射出成形によるボンデッド NiCuZn フェライトの軟磁気特性と電気抵抗

岩崎 和春, 細谷 健, 高橋 芳美

ソニー(株)仙台テクノロジーセンター, 〒985 多賀城市桜木3-4-1.

Soft Magnetic Properties and Electric Resistance of Bonded NiCuZn Ferrites using Injection Molding

Kazuharu Iwasaki, Ken Hosoya and Yoshimi Takahashi

Sendai Technology Center, Sony Corporation, 3-4-1 Sakuragi, Tagajo 985.

Received January 12, 1994

Bonded soft ferrite using injection molding is expected to have applications, because it conforms with the trend toward miniaturization and complication of the shape of electronic devices. At present, the permeability of bonded soft ferrite is too low for it to have practical applications, because of the mixture of ferrite powder and resin. Increasing its permeability is thus an important problem to be solved. To this end, we used kneading and injection molding to produce bonded soft ferrites mixed with nylon resin and several kinds of NiCuZn ferrite powder with various size distributions, and then measured the soft magnetic properties and electric resistance of bonded NiCuZn ferrites.

1 緒 言

最近, 電子機器の軽薄短小化に伴ってそれに使われる電子デバイスの小型化, 高性能化の要求が高まっている。ボンデッドソフトフェライトの射出成形法は小型で複雑な形状の成形品の製造に適しており, しかもボンデッドソフトフェライトは低価格であることからモールドタイプのチョークコイルやロータリートランス等への応用が考えられてきた^{1), 2)}。またボンデッドソフトフェライトの高周波特性を利用したVHF帯の電波吸収体の提案³⁾やデジタルノイズフィルターの開発⁴⁾も行われている。

ボンデッドソフトフェライトはフェライト粉末と樹

脂との混合成形体であるため透磁率が極めて小さい。この透磁率をいかに向上させるかがボンデッドソフトフェライトの課題である。この目的のために著者らはフェライト粉末や樹脂との混練及び射出成形に関する作製条件やコンパウンドの材料特性の最適化を研究してきた。その結果ボンデッドNiCuZnフェライトの透磁率を増大させることが可能であることを報告した^{5), 6)}。しかしボンデッドソフトフェライトの軟磁気特性と電気抵抗について報告はほとんど無い。そこで本研究では射出成形法によって作製したナイロン樹脂ベースのボンデッドNiCuZnフェライトの軟磁気特性と電気抵抗について報告する。

2 試料および実験方法

ボンデッドソフトフェライトに用いるNiCuZnフェライト粉末はFig. 1に示す様に通常の粉末冶金法によって作製した。このフェライト粉末作製工程の中で焼成は1000℃、4h、Air中の条件で行った。実験に供したフェライト粉末試料A, B, Cの作製条件をTable 1に示した。焼成後の粉末を粉碎し350 μ m粒子径以上の粉末を除去する分級を施した後、NiCuZnフェライト粉末試料とした。次にFig. 1に示す様にこのフェライト粉末とナイロン樹脂との結合を強くするため、任意の界面活性剤で粉末を表面処理し所定の条件で乾燥した。乾燥後凝集したフェライト粉末を解砕し、同時にナイロン樹脂を所定量添加し予備混合した後加熱混練した。加熱混練時に滑剤であるステアリン酸を所定量添加しコンパウンドを作製後、所定の成形条件で任意の形状に射出成形しボンデッドフェライト試料とした。この場合コンパウンド中のフェライト粉末の含有率は66.8~78.7vol%である。

NiCuZnフェライト粉末の結晶構造はCu-

Table 1 Preparation of NiCuZn ferrite powder samples.

No.	Preparation condition
A	Calcination at 900 °C
B	Sintered once at 1000 °C
C	Sintered three times at 1000 °C

K α ターゲットを用いたX線回折法（理学電機RAD-II B）によって同定した。フェライト粉末の粒子径は篩しんとう法により粉末の重量を測定して求めた。ボンデッドNiCuZnフェライトの密度はアルキメデス法（島津製作所SGM-2100）によって測定した。飽和磁化と異方性磁界は試料形状5 ϕ ×0.5mmディスクを用いてVSM（東英工業VSM-3）によって測定した。特に異方性磁界については反磁場の影響を補正して求めた。1kHz~10MHzの透磁率については試料形状8 ϕ ×4 ϕ ×1mmリングを用いてマクスウェルブリッジ法（L Fインピーダンスアナライザ-YHP4192A）によって測定した。測定磁界は0.2A/m、巻線抵抗は0.009 Ω 、巻線数は10ターンである。また1MHz~1GHzの高周波域の透磁率については試料形状4×4×0.4mm短冊を用いて1ターンコイル法^{7), 8)}によって測定した。この試料形状に於いて反磁場の影響がないことを確認した上で測定した。更に直流抵抗率は端子法（ハイレジスタメーター-HP4329A）によって測定した。試料形状は1×1×10mmの棒状であり電極面積は1mm²、電極は銀ペーストで形成した。

3 実験結果および考察

NiCuZnフェライト粉末のX線回折パターンをFig. 2に示した。供試A粉末は900℃で仮焼したフェライト粉末、B粉末はA粉末を1000℃で焼成した粉末、C粉末はA粉末を1000℃で3回繰り返し焼成した粉末である。いずれの粉末も同様にその回折パターンはスピネル結晶構造をとっており、仮焼、焼成によってフェライト化の反応が完全に行われていることがわかる。この3種類の粉末の(311)主ピーク、(440)サブピークの半値幅にも全く差が見られなかった。また蛍光X線による組成分析によっても3種類の粉末の組成に差がないことがわかった。Fig. 3にNiCuZnフェラ

Fig. 1 Experimental procedure for producing bonded NiCuZn ferrite.

Fig. 2 X-ray diffraction patterns of NiCuZn ferrite powders prepared in various sintering conditions.

イト粉末の粒径分布を示した。B粉末の様に焼成することによって粗大粉が著しく増加するが、更に焼成を繰り返すことによってC粉末の様に逆に粗大粉が減少していく。この様に焼成条件の違いによってA, B, C粉末の粒径分布が大きく異なってくる。

Fig. 4にボンデッドNiCuZnフェライトのフェライト粉末含有率と密度の関係を示した。図中のB/P比は(バインダー重量/粉末重量)比を意味する。粉末含有率と密度は直線関係にあり、粉末含有率の増加に伴って密度は直線的に増加し遂には粉末と同組成の焼結フェライトの密度と一致する。このことから粉末含有率を設定すればボンデッドフェライトの密度は一義的に決定されることがわかる。Fig. 5にボンデッドフェライトの飽和磁化 $4\pi M_s$ の密度依存性を示した。密度と飽和磁化はほぼ直線関係にあり、密度の増大と共に飽和磁化は直線的に増大し、遂には焼結フェライ

Fig. 3 Distribution of the particle size of NiCuZn ferrite powders.

Fig. 4 Relation between the ferrite powder content and density of bonded NiCuZn ferrites.

Fig. 5 Density dependence of the saturation magnetization of bonded NiCuZn ferrites.

トの飽和磁化と一致する。

Fig. 6にボンデッドフェライトの透磁率 μ' と異方性磁界 H_k の密度依存性を示した。ここで透磁率は100 kHzで測定した μ' である。透磁率は密度の増大に伴って漸増し究極的には焼結フェライトの透磁率まで近づいていくものと考えられる。他方、異方性磁界は逆に密度の増大に伴って漸減し究極的には焼結フェライトの異方性磁界まで近づいていくものと考えられる。これは、密度が増すと粒子間の接触がなくとも粒子間の平均距離が縮まることによって、静磁氣的相互作用が増大するために異方性磁界は減少するものと推測できる。透磁率は理論的には $4\pi M_s/H_k + 1$ で表されることから、密度が増すと当然ながら異方性磁界が減少し、Fig. 5に示したように飽和磁化が増大するために、結果として透磁率は増大すると考えられる。

次にこの求めたボンデッドフェライトの透磁率 μ と異方性磁界 H_k の関係をFig. 7に示した。図中の実線は磁化反転が一斉回転とした場合の透磁率の理論値 ($4\pi M_s/H_k + 1$) を示す。異方性磁界が900e以上では透磁率の実測値はこの理論値とほぼ一致することから、この領域では異方性の分散が比較的小さいことがわかる。他方、900e以下では透磁率の実測値は理論値から透磁率の低い方に大きく逸れることから、この領域では異方性の分散が大きいと考えられる。異方性磁界が

Fig. 6 Density dependence of the permeability μ' at 100 kHz and the anisotropy field H_k of bonded NiCuZn ferrites.

Fig. 7 Relation between the anisotropy field H_k and permeability μ at 100 kHz of bonded NiCuZn ferrites.

Fig. 8 Frequency dependence of the permeability μ' , μ'' of bonded NiCuZn ferrites and sintered NiCuZn ferrites.

Fig. 9 Frequency dependence of the permeability μ' , μ'' of bonded NiCuZn ferrites with ferrite powders prepared in various sintering conditions.

900e以下の密度が小さい領域では、粒子間距離が比較的長いため、隣接する粒子間の静磁氣的相互作用の大きさは集合した粒子全体に渡って均一であると推測できるが、900e以下の密度が比較的大きい領域では、粒子間距離が短くなるほど粒子形状と粒径分布に依存して、隣接粒子間に働く静磁氣的相互作用の大きさはそれぞれの粒子間で異なり不均一になっていくと考えられる。このため異方性の分散が大きくなると推測される。

Fig. 8に密度が4.30g/cm³であるボンデッドフェライトの透磁率 μ' , μ'' の周波数依存性を示した。比較のためボンデッドフェライトに用いたNiCuZnフェライト粉末と同組成の焼結フェライトについても示した。焼結フェライトと比較してボンデッドフェライトの μ' は著しく小さいが、その周波数特性は高周波側に大きくシフトする。約50MHz以上でボンデッドフェライトと焼結フェライトの透磁率が逆転しボンデッドフェライトの透磁率が上回る。Fig. 9にA, B, C, 3種類のフェライト粉末を用いたボンデッドフェライトの透磁率 μ' , μ'' の周波数依存性を示した。ボンデッドフェライトの透磁率はA, B, Cの順に高く、 μ' は10MHzまで一定であるが10MHz以上では徐々に減少していき1GHzで3~4に収束する。また μ'' は約7M

Fig. 10 Density dependence of the resonant frequency f_r of bonded NiCuZn ferrites.

Hzから現れ160~250MHzで最大値をとり、その最大値をとる周波数はC, B, Aの順に高周波側にシフトする。この μ'' が最大値をとる周波数からボンデッドフェライトの自然共鳴周波数を求め、Fig. 10に共鳴周波数 f_r の密度依存性を示した。ボンデッドフェライトの共鳴周波数は密度の増大と共に減少していくことがわかる。このこととFig. 6に示した透磁率と異方性磁界の密度依存性から、密度が増大することによりボンデッドフェライト中のフェライト粒子間距離が縮まり、粒子間の静磁氣的相互作用が大きくなっていくことが推測される。

Fig. 11にA, B, C, 3種類のフェライト粉末を用いたボンデッドフェライトの直流抵抗率 ρ の密度依存性を示した。直流抵抗率はバラツキが大きいものの、密度の増大と共に減少する傾向にある。これは、密度の増大に伴って粒子間距離が縮まり、粒子同士の接触点が増加するためであると考えられる。またA, B, Cの順に直流抵抗率は大きくなる傾向がある。これはA, B, C粉末それぞれの粒径分布に対応してボンデッドフェライト中の粒子同士の分布形態が異なるために、フェライト粉末の粒径分布に依存して抵抗率が大きく異

なるからであると考えられる。即ち、B, Cでは75 μ m以下の微粉が少なく75 μ m以上の粗粉が多いために、粒子同士の接触点がAと比べて確率的に少なくなり、その結果抵抗率が高くなると推測される。

4 まとめ

粒径分布の異なる3種類のNiCuZnフェライト粉末を用いたナイロン樹脂ベースのボンデッドソフトフェライトを射出成形によって作製し、その軟磁気特性と電気抵抗を測定した結果、次の様なことがわかった。

- (1) ボンデッドフェライトのフェライト粉末含有率と密度は直線関係にある。
- (2) 密度と飽和磁化はほぼ直線関係にあり、密度の増大と共に飽和磁化は増大し、遂には焼結フェライトの飽和磁化と一致する。
- (3) 密度の増大と共に透磁率と異方性磁界はそれぞれ漸増及び漸減し、究極的には焼結フェライトの透磁率と異方性磁界に近づいていくものと考えられる。
- (4) 異方性磁界が900e以上では透磁率は磁化反転が一斉回転とした場合の透磁率の理論値とほぼ一致するが、異方性磁界が900e以下では理論値から低い方に逸れる。
- (5) μ' は10MHzまで一定であるが、10MHz以上では徐々に減少していき1GHzで3~4に収束する。 μ'' は約7MHzから現れ160~250MHzで最大値をとる。
- (6) 自然共鳴周波数は密度の増大と共に減少していく。
- (7) 直流抵抗率はバラツキが大きいものの、密度の増大と共に減少する傾向にある。フェライト粉末の粒径分布に依存して直流抵抗率が異なる。

謝辞

高周波域でのボンデッドフェライトの透磁率を1ターンコイル法にて測定して頂き、かつ有益なご討論を頂いた東北大学科学計測研究所島田寛教授に深謝いたします。また日頃、ご指導頂き今般発表の機会を与えて頂いた電子デバイス事業本部青木副本部長に感謝いたします。

文献

- 1) 笹木真義：実開平1-139411。
- 2) 今野明，結城仁：特開平5-101952。

Fig. 11 Density dependence of the resistivity ρ of bonded NiCuZn ferrites with ferrite powders prepared in various sintering conditions.

- 3) 山本恵久, 中村龍哉, 薦岡孝則, 清水恵己, 半杭英二, 畠山賢一: 信学技報, EMCJ92-34 (1992) 27.
- 4) 西村誠一, 桑地靖士: National Technical Report, 39 (1993) 163.
- 5) 高橋芳美, 岩崎和春: 粉体および粉末冶金, 40 (1993) 863.
- 6) 岩崎和春, 下向仁, 細谷健, 伊藤洋: 粉体および粉末冶金, 40 (1993) 867.
- 7) 島田寛: 第10回スピニクス研究会資料, 93-4-2 (1993).
- 8) 霜田衛, 桑川一也, 永野尚志, 島田寛: マグネティックス研究会, MAG-93-117 (1993).