

Co<sub>2</sub>Z 型フェライトの磁気構造と透磁率

(東工大) 中川 貴、多田 大、阿部 正紀  
 (阪大) 高田 幸生\*現豊田中研、徳永 仁寿、山本 孝夫  
 (原子力機構) 石井 慶信、井川 直樹  
 (日立金属(旧 NEOMAX)) 橋 武司

## 緒言

Co<sub>2</sub>Z 型フェライト (Ba<sub>3</sub>Co<sub>2</sub>Fe<sub>24</sub>O<sub>41</sub>) は、フェリ磁性で、複雑な六方晶系の結晶構造をもち、結晶磁気異方性が大きく *c* 軸が磁化困難軸 (*c* 面が磁化容易面) となる。この Z 型フェライトの透磁率の限界周波数  $f_R$  (透磁率の実部が低周波域での値の半分になる自然共鳴周波数) はおよそ 850 MHz で、そのときの透磁率の虚部の値  $\mu''$  は約 10 程度に、低周波で透磁率が一定であるときの透磁率の実部の値  $\mu_s'$  は 13 程度を示す。このため、数百 MHz から数 GHz のデバイス材料として期待されている。本研究では、透磁率の向上と限界周波数の制御を目的として、Co<sub>2</sub>Z 型フェライトの Co の Fe への置換と、Ba の Sr への置換を試み、その試料の透磁率を測定した。また、回転磁場配向をさせて、透磁率を向上させた。これらの置換がどのように透磁率に影響するのかを調べるために、高温中性子回折で Z 型フェライトの磁気特性も評価した。

## 実験

BaCO<sub>3</sub>(99.7%)、SrCO<sub>3</sub>(99.8%)、Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>(99.9%)、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(99.5%) の金属組成が Ba<sub>3-x</sub>Sr<sub>x</sub>Co<sub>2-y</sub>Fe<sub>24+y</sub> となるように混合し、仮焼成した。得られた仮焼成粉を静水圧プレスで成型し、本焼成した。焼成時の温度 *T* と酸素分圧  $P_{O_2}$  をパラメータとし、各組成で Z 型のほぼ単相が得られる条件を模索した。得られた試料の一部を粉末化し、X 線回折 (Cu-K $\alpha$ 線) で相同定した。また、焼成体を外径 7mm 内径 3mm のトロイダル形状に加工し、同軸型 S パラメータ法サンプルホルダー (関東電子応用, CSH2-ATC7) を用いて、100 MHz ~ 6 GHz の範囲で透磁率を測定した。粉末中性子回折実験を原子力機構の JRR-3 炉に設置してある HRPD で行った。回転磁場配向法では、得られた試料を印加回転磁場 1 T 中で磁場配向し、回転磁場に垂直に 130 MPa のプレスをした後に再焼成して試料を合成した。

## 結果と考察

$P_{O_2}$  が低い条件で得られた Z 型フェライトより、 $P_{O_2}$  が高い条件で合成した Z 型の方が透磁率は高い傾向があることがわかった。これは、焼成時に十分な  $P_{O_2}$  がないと酸素欠損ができ、Fe<sup>3+</sup> の一部が Fe<sup>2+</sup> に還元されることに起因すると考えられる。 $P_{O_2} = 21.3$  kPa で焼成した基本組成のフェライトでは、 $\mu_s'$  が 13 であるのに対し、 $P_{O_2} = 101.3$  kPa で焼成した  $y = 0.2$  のフェライトは、 $f_R$  を約 900 MHz に維持したまま、その  $\mu_s'$  は 20 まで向上させることができる。

Z 型フェライトの透磁率を向上させるには、回転磁場中での配向が有効である。回転磁場面に垂直に磁化困難軸 (*c* 軸) を揃えることができるので、完全に配向させた場合は無配向の場合に比べ *c* 面内の透磁率が 3 倍になるからである。図 1 に 1573 K で  $P_{O_2} = 21.3, 61.3, 101.3$  kPa の条件で焼成した無配向と回転磁場配向させた基本組成のフェライトの  $\mu'$  の周波数依存性を示す。 $P_{O_2} = 61.3$  kPa の試料の  $\mu_s'$  はちょうど 3 倍大きくなっていることがわかる。粉末中性子回折でこれらの試料の磁気構造を解析すると、 $P_{O_2} = 21.3$  の場合、結晶中の磁気モーメントと *c* 軸のなす角は 78°、 $P_{O_2} = 61.3$  の場合は 90°、 $P_{O_2} = 101.3$  では 85° であることがわかった。モーメントの傾きが *c* 面に近いほど回転磁場配向の効果が大きくなっている。このことは、高透磁率材料を合成するためには、無配向状態の透磁率が高いだけでなく、磁気モーメントが *c* 面内に完全に横たわっていることも重要な要素であることを意味している。

Ba を Sr に置換していくと、 $f_R$  を高周波側にシフトさせることができる。Snoek 積  $\mu_s' f_R$  は  $x = 1.0$  のときに 23.3 GHz に達し、立方晶系の Ni-Zn フェライトの Snoek 積の 5.6 GHz と比べると、4 倍程度も大きくなる。中性子回折の結果から、Ba の一部を Sr に置換すると Co の入り得るサイトが増えることがわかった。Co は *c* 面に磁気モーメントを寝かせる効果があり、これが結晶中に広く分布することで、*c* 面内の異方性磁界がより小さくなるため、Snoek 積が大きくなったと説明できる。

## 結論

Z 型フェライトの主な実用的な用途として、現在のところ積層インダクタ、アンテナ、電磁波吸収材が提唱されている。それぞれ用途によって、 $\mu_s'$  が大きい、 $\mu_s'$  が大きくかつ  $\mu''$  が小さい、 $\mu''$  が大きい、といった特性が求められている。いずれの用途であっても、Z 型フェライトを配向させることで効果を上げることが可能である。したがって、実用材料として Z 型フェライトの研究を進めていく上では、簡便に Z 型フェライトを配向させる技術を確立することが重要である。それと同時に、配向による効果が最大となる *c* 面内に完全に磁気モーメントが寝ている材料を開発することも重要なポイントとして挙げられる。

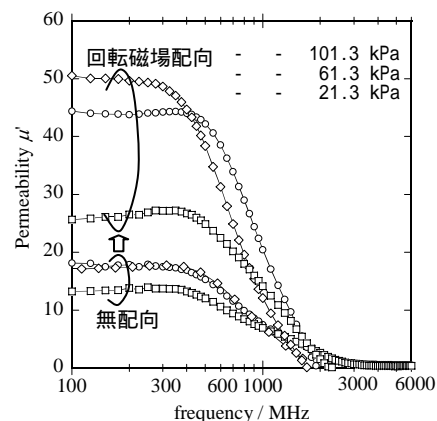


図 1 回転磁場配向による透磁率の向上

なかがわ たかし、ただ まさる、あべ まさのり、たかだ ゆきお、とくなが まさとし、やまもと たかお、  
 いいし よしのぶ、いがわ なおき、たちばな たけし