失特性を示す材料であることが確認された。

これら Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金粉末を適用した磁心部分の磁気損失が大幅に抑制されたことにより表面実装型磁性素子インダクタに Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金粉末を適用した場合においても大きく効率が改善され、図9に示すように、一般に用いられている電磁ステンレス粉末を磁心に適用した表面実装型磁性素子インダクタに比べて 2.0%もの優れた実装効率における高効率化効果が得られることが確認された。

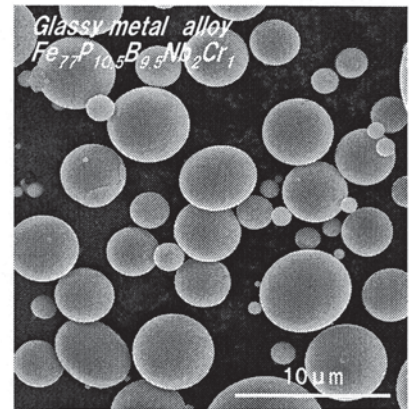


図8. Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金粉末

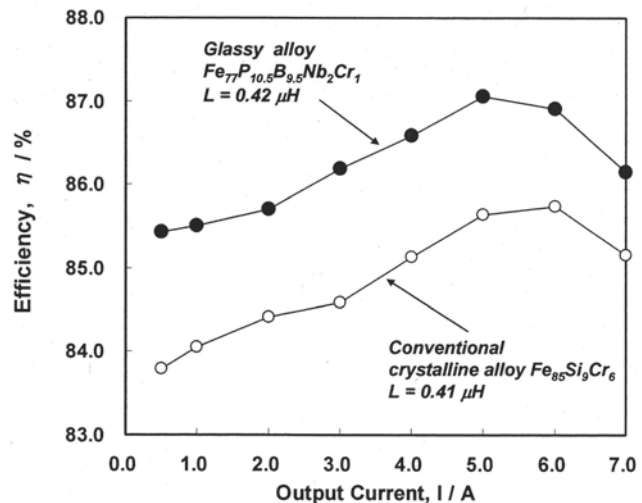
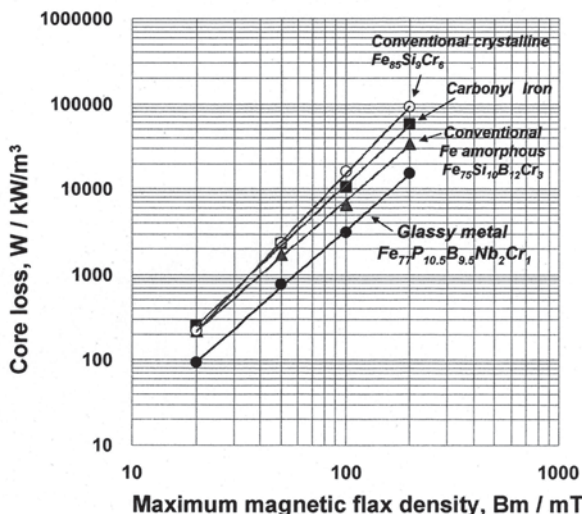


図9. 各種合金圧粉磁心の最大磁束密度とコアロスの関係と表面実装型磁性素子インダクタの印加電流と実装効率変化

第6章 結言

極めて優れた熱的安定性により最大で 37K の過冷却液体領域 ΔT_x と 150 μm のガラス形成能 T_{max} を示すとともに、優れた軟磁気特性となる 1.35T の高い B_s と 1.6A/m の低保磁力特性を両立できる、熱的にも磁氣的にも優れた性質を併せ持った新しい磁性金属ガラス合金たる Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金を見出すことができた。

Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金粉末は、761kW/m³ の類い希なる優れた低損失特性を有することにより、Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金粉末を表面実装型磁性素子インダクタ用磁心として適用することで従来の磁心材料にくらべ 2.0%もの高い電源効率を実現することが可能であり、この新しい磁性素子インダクタ用非晶質金属ガラス合金たる Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金を表面実装型磁性素子インダクタに応用していくことで、磁性部品における効率改善を通じて、エネルギー削減の観点からも大きく社会に貢献できる新しい低損失型非晶質磁性金属ガラス合金を開発・実用化することができた。

本研究成果である Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金は、既に磁性素子インダクタ用磁心材料として実用化されており、Fe-P-B-Nb-Cr 金属ガラス合金粉末を用いた表面実装型磁性素子インダクタは、その類い希なる低損失特性に由来する高い実装効率改善効果により、世界 No.1 の高効率型磁性素子インダクタとして世界最大手の IC メーカーにおいて世界で唯一の正式認証インダクタとして搭載されるとともに、その実用化も大きく加速されている。

論文審査結果の要旨

表面実装型磁性素子インダクタ用磁心材料が用いられる小型デバイスの大電流低電圧な電源駆動方式に対応し、磁性素子インダクタ用磁心材料にも大電流通電で磁気飽和せず、且つ低損失特性も両立できる材料が望まれている。著者は、磁気飽和防止と低損失化の達成に高い非晶質性と高 B_s 特性が期待できる鉄基磁性金属ガラスに着目し高 B_s と低損失を両立したFe-P-B-Nb系金属ガラス合金なる新しい鉄基磁性金属ガラス合金を見出し、その実用化検証も行い低損失型磁性素子インダクタの実用化までを実証した。本論文は、その成果を取りまとめたもので、全文6章より構成される。

第1章は緒言である。

第2章では、基礎となるFe-P-B非晶質合金の選択から井上3原則による金属ガラス化を検討し、新しい鉄基磁性金属ガラスFe-P-B-Nb系金属ガラス合金を見出した。元素間の混合エンタルピーによる熱力学的解析により第4元素としてNbをFe-P-Bへ加えた時の適性についても検証し、Fe-P-B-Nb金属ガラス合金とすることで1.42Tの B_s と37Kの過冷却液体領域を示すことを見出しており、この新しい鉄基金属ガラス合金の発見は今後の磁性金属ガラスの発展において非常に意味のある成果である。

第3章では、Fe-P-B-Nb系金属ガラス合金を実用可能なものとするべくFe-P-B-Nb-Cr金属ガラス合金とすることで表面層に40nmのCr不働態膜が形成され高い耐食性を示すことを検証し、コスト面でも低価格だが不純物含有量が多い母原料を用いても広い組成域で30K以上の ΔT_x 、100 μm 以上のガラス形成能、1.25T以上の B_s および2.0A/m以下の低保磁力の全てが満足できることを確認し $\text{Fe}_{77}\text{P}_{10.5}\text{B}_{9.5}\text{Nb}_2\text{Cr}_1$ なる実用化に対応できる組成を見出しており、これは実用化を睨んだ極めて有用な成果である。

第4章では、磁心とコイルの一体成形構造からなる表面実装型磁性素子にFe-P-B-Nb-Cr金属ガラス合金を用いる上で重要なコイル絶縁被覆材の絶縁破壊温度たる673K以下での応力緩和熱処理への適性について述べている。Fe-P-B-Nb-Cr金属ガラス合金は、623Kにおいて最も低い保磁力を示し微細組織も熱処理前後で変化無く均質な非晶質状態が維持され、表面実装型磁性素子インダクタ用磁心材料として十分なポテンシャルを証明できたことは実用化という観点も含め非常に有用な成果である。

第5章では、表面実装型磁性素子インダクタ用磁心に用いるべくFe-P-B-Nb-Cr金属ガラス合金粉末を実現し、粉末を用いた圧粉磁心および製品にてFe-P-B-Nb-Cr金属ガラス合金の有用性を検証している。Fe-P-B-Nb-Cr金属ガラス合金は従来の磁心材料に比べ1/2~1/4もの類い希なる低損失特性(761kW/cc)を達成し、本粉末を適用した表面実装型磁性素子インダクタの実基盤評価においても従来材対比で2.0%の実装効率向上効果があることから表面実装型磁性素子インダクタ用磁心材料として実用化可能なことを実証している。これは製品応用上極めて有用な成果である。

第6章は結言である。

以上要するに本論文は高い B_s と優れた低損失特性を併せ持つFe-P-B-Nb系なる新しい磁性金属ガラス合金を見出し、実用化が可能な $\text{Fe}_{77}\text{P}_{10.5}\text{B}_{9.5}\text{Nb}_2\text{Cr}_1$ なる磁性素子インダクタ用磁性金属ガラス合金組成を確立したもので、これらの成果は磁性非晶質材料工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。