研 究

MgZn系フェライトの磁気損失について

金田 功, 青木 卓也, 村瀬 琢, 野村 武史

TDK(株)基礎材料研究所, 〒286-8588 千葉県成田市南羽鳥字松ヶ下570-2.

Core Loss of MgZn Ferrite

Isao Kanada, Takuya Aoki, Taku Murase and Takeshi Nomura

Material Research Center, TDK Corp., 570-2 Aza-Matsugasita Minami-Hatori, Narita 286-8588.

Received February 12, 1999

SYNOPSIS

The effects of substitution of Mn_2O_3 for Fe_2O_3 or CuO for MgO in MgZn ferrite have been studied in order to achieve low core loss, focusing on the microstructure, the initial permeability and the resistivity of MnZn, MnMgZn, and MnMgCuZn ferrites.

Initial permeability and resistivity of both MnMgZn and MnMgCuZn ferrites are higher than those of MgZn ferrite. Intragrain pores were observed in all of these ferrites. The pore density increases with grain growth.

The core loss of these ferrites consists of hysteresis loss and eddy current loss at frequencies lower than 120kHz. Hysteresis loss clearly depends on initial permeability because of magnetic anisotropy, grain size and pore density. It has been found that eddy current loss is related to the microstructure and not to the resistivity. It is suggested that the decrease in the amount of pores inside the grains is effective to lower hysteresis and eddy current losses.

Substitution of Cu enables MgZn ferrite to be sintered at lower temperatures, and it leads to the reduction of the core loss because of the formation of fine microstructure having small grain and low pore density. The lowest core loss (320kW/m^3 at 100°C , 100mT and 100kHz) was achieved in the case of 11mol% CuO material sintered at 1120°C .

KEY WORDS

core loss, hysteresis loss, eddy current loss, grain size, pore

1 緒 言

フェライトは日本において数多くの先端研究がなされ、世界に先駆けて工業化が行われた材料である。そして、電子工業の発展とともに電子部品として不可欠な素材まで発展した。ソフトフェライトに要求される特性は用途によって様々であるが、一般には透磁率、飽和磁束密度が大きく、キュリー温度が高いことが好ましく、損失は小さいことが望ましい。しかしながら、これらの要求をすべて満足することは難しく、どの特性を重要視するかによって材質は異なる。

MgZn系フェライトはコストパフォーマンスに優れていることから、主に偏向ヨーク用コア材料として多量に生産されている。偏向ヨーク用コアとしては、低コストであること、消費電力と温度上昇を抑えるために低い磁気損失であることが求められる。最近では、高品位テレビや高精細度ディスプレイ用として画像の精細度を向上させるために、水平偏向周波

数を高くする動きがあり、高い周波数領域においても磁気損失が低いことが求められている。

近年、MgZn系フェライトの高性能化を図るために、組成、微量成分、製造プロセスなどの各種検討が行われている¹⁻³⁾。本研究ではFeをMnに置換、MgをCuに置換した材料を作製し、微細構造が電磁気特性に及ぼす影響について調べた。MgZn系フェライトのコアロス低減のために有効ないくつかの知見が得られたので報告する。

2 実験方法

工業用原料の Fe_2O_3 、 Mn_2O_3 、 $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 、 CuO 、 ZnO を所定の組成に秤量し、鋼鉄製ボールミルを用いて16h湿式配合した後、乾燥した。得られた配合粉を空气中にて 900°C で2時間仮焼成を行った。得られた仮焼粉を鋼鉄製ボールミルで16h湿式粉碎し、乾燥した。得られたフェライト粉末にPVAを0.6wt%

加え、30メッシュの金網を通して顆粒を作製した。その後1000kg/cm²の圧力でトロイダル形状(外形24mm, 内径12mm, 厚さ6mm)に成形し、空気中にて1000~1375°Cで3時間焼成した。得られた焼結体の組成およびキュリー点をTable 1に示す。焼結体のインダクタンスは、LCRメーター(YHP 4192A)を用いて測定した。磁気損失は、B-Hアナライザ(IWATSU SY8232)により測定した。磁気損失P_{cv}の分離は、次式に基づいて行った。

$$P_{cv} = K_1 f + K_2 f^2 + K_3 f^3 + \dots$$

(f: 周波数, $K_1, K_2, K_3, \dots$: 定数) (1)

$K_1 f$: ヒステリシス損失, $K_2 f^2$: 渦電流損失,

3次以上の項の総和: 残留損失

熱収縮挙動については、直径5mm長さ7mmの成形体を用いてTMA(Rigaku CN8098F2)により調べた。微細構造については、試料を鏡面研磨した後フッ酸水溶液で腐食を施し光学顕微鏡で観察した。結晶粒径は、180 μ m×140 μ mの範囲に存在する個々の粒子を画像処理装置(旭化成 IP-1000)を用いて円相当径に換算して求めた。結晶粒内のポアの数、腐食後の試料の70 μ m×55 μ mの範囲から数えた。また、元素分布は電子線プローブマイクロアナライザー(EPMA)により解析した。

3 実験結果および考察

3.1 組成による焼結性と磁気特性の変化

組成A~Eの試料について焼結時の収縮挙動を調べた。結果をFig.1に示す。Cuを置換していないMgZnフェライト(組成A)およびMnMgZnフェライト(組成B)は、850°C付近より収縮を開始し、850°C以上では温度の上昇に伴い収縮量が増加する。一方、Cuを置換したMnMgCuZnフェライト(組成C, D, E)では、収縮の開始する温度は組成A, Bとほとんど変わらないが、Cu置換量が多くなるほど温度の上昇に対する収縮率が増加する傾向にある。また、Cu置換量の増加に伴い組成Cで1300°C, 組成Dで1250°C, 組成Eで1150°Cと収縮がほぼ終了

Fig.1 Shrinkage as a function of the temperature.

する温度も低くなる。このことは、比較的低い温度で焼結が進むCuフェライトがMgZn系フェライトに固溶していることによって緻密化が顕著に進んだものと予想される。

次に、焼成温度と100°C, 30mT, 100kHzの磁気損失(コアロス)の関係をFig.2に示す。いずれの組成においてもコアロスが最小となる焼成温度が存在する。その焼成温度は、組成AとBではともに1325°C, 組成Cでは1225°C, 組成Dでは1075°C, 組成Eでは1025°Cと、Cu置換量が多くなるに従って低くなる。また、最適な焼成温度におけるコアロスの値は、組成Aでは41kW/m³であるのに対し、Mn置換を行った組成Bでは38kW/m³の値に低減される。Cu置換量の増加に伴いコアロスはさらに低減され、組成Eでは最も低い22kW/m³の値が得られる。コアロスに影響を及ぼす代表的な因子として、結晶磁気異方性、抵抗率、微細構造等が挙げられ、MnおよびCuで置換することによってこれらが変化しているものと推定される。

3.2 初透磁率および抵抗率とコアロスの関係

作製した試料のコアロスの分離を行った。周波数fと1周期あたりのコアロスP_{cv}/fとの関係をFig.3に示す。前述の(1)式から、fとP_{cv}/fが間に比例関係にある場合、y切片は周波数fに付随する定数K₁を、傾きは周波数の2乗f²に付随する定数K₂を示す。各組成において、fとP_{cv}/fの間には比例関係が得られていることから、120kHz以下の範囲では周波数の3次以上の項が無視できるものと考えられる。よって、作製した試料のコアロスはK₁fとK₂f²で構成されていることがわかる。Mn置換を行った組成Bは、組成Aと比較してy切片は小さいものの傾きが大きい。従って、K₁fの値は低減されているものの、K₂f²の値は増加していることがわかる。ゆえに120kHzより高周波領域においても比例関係が成り立っているとすれば、損失の大きさは組成Bの方が組成Aよりも高くなるものと予想される。次に、MnおよびCuで置換を行った組成C, D, Eでは、Cu置換量が多くなるに従いK₁fおよびK₂f²の両者とも低減されていることが分かる。

Fig.2 Sintering temperature dependence of core loss.

一般に K_1f はヒステリシス損失, K_2f^2 は渦電流損失と呼ばれ, それぞれに影響を及ぼす代表的な因子として, 結晶磁気異方性および抵抗率が知られている⁴⁾. 初透磁率は結晶磁気異方性と強い相関があることから, 初透磁率と K_1f の関係を調べた. 結果を Fig.4 に示す. 初透磁率が高い材料ほど K_1f の値が低下する傾向にある. また, 組成 A では初透磁率が1800以下であるのに対し, Mn 及び Cu を置換した組成物では 2000~2500 程度の高い初透磁率が得られる. Table 1 に示すように, それぞれの組成物のキュリー温度は $140 \pm 5^\circ\text{C}$ の範囲にあることから, Mn および Cu の置換により結晶磁気異方性が低下し, K_1f が低減されているものと考えられる.

渦電流損失については一般に次式⁴⁾

$$\text{渦電流損失} = (\pi dBf)^2 / (C\rho) \tag{2}$$

ρ : 抵抗率, d: 渦電流径, C: 定数, B: 動作磁束密度,
f: 周波数

で与えられ, 抵抗率と渦電流損失は反比例の関係にある. 抵

Fig.3 Frequency dependence of core loss.

Fig.4 Relationship between initial permeability and K_1f on MgZn ferrite.

抗率と K_2f^2 との関係を Fig.5 に示す. (2) 式で示される反比例の関係は認められない. また, (2) 式から渦電流径が K_2f^2 に影響しているとも考えられる. MnZn系フェライトにおいては, 添加物等により粒界を高抵抗化することで渦電流損失を低減できることが知られており⁹⁾, 渦電流径に影響を与える因子としては結晶粒径等の微細構造が考えられる.

3.3 微細構造のコアロスに及ぼす影響

組成 A~E の試料の微細構造を Fig.6 に示す. 試料によって結晶粒径は異なるものの, 焼成温度が高くなるに従って結晶粒径が大きくなる傾向にある. また, コアロスが最小になる焼成温度での微細構造を比較すると, 組成 A, B, C では結晶粒径が $12 \sim 13 \mu\text{m}$ であるのに対し, Cu 置換量の多い組成 D, E では $3 \sim 7 \mu\text{m}$ である. これは Cu 置換量によってコアロスが最も小さくなる焼成温度が異なっているためと予想される. 結晶粒内に着目すると, 全ての試料において $1 \sim 2 \mu\text{m}$ 程度の大きさの幾何学的な形状をした穴が観察される. 組成 B の試料について腐食時間を変えて微細構造を観察した. 結果を Fig.7 に示す. 研磨面には腐食前から空孔が存在しており, 腐食時間が長くなるに従いそれらが四角形に変化していくことが確認できる. また, このような変化は他の組成物においても観察された. また, 腐食前後で数が多くなっているが, 研磨した表面直下のポアが腐食によって表出, または, 不純物, 析出物

Table 1 Chemical composition and curie temperature of samples.

	Fe ₂ O ₃	Mn ₂ O ₃	MgO	CuO	ZnO	Tc
					(mol%)	(°C)
A	50.2	0.0	28.3	0.0	21.5	142
B	48.2	2.1	28.6	0.0	20.7	135
C	48.0	2.1	23.8	4.3	21.8	144
D	48.0	2.1	18.6	8.1	23.3	140
E	48.0	2.1	13.1	11.9	24.9	138

Fig.5 Relationship between resistivity and K_2f^2 on MgZn ferrite.

Fig.6 Microstructures of the MgZn ferrites.

Fig.7 Change of pore shape through etching time.

等の原因が考えられる。粒内のポアがある結晶面方向に沿って腐食され、幾何学形状の穴ができたと考えられる。次に、結晶粒径と 1mm^2 当たりの粒内のポアの数(以後ポアの濃度)との関係を Fig.8 に示す。結晶粒径の増大に伴いポアの濃度が高くなる傾向が認められる。粒内のポアは粒成長の段階で結晶粒内に取り残されたものと考えられる。

結晶粒径は初透磁率および渦電流径に影響を及ぼすことから、結晶粒径とコアロスの関係を調べた。結果を Fig.9 に示す。

Fig.8 Relationship between grain size and pore density.

K_{if} の値は結晶粒径 $3\sim 10\mu\text{m}$ で最小値をとり、 $10\mu\text{m}$ 以上では粒径の増大に伴い増加する傾向にある。結晶粒径と初透磁率の関係を Fig.10 に示す。初透磁率は結晶粒径が $7\mu\text{m}$ 付近で最も高く、粒径がより大きくなると低下しており、Fig.9 の K_{if} の値の変化と対応している。純度等の作製条件を厳しく制御した MnZn フェライトでは、結晶粒径の増大に伴い磁壁移動が容易となり、初透磁率が高くなることが知られている⁹⁾。すなわち本結果では粒径の増大に伴い、静的なヒステリシスの面積を増大させるような他の因子が結晶粒内に増加していることが予想される。

一方、 K_d^2 の値は粒径の増大に伴い単調に増加する傾向に

ある。しかしながら、粒径を渦電流径と仮定した場合、(2)式に示されるような粒径の2乗に比例した K_2f^2 の変化は見られない。従って、結晶粒径と渦電流径は一致しないものと推定される。渦電流径については、粒界成分や測定条件である動作磁束密度や温度の影響も考慮する必要があると思われる、今後の検討課題である。

静的なヒステリシスの面積を増大させる因子として、異相、欠陥、ポアなどの存在が挙げられる。偏析物の存在を調べるためにEPMAで組成の分布を調べた。結果をFig.11に示す。この系ではCu, Mg, Znの偏析が推定される。しかしながら、焼成温度の異なる組成A, Eの試料において偏析物は認められない。特に組成Eにおいて今回作製した試料ではコアロスの最小となる焼成温度より高い場合でも、それらの偏析は認められなかった。このことから、 K_1f の値を増加させた因子は偏析

物ではないと判断される。

ポアの濃度とコアロスの関係をFig.12に示す。コアロスの測定は、動作磁束密度(Bm) 30mT, 100mT および温度 20°C, 60°C, 100°Cで行った。動作磁束密度30mTの場合の K_1f の値はポアの濃度 3×10^4 個/mm²付近で最小となり、それ以上ではポアの濃度が高くなるに従い増加している。結晶粒内のポアが磁壁移動の障害になっていることが推測され、粒内のポアの増加に伴い動作磁束密度における静的なヒステリシスの面積が増大し、 K_1f の値が増加しているものと考えられる。一方、動作磁束密度が100mTでは、30mTの場合と比較して、ポアの濃度が低い時の K_1f の値が大きく、また最低値となるポアの濃度は $5 \sim 7 \times 10^4$ 個/mm²となっている。動作磁束密度が大きい場合は磁壁の移動距離が長くなるため、ポアだけでなく粒界の影響が大きくなり、静的なヒステリシスの面積に影響してくると予想される。次に、測定温度の影響を比較すると、測定磁束密度30mTおよび100mT共に測定温度が高くなるに

Fig.9 Relationship between grain size and core loss.

Fig.10 Relationships between grain size and initial permeability.

MgZn Ferrite(A)			MnMgCuZn Ferrite(E)			
	Mg	Zn		Mg	Zn	Cu
1325℃			1050℃
1350℃			1075℃

30 × 33 μm

Fig.11 EPMA images of MgZn ferrite.

Fig.12 Relationships between and pore density and core loss.

Fig.13 Temperature dependence of core loss.

Fig.14 Microstructure of MnMgCuZn ferrite.

従って K_1f は低い値を示している。これらの試料では温度の上昇に伴いキュリー温度直下まで初透磁率が単調に上昇することから、温度の上昇に伴い結晶磁気異方性が低下することが影響しているものと考えられる。

次に粒内のポアの濃度が K_2f^2 の値に及ぼす影響についてみると、動作磁束密度が30mT, 100mTのどちらの場合もポアの濃度の増加に対し単調に増加する。また、測定温度による値の差が小さいことが分かる。MgZn フェライトでは20°Cから100°Cの温度上昇に伴い100kHzにおける抵抗率が1桁ほど変化する。これらのことから、抵抗率が K_2f^2 に影響してないことが考えられ、 K_2f^2 は(2)式で示される渦電流損失ではないものと推定される。しかしながら、 K_2f^2 は結晶粒径および粒内のポアの濃度の影響を受けることから、微細構造と何らかの関係があることを示唆している。内部応力、空孔、夾雑物を

もつ一様でない磁性体は、規則的な磁区構造をとり得ないことが知られており⁷⁾、結晶粒径および粒内のポア、さらには粒界構造は磁区の形成に影響を及ぼすことが考えられる。磁区構造および磁化機構を考察することにより、 K_2f^2 に影響を及ぼす要因が明らかにされることが期待される。

以上の結果をふまえ、組成および焼成の検討を行った結果、 Fe_2O_3 47.4mol%, Mn_2O_3 2.0mol%, MgO 15.6mol%, ZnO 24.0mol%, CuO 11.0mol%の組成物を1020°Cで焼成することにより100°C, 100mT, 100kHzの条件で320kW/m³の低いコアロスが得られた。その試料の温度とコアロスの関係をFig.13に示す。また、その微細構造をFig.14に示す。既存のMnMgZn フェライトに対し、100°Cにおいて40%コアロスが低減された。Cu置換により、結晶磁気異方性が小さくなったこと、比較的低い温度で焼成できることにより、粒成長に伴う粒内へのポアの

残留が抑えられたことがコアロスの低減を図るために有効であったものと考えられる。

4 結 論

化学量論組成の MgZn フェライト, MnMgZn フェライト, MnMgCuZn フェライトを作製し, コアロスの解析を行った結果, 以下の結論を得た。

- (1) 作製した MgZn 系フェライトの結晶粒内にはポアが存在し, 結晶粒が大きいほどポアの濃度は高くなる。
- (2) Cu 置換を行うと低い温度で焼結が進行し, 結晶粒径が小さくポアの濃度の低い微細構造が得られる。
- (3) 初透磁率が高いほど K_1f の値は小さくなり, 結晶磁気異方性の低下, ポアの濃度の低下によって低減する。
- (4) K_2f^2 の値は, 結晶粒径の減少, ポアの濃度の低下によって低減する傾向にあり, 抵抗率との相関は確認できなかった。

文 献

- 1) 村瀬 琢, 五十嵐克彦, 山崎恒祐, 野村武史, 落合達四郎: "偏向ヨーク用 MnMgZn 用フェライトの磁氣的性質", 第17回日本応用磁気学会学術講演概要集, (1993)289.
- 2) 村瀬 琢, 五十嵐克彦, 山崎恒祐, 野村武史, 落合達四郎: "MnMgZn フェライトの磁気損失について", 日本応用磁気学会誌, 19(1995)413-416.
- 3) 沢井 淳, 村瀬 琢, 野村武史: "CuO 置換による MnMgZn フェライトの低損失化", 日本応用磁気学会誌, 21(1997)915-918.
- 4) 太田恵造: 磁気工学の基礎 II, 共立全書, (1990)309.
- 5) 岡本祥一, 近 圭一郎: マグネットセラミックス, (1985)206.
- 6) 平賀貞太郎, 奥谷克伸, 尾島輝彦: 電子材料シリーズ フェライト, (1986)90.
- 7) 近角総信, 太田恵造, 安達健五, 津屋 昇, 石川義和 編集: 磁性体ハンドブック, 朝倉書店, (1997)895.