研 究

リチウム亜鉛フェライトの複素透磁率スペクトル

宮本 剛, 中村 龍哉, 山田 義博

姫路工業大学大学院工学研究科電気系工学専攻, 〒671-2201 姫路市書写 2167.

Complex Permeability Spectra of Polycrystalline Li-Zn Ferrites

Tsuyoshi Miyamoto, Tatsuya Nakamura and Yoshihiro Yamada

Department of Electrical Engineering and Computer Sciences, Graduate School of Engineering, Himeji Institute of Technology,
2167 Shosha, Himeji 671-2201.

Received March 11, 2003

SYNOPSIS

Polycrystalline Li-Zn ferrites were prepared by the ceramic sintering method, and their complex permeability spectra were measured. The low-frequency permeability decreased with an increase in the Li-ferrite fraction. However, the natural resonance frequency shifted higher when the fraction of Li-ferrite was increased. According to our previous model, the complex permeability spectra were numerically separated into spin rotation and domain wall motion contributions. For the spin rotational component, which played an important role in the high frequency region, the static spin susceptibility decreased and the spin resonance frequency shifted higher with an increase in the Li-ferrite fraction. The product values of the static spin susceptibility and the spin resonance frequency, corresponding to the Snoek's product value, took a maximum value at a certain fraction of Li-ferrite. This was reflected to the performance of the single layered electromagnetic wave absorber using the polycrystalline ferrites.

KEY WORDS

Ferrite, complex permeability, spin rotational component, Snoek's product, EM-wave absorber

1 結 言

フェライトの誘電率および透磁率は周波数に依存する。多結晶フェライトの複素透磁率スペクトルには自然共鳴が存在し¹⁻³⁾, 高周波領域での透磁率スペクトルに制限を加えている。これはスヌークの限界則として知られているものである⁴⁾。

複素透磁率スペクトルは磁化過程と密接に関係している。磁化機構として、磁壁移動と磁化回転の2つが考えられる。これまでの我々の研究で⁵⁻⁷⁾, 複素透磁率スペクトルは、磁壁移動成分と磁化回転成分に分離でき、100MHz以上の高い周波数領域では、主に磁化回転成分で決定されることが分かった。さらに、磁化回転成分のパラメータからスヌーク限界則に対応する値を定義できることも分かった。

本研究では、スピネル型フェライトの中で、比較的磁化の大きいLi-Znフェライトを取り上げた。スヌーク限界則の観点から複素透磁率スペクトルを考察し、他のスピネルフェライトの結果と比較を行った。さらに、Li-Znフェライトを用いた単層型電磁波吸収体への応用を検討した。

2 試料の作製および実験方法

Li-Znフェライトは、固相反応法により作製した。出発原料として Li_2CO_3 , ZnO および Fe_2O_3 を、化学組成が $\text{Li}_{0.5x}\text{Zn}_{1-x}\text{Fe}_{2+0.5x}\text{O}_4$ ($x=0.3\sim0.8$) となるように秤量、混合した。混合粉末各10gをプレス成型し、900°Cで5時間仮焼した。その後、粒子径が1mm以下になるまで粗粉碎し、さらにこの粉末を湿式法により微粉碎した。得られた粉末を再度プレス成型し、この成型体を1150°Cで5時間焼結させた。走査型電子顕微鏡(JEOL, JSM-5310)を用いて、多結晶フェライトの微細構造を観察した。振動試料型磁力計(TOEI KOGYO, VSM-5)を用いて、フェライト焼結体の磁化を測定した。透磁率を測定するために、超音波加工機(日本電子工業UM-300C)を用いて、外径7mm、内径3mmのリング状サンプルを作製した。周波数100kHzから100MHzの複素透磁率は、インピーダンスアナライザ(Hewlett Packard, HP-4194A)を用いて、周波数50MHzから6GHzの複素透磁率は、ネットワークアナライザを用いて測定した。

3 実験結果および考察

粉末X線回折の結果, 焼結体サンプルはいずれもスピネル単相であり, Nelson-Relay法により求めた格子定数は, Li-フェライトの含有率 X の減少とともに直線的に減少し, Vegard則に従っていることが分かった. 焼結体の相対比重は組成によらず, いずれも95%以上であり, 緻密な焼結体サンプルが得られた. SEM観察より, 粒子サイズは平均して約 $5\mu\text{m}$ であり, 組成によらずほぼ一定であった. 磁化の値は, X の増加とともに増大し, $X=0.75$ で最大値をとった後, わずかに減少した. この変化の様子は, collinear スピン構造から Yafet-Kittel 三角スピン構造へのスピン構造の変化と, ネール点の変化から説明できると思われる.

Fig.1に, 今回作製した多結晶フェライトの複素透磁率スペクトル($\mu = \mu' - j\mu''$)を示す. これは典型的な自然共鳴のスペクトルである. 約2MHz以下の低周波数帯での μ' は, X の増加とともに減少した. 一方, 約300MHz以上の高周波数帯での μ' は, X の増加とともに増加した. μ'' が最大となる自然共鳴周波数は, X の増加とともに, 2MHzから25MHzへと高周波側にシフトした.

これまでの研究から, 多結晶フェライトの複素透磁率スペクトルは, 以下のようにして共鳴型で周波数の2乗に逆比例する磁壁移動成分 $\chi_{sp}(\omega)$ と, 散逸係数が非常に大きく, 周波数に反比例した緩和型となる磁化回転成分 $\chi_{dw}(\omega)$ に数値的に分離できることが分かっている⁵⁻⁷⁾. すなわち, 複素透磁率は以下のようにあらわすことができる.

$$\mu(\omega) = 1 + \chi_{sp}(\omega) + \chi_{dw}(\omega), \quad (1)$$

$$\chi_{sp}(\omega) = K_{sp} \left[1 + j(\omega/\omega_{sp}) \right], \quad (2)$$

$$\chi_{dw}(\omega) = K_{dw} \omega_{dw}^2 / [\omega_{dw}^2 - \omega^2 + j\beta\omega]. \quad (3)$$

ここで, ω は外部磁界周波数, K_{sp} は静的回転磁化率, ω_{sp} は磁

化回転共鳴周波数, K_{dw} は磁壁移動の静的磁化率, ω_{dw} は磁壁移動共鳴周波数, β は磁壁移動の減衰摩擦係数である. 磁壁移動による磁化率は低い周波数で減少し, 高周波領域では, 周波数に対する依存性の違いから磁化回転成分の寄与が極めて大きくなる. ゆえに, 100MHz以上の高い周波数領域の透磁率は, 主に磁化回転成分で決まることが分かっている.

式(1)~(3)を実験で得られたLi-Znフェライトの複素透磁率スペクトルに適用し, 各成分のパラメータを数値的に決定した. 以下では, 100MHz以上の高い周波数領域で主な働きを示す磁化回転成分のパラメータのみを議論する. 磁化回転成分の各パラメータの化学組成 X に対する変化をFig.2に示す. この図より, 静的回転磁化率 K_{sp} はLi-フェライトの含有量 X の増加とともに減少し, 磁化回転共鳴周波数 ω_{sp} は X の増加とともに高周波側へシフトすることが分かる. これらの K_{sp} と ω_{sp}

Fig.2 The variations of static spin susceptibility (open circle) and spin resonance frequency (open triangle) with the chemical composition of polycrystalline Li-Zn ferrite, $\text{Li}_{0.5x}\text{Zn}_{1-x}\text{Fe}_{2+0.5x}\text{O}_4$.

Fig.1 The complex permeability spectra of polycrystalline Li-Zn ferrite, $\text{Li}_{0.5x}\text{Zn}_{1-x}\text{Fe}_{2+0.5x}\text{O}_4$, with the chemical composition X : (a) real and (b) imaginary parts.

の組成による変化は、低周波数での透磁率と自然共鳴周波数の変化に各々対応している。

静的回転磁化率と磁化回転共鳴周波数の積はスノーク積に対応するものであることが分かっている。そこで、Li-Znフェライトのスノーク積を計算し、化学組成 X の関数としてFig.3に示す。スノーク積の値は、 X の増加とともに増加し、 $X=0.75$ で最大値をとり、その後わずかに減少した。さらに、Fig.4に磁束密度とスノーク積の関係を示す。この図には、他の多結晶スピネルフェライト(Ni-Znフェライト、Mg-Znフェライト、Ni-Zn-Cuフェライト)の実験データも含めてプロットした。スノーク積はフェライトの種類によらず、磁束密度と比例関係にあることが分かる。またこの図より、いくつかのLi-Znフェライトは比較的大きなスノーク積を持つ事が分かった。

最後に、金属板で裏打ちをした単層型電磁波吸収体への応

用を考える。反射係数 $\Gamma(\omega)$ は以下のように表される。

$$\Gamma(\omega) = 20 \log \left| \frac{Z(\omega) - Z_0}{Z(\omega) + Z_0} \right| \quad (4)$$

ここで Z_0 は自由空間の固有インピーダンス、 ω は入射電磁波の角周波数、 $Z(\omega)$ は電磁波吸収体の固有インピーダンス(入力インピーダンス)である。この $Z(\omega)$ は以下のように与えられる。

$$Z(\omega) = Z_0 (\mu/\epsilon)^{1/2} \tanh \left[j(\omega d/c)(\epsilon\mu)^{1/2} \right] \quad (5)$$

ここで、 c は真空中での電磁波の進行速度、 d は吸収体の厚さ、 ϵ と μ はそれぞれ電磁波吸収体の複素誘電率と複素透磁率である。式(4)と(5)、及び実験で得られた複素誘電率と複素透磁率の値を用いて、吸収特性を評価すること、および最適の整合厚さを求めることができる。Li-Znフェライトを用いた電磁波吸収体の特性をFig.5とTable 1に示す。Table 1には、吸収の中心周波数、整合厚に加えて、反射係数が -20 dB以下となる周波数帯域も示した。その結果、100 MHzから1 GHzの周波数領域の比較的広範囲の吸収体を得られることが分かった。中心周波数は150 MHzから850 MHzの値をとり、 X の増加とともに増加、 $X=0.75$ で最大値をとり、その後減少した。整合厚さは、 X の増加とともに5.5 mmから3.0 mmと減少し、最小値となった後増加した。この吸収特性の変化はインピーダンスの整合条件を考えることで説明できる。入力インピーダンスは、吸収体の厚さ d が入射する電磁波の波長 λ に比べて十分に小さい時、次のように近似できる。

$$Z(\omega) = Z_0 j(\omega d/c)\mu \quad (6)$$

大きな吸収が得られる周波数帯では、透磁率の虚数部が実数部に比べて十分大きいので、更に以下のように近似できる。

$$Z(\omega) = Z_0 \omega d\mu''/c \quad (7)$$

Fig.3 The variation of Snoek's product value versus the chemical composition of polycrystalline Li-Zn ferrite, $\text{Li}_{0.5x}\text{Zn}_{1-x}\text{Fe}_{2+0.5x}\text{O}_4$.

Fig.4 The variation of Snoek's product value with the magnetization flux for various polycrystalline ferrites: Li-Zn ferrite (open triangle) and the other ferrite studied in the previous paper (small dot). The solid line is an extrapolation of the experimentally obtained values.

Fig.5 The electromagnetic wave absorption spectra of the single layered absorbers using the polycrystalline Li-Zn ferrite, $\text{Li}_{0.5x}\text{Zn}_{1-x}\text{Fe}_{2+0.5x}\text{O}_4$.

Table 1 The center frequency, the matching thickness and the absorption band for the polycrystalline Li-Zn ferrite single layered absorbers.

Composition <i>X</i>	Matching Thickness (mm)	Center Freq. (MHz)	Absorp. Band (MHz)
0.4	5.5	150	90 – 220
0.5	4.5	250	170 – 360
0.6	4.0	340	240 – 480
0.7	3.5	550	390 – 750
0.75	3.0	850	650 – 1000
0.8	4.0	530	400 – 650

ここで、透磁率の虚数部は、静的スピン磁化率の寄与のみを考えると次のように表される。

$$\mu'' = K_{sp} \omega_{sp} \omega / (\omega_{sp}^2 \omega^2). \quad (8)$$

さらに、透磁率の虚数部が実数部に比べて十分大きい周波数では、 $\omega_{sp} \ll \omega$ であるから

$$Z(\omega) = Z_0 d K_{sp} \omega_{sp} / c. \quad (9)$$

即ち、スヌーク積 $K_{sp} \omega_{sp}$ の大きなものほど単位厚さあたりの入力インピーダンスが大きくなり、空間の固有インピーダンス Z_0 と整合させるための厚さ d が薄くなることを示している。吸収体の整合厚さは、スヌーク積の値を直接反映しているものであることが分かった。

4 結 論

多結晶 Li-Zn フェライトを固相反応法で作製し、複素透磁率スペクトルを評価した。透磁率の絶対値はLi-フェライトの含有率とともに減少し、逆に共鳴周波数は高周波数側にシフトした。得られた複素透磁率スペクトルを、数値計算を用いて磁化回転成分と磁壁移動成分に分離することができた。磁化回転成分より、Li-フェライトの含有率の増加とともに、静的スピン磁化率は減少しスピン共鳴周波数は高周波数側にシフトした。スヌーク積に対応する静的スピン磁化率とスピン

共鳴周波数の積は、磁化に比例する事が分かった。高周波数領域では磁化回転成分の寄与が極めて大きくなり、スヌーク積は多結晶フェライトを用いた単層電磁波吸収体のような高周波デバイスのよい指標となることが示された。

文 献

- 1) G.T.Rado: "Magnetic spectra of ferrites", Rev. Mod. Phys., 25 (1953)81-89.
- 2) D.Polder and J.Smit: "Resonance phenomena in ferrites", Rev. Mod. Phys., 25(1953)89-90.
- 3) J.Smit and H.P.J.Wijn: Ferrites, Phillips Technical Library, Eindhoven, The Netherland, (1959).
- 4) J.L.Snoek: "Dispersion and absorption in magnetic ferrites at frequencies above one megacycle", Physica XIV, 4(1948)207-217.
- 5) T.Nakamura and T.Tsutaoka: "Low temperature sintering in Ni-Zn-Cu ferrite", Proceedings of 4th International Conference on Electroceramics and Applications, (1994)1149-1154.
- 6) T.Nakamura: "Low-temperature sintering of Ni-Zn Cu ferrite and their permeability spectra", J. Magn. Magn. Mater., 168 (1996)285-291.
- 7) T.Nakamura: "Experimental study on high-frequency permeability in polycrystalline Ni-Zn, Mg-Zn and Ni-Zn-Cu ferrites", J. Appl. Phys., 88(2000)348-353.