CuO 置換による MnMgZn フェライトの低損失化

Low Core Loss Characteristics of MnMgZn Ferrite with Substituted CuO

沢井 淳・村瀬 琢・野村武史

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

J. Sawai, T. Murase, and T. Nomura

TDK Materials Research Center, 570-2 Aza-Matsugashita, Minami-hatori, Narita, Chiba 286

The effects of substitutive CuO for MgO on the core loss characteristics of MnMgZn ferrite were studied with reference to the initial permeability, microstructure, and conductivity. Superior core loss was achieved by CuO 2-5 mol % substitution in MnMgZn ferrite. Substitution of CuO is effective in reducing both hysteresis and eddy current losses. This improvement can be correlated with uniformly sized grains and high resistivity. High resistivity attained by CuO substitution in MnMgZn ferrite reduced core loss at high frequencies.

Key words: MnMgCuZn ferrite, CuO, core loss, hysteresis loss, eddy current loss

1. はじめに

フェライトは電子材料として歴史のある材料であるが、現在でも有力な電子材料としての地位を保っている。近年、電子部品は小型化、高密度化、低コスト化が求められているのに伴い、フェライト部品においてもさらなる電磁気特性の向上が望まれている。テレビのブラウン管上に画面を構成させるのに必要な偏向ヨークコアは、とりわけ低コスト化の要求が強い。そのため、主に原料コストが安価な MnMgZn フェライトが用いられている。偏向ヨークコアに求められている特性として、低損失、高磁束密度、高寸法精度などが挙げられる。近年、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要求から、水平偏向周波数を高くすることが考えられている。高周波数化に伴う発熱を抑えるために、偏向ヨークコアにおいては、高周波数領域においても低損失な材料が求められている¹⁾。

原料コストが安価な MnMgZn フェライトで高周波領域に対応した低損失な材料を得るために、組成、微量成分、製造プロセスなどの検討が行われてきた²⁾。MnMgZn フェライトの磁気損失はヒステリシス損失に依存しており、結晶磁気異方性を小さくすることが磁気損失の低減に有効であるとの報告もなされている³⁾。本研究では、MnMgZn フェライトのさらなる低損失化を目指し、NiZn 系フェライトにおいて、古くから低損失に有効な成分である CuO を MnMgZn フェライトに置換し、CoO の置換が微細構造、電気的特性に及ぼす影響について検討した。

2. 実験方法

工業用原料の Fe₂O₃, Mn₂O₃, MgO, ZnO, CuO を所望の組成に秤量し、鋼鉄製ボールミルを用いて 16 時間湿式配合後、乾

燥した。得られた混合粉を空気中にて 900°C で 3 時間仮焼を行った。得られた仮焼粉を鋼鉄製ボールミルで 16 時間湿式粉碎し、MnMgCuZn フェライト粉末を作製した。このフェライト粉末にバインダーとして 0.6 wt%PVA を加え造粒し、トロイダル形状(外径 24 mm, 内径 12 mm, 厚さ 5.5 mm)およびディスク形状(直径 12 mm, 厚さ 1.8 mm)に成形した。これらを空気中で、1200~1300°C で 1~3 時間焼成した。得られた焼結体のコアロス、B-H アナライザー (IWATSU 製 SY-8232) で測定した。ヒステリシス損失および渦電流損失は次式⁴⁾より分離を行った。

$$P_L = P_h + P_e = (K_h \times f + K_e \times f^2) \times B^n \times V_e$$

(P_L : コアロス, P_h : ヒステリシス損失, P_e : 渦電流損失, K_h : ヒステリシス損失係数, K_e : 渦電流損失係数, f : 駆動周波数, B : 駆動磁束密度 V_e : 実効体積)

電磁気特性は LCR メーター (HP 製 4192A, HP 製 E2377A), 絶縁抵抗器 (YHP 製 4329A) および RF インピーダンスメーター (YHP 製 4194A) を用いて測定した。焼結体の微細構造の観察は光学顕微鏡 (OM) および透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いた。

3. 結果および考察

Fe₂O₃=48 mol%, Mn₂O₃=2 mol%, ZnO=22 mol%, 残留 MgO の試料において、MgO の一部を CuO に置換した MnMgZn フェライトの 100°C, 50 mT, 64 kHz におけるコアロス、ヒステリシス損失、渦電流損失を Fig.1 に示す。CuO を置換することによってコアロスが徐々に低減されており、CuO

Fig. 1 Effect of CuO-substitution in MnMgZn ferrite on core loss.

Fig. 2 Temperature dependence of initial permeability.

Fig. 3 Microstructures of MnMgZn ferrites sintered at 1250°C. Grain size: (a) 6.10 μm; (b) 17.45 μm; (c) discontinuous G. G.

の置換が2~5 mol% でコアロスが最小となる。しかしながら、CuO の置換が5 mol% 以上で増加しているのが分かる。ヒステリシス損失はコアロスと同様な傾向を示している。渦電流損

Table 1 Effect of CuO-substitution in MnMgZn ferrites on core loss

CuO(mol%)	0	3.08	6.13
Core loss (kw/m ³)	92	46	64
Hysteresis loss (kw/m ³)	65	27	42
Eddy current lose (kw/m ³)	28	18	23

(64 kHz, 50 mT, 100°C)

失はCuO の置換が2~5 mol% でわずかながら低減している。CuO の置換によるコアロスの低減は、顕著なヒステリシス損失の低減とわずかな渦電流損失の低減により起こったものと考えられる。ヒステリシス損失を低減させるためには初透磁率を向上させることが有効であることが知られている¹⁾。初透磁率の向上のためには、結晶磁気異方性、磁歪定数が小さくなる組成であることが望まれる。初透磁率は構造に敏感な特性であり、組成以外にも複雑な要因が関与している。結晶粒径を大きくし単位断面積当たりの磁壁数を増加させて磁壁移動を速やかにすることや⁵⁾、空孔、不純物などを少なくし磁壁のピンニングを減らすことで磁壁移動を速やかにすることが望まれる⁶⁾。そこで、CuO の置換が初透磁率に及ぼす影響についてCuO を0 mol%、コアロスの低減が図れたCuO の置換3 mol%、コアロスが増加したCuO を6 mol% 置換したMnMgZn フェライトについて調べた。

各々の試料の初透磁率の温度特性をFig. 2に示す。温度が上昇するに伴い、CuO を置換したMnMgZn フェライトでは初透磁率が増加する傾向が見られる。コアロスの低減が図れたCuO を3 mol% 置換したMnMgZn フェライトはCuO を6 mol% 置換したMnMgZn フェライトよりも初透磁率が増加しているのが見られた。CuO の置換により、結晶磁気異方性が小さくなることや、結晶粒径が均一に大きくなり、空孔が少なくなることが予想される。そこで、CuO を0 mol%、3 mol%、6 mol% 置換したMnMgZn フェライトの微細構造について調べた。

CuO を0 mol%、3 mol%、6 mol% を置換したMnMgZn フェライトの微細構造を観察するために、それぞれの焼結体内部を研磨し、フッ酸水溶液でエッチング処理を施した。1250°C、1時間で焼成した各々の試料の微細構造をFig. 3に、コアロスをTable 1に示す。コアロスの低減が図れたCuO を3 mol% 置換したMnMgZn フェライトの結晶粒径ではCuO が0 mol% のMnMgZn フェライトに比べて大きいことが分かる。CuO を3 mol% 置換したMnMgZn フェライトでは、結晶粒径が大きくなったために、磁壁数が多くなり、磁壁移動による磁化過程が優勢になったので100°C、50 mT、64 kHzにおけるコアロスが小さくなったものと推測される。コアロスが増加したCuO を6 mol% 置換したMnMgZn フェライトの微細構造からは、結晶が異常粒成長し、粒内に大きな空孔が観察された。CuO を6 mol% 置換されたMnMgZn フェライトでは、粒内空孔の増加による磁壁のピンニングが増えて磁壁移動が妨げ

Fig. 4 Microstructures of MnMgZn ferrites. Grain size: (a) 20.72 μm ; (b) 17.45 μm . Sintering temperature: (a) 1300°C; (b) 1250°C.

Table 2 Effect of CuO-Substitution in MnMgZn ferrites on core loss

CuO(mol%)	0	3.08
Core loss (kw/m ³)	57	46
Hysteresis loss (kw/m ³)	35	27
Eddy current lose (kw/m ³)	21	18
(64kHz, 50mT, 100°C)		
Initial permeability	1406	2089
(100°C)		

られることや、結晶の異常粒成長による結晶の不揃いから生じる内部応力の影響によるものと予想される。CuOの融点は1064°Cであるが、今回検討した各試料の焼成条件は1200~1300°C, 1時間である。CuOの置換量が多くなると、CuOの融点より高い温度で焼成しているために液相が生じ、結晶の異常粒成長、粒内空孔の増加により、コアロスが増加するものと予想される。一方、CuOの置換量が少ない場合、1200~1300°C, 1時間の焼成条件では焼結反応が十分でないために結晶粒径が小さく、コアロスが増加する要因の一つになると考えられる。各々の組成においても、最適な条件で焼成することでコアロスの低減を図れると予想される³⁾。そこで、CuOが0 mol%のMnMgZnフェライトを1300°C, 3時間にて焼成し、1250°C, 1時間にて焼成したCuOを3 mol%置換のMnMgZnフェライトとはほぼ同様の結晶粒径の試料を作製した。各々の試料の微細

Fig. 5 X-Ray microanalysis across the grain boundary of MnMgCuZn ferrite.

構造を Fig. 4 に、コアロスおよび初透磁率を Table 2 に示す。Table 1 で示した 1250°C, 1 時間で焼成した CuO が 0 mol% の MnMgZn フェライトよりも結晶粒径が大きいために磁壁数が増加し、磁壁移動による磁化過程が優勢になり、ヒステリシス損失が低減し、コアロスが低減したものと考えられる。しかしながら、CuO が 3 mol% 置換した MnMgZn フェライトの方がヒステリシス損失が低減したため、コアロスが低減している。CuO 3 mol% 置換した MnMgZn フェライトは 100°C における初透磁率も大きい。CuO 置換は結晶磁気異方性を小さくし、コアロスの低減に影響を及ぼしていると予想される。

フェライトにおいて、粒内および粒界の微量成分の濃度分布の変化が損失に影響を及ぼすことはよく知られている¹⁾。MnMgZn フェライトに CoO を置換することで、微量成分の濃度分布が変化していることが予想された。そこで、コアロスの低減の要因となっている Cu および使用した工業用原料に微量に含まれている Si, Ca が結晶粒内および粒界にどのように分布しているか TEM-EDS により焼結体の粒界近傍の組成について定量分析を行った。CuO を 0 mol%, 3 mol% 置換した MnMgZn フェライトの粒界近傍における Cu および微量成分 Si, Ca の濃度を Fig. 5 に示す。微量成分である Si, Ca は CuO の置換の有無に関わらず粒界部に多く分布する傾向が見られているが、粒内にも分布している。これら粒内の微量成分の存在により、内部応力を大きくすることや、磁壁移動を妨げることが予想される。微量成分を粒界部へ高濃度に分布させることにより、さらなる低損失が図れるものと予想される。Cu については粒界部に多く分布しているが、明らかに粒内にも分布して

Fig. 6 Temperature dependence of the conductivity.

Fig. 7 Frequency dependence of the core loss.

いる。Cu が粒内、粒内に固溶することにより、結晶磁気異方が小さくなることが予想される。しかしながら、粒内、粒界における Cu 濃度とコアロスの関係は、現段階において明確になっておらず、今後の検討課題である。

Cu が粒内、粒界に存在することから、CuO の置換の有無により導電機構が異なり、渦電流損失に影響を及ぼしていることが予想される。そこで、導電率の温度変化を測定した。焼成条件 1250°C、1 時間における CuO を 0 mol%、3 mol% 置換した MnMgZn フェライトの導電率の温度特性を Fig. 6 に示す。CuO を置換することで抵抗が高まる傾向が見られたことから、渦電流損失が低減した要因の一つと考えられる。

さらに、MHz 域を含む高周波領域における MnMgZn フェライト、CuO を置換した MnMgZn フェライト、NiCuZn フェライトのコアロスについて調べた。各々のフェライトの一周期当たりの周波数特性を Fig. 7 に示す。ここで、 P_{cv}/f - f プロットにおいてコアロスの分離より、 y 切片がヒステリシス損失、傾きが渦電流損失となる。MnMgZn フェライトはヒステリシス損失、渦電流損失とも NiCuZn フェライトに比べて損失が大きくなるが、CuO を置換した MnMgZn フェライトではヒステリシス損失、渦電流損失とも NiCuZn フェライトとほぼ同等の値を示した。MnMgZn フェライトでは MHz 域でヒステリシス損失、渦電流損失以外の残留損失も見られるが、CuO を置換した MnMgZn フェライトでは残留損失が見られなかった。しかしながら、MHz 域において残留損失が見られなかった要因は CuO の置換による影響によるものかは明確にできず、今後の検討課題である。

4. ま と め

- (1) MnMgZn フェライトに CuO を 2~5 mol% 置換することで、コアロスの低減が図れた。この要因は、ヒステリシス損失と渦電流損失の低減のためである。
- (2) CuO を置換した MnMgZn フェライトにおいて、Cu は粒内および粒界に存在しているが、Cu 濃度は粒界の方が高い。
- (3) MnMgZn フェライトに CuO を置換することで抵抗を高めることができた。

文 献

- 1) 平賀貞太郎, 奥谷克伸, 尾島輝雄: 電子材計シリーズ フェライト, p. 118 (1986).
- 2) 村瀬 琢, 五十嵐克彦, 山崎恒祐, 野村武史, 落合達四郎: 第 17 回日本応用磁気学会学術講演概要集, p. 289 (1993).
- 3) 村瀬 琢, 五十嵐克彦, 山崎恒祐, 野村武史, 落合達四郎: 日本応用磁気学会誌, 19, 413 (1995).
- 4) 北川武生, 今泉 啓, 三井 正: 日本応用磁気学会第 37 回研究会, p. 1 (1984).
- 5) E. Ross, I. Hanke, and E. Maser: *Z. Angew. Phys.*, 17, 504 (1964).
- 6) A. Broese, P. Bongers, and A. Stuyts: *Mater. Sci. Eng.*, 3, 317 (1968/69).

1996 年 10 月 18 日受理, 1997 年 3 月 5 日採録