

## 研究

## 放電プラズマ焼結法による軟磁性コア材の作製

山本 節夫<sup>☆1</sup>, 棚町 信次<sup>☆1</sup>, 堀江 真司<sup>☆1</sup>, 栗巢 普揮<sup>☆1</sup>, 松浦 満<sup>☆1</sup>, 石田 浩一<sup>☆2</sup><sup>☆1</sup>山口大学工学部, 〒755-8611 宇部市常盤台 2-16-1.<sup>☆2</sup>山口県産業技術センター, 〒755-0151 宇部市あすとぴあ 4-1-1.

## Fabrication of Soft Magnetic Core Using Spark Plasma Sintering

Setsuo Yamamoto<sup>☆1</sup>, Nobutsugu Tanamachi<sup>☆1</sup>, Sinji Horie<sup>☆1</sup>, Hiroki Kurisu<sup>☆1</sup>, Mitsuru Matsuura<sup>☆1</sup>  
and Kouichi Ishida<sup>☆2</sup><sup>☆1</sup>Faculty of Engineering, Yamaguchi University, 2-16-1 Tokiwadai, Ube 755-8611.<sup>☆2</sup>Yamaguchi Prefectural Industrial Tech. Institute, 4-1-1 Asutopia, Ube 755-0151.

Received February 28, 2000

## SYNOPSIS

Ferrite disk cores and laminated disk cores composed of Ferrite and Permalloy films were prepared by Spark-Plasma-Sintering (SPS) method. Soft magnetic ferrite disk core with small number of void was obtained when SPS was carried out for long time. Ferrite/Permalloy laminated disk core prepared by SPS shows high bonding strength, high saturation magnetic flux density and superior soft magnetic properties at high frequencies. This laminated disk core is one of the promising candidates for high performance new magnetic core used in inductors, transformers and magnetic heads of card reader.

## KEY WORDS

Spark Plasma Sintering, Mn-Zn ferrite, magnetic core, laminated core

## 1 まえがき

近年, 携帯用通信機器等の薄型化が著しい。それに伴いそれらに使用されているアイソレータ, トランス, インダクタといった磁気デバイスに対して薄型化・高周波化・高性能化が強く求められている。また, 磁気カードリーダーの分野においては, 読み書き信号の高周波化, メディアの高抗磁力化が進行している。このような状況の中で, 高い周波数帯において高い透磁率を示し, かつ大きな飽和磁束密度を持つ磁気ヘッドコア材の開発が望まれている。

センダストやパーマロイといった金属磁性材料は大きな飽和磁束密度を持つが, 高い周波数帯では渦電流損の影響で透磁率が低下してしまう。一方, 酸化物であるソフトフェライトは, 渦電流損は小さいものの本質的に飽和磁束密度が低い。したがってこのような high  $B_s$ , 高周波で high  $\mu$  という要求に対して単体の材料で対応するのは困難であり, 複合化した磁性コア材料の開発が必要である。

金属磁性材料においては渦電流損を低減させるために, 金属磁性材料を薄くして絶縁体との積層構造体にするという方法が行われている。しかし, 非磁性の絶縁体を用いていると飽和磁束密度は確実に減少してしまう。そこで筆者らは, 絶

縁層として電気抵抗の大きく, かつ軟磁性を示すフェライトを用いれば, 非磁性の絶縁体を用いるよりも, 飽和磁束密度の減少を最小限にできるのではないかと考えた。

本研究ではまず, 基礎検討として放電プラズマ焼結 (Spark Plasma Sintering, SPS) 法を用いて, ソフトフェライト焼結体の作製を行った。さらには, 高周波磁気デバイスへの応用を目指して, 高  $B_s$  で高周波数帯において高  $\mu$  を示す薄板状のフェライト/金属磁性積層体の作製を試みた。

## 2 放電プラズマ焼結法の導入

フェライトの焼結体およびフェライト/金属磁性積層体の作製には, 放電プラズマ焼結法を導入した。この放電プラズマ焼結法は, 近年各種セラミックス材料の焼結や異種材料の接合に利用されはじめている焼結法であるが, 本手法を磁性材料の焼結に応用した例は現在までのところ極めて少ない<sup>1)</sup>。

本研究で実際に使用した装置は, イズミテック(株)製小型放電プラズマ焼結装置 (SPS-511S) である。Fig.1 に焼結チャンバー内の構造図を示す。円筒状のグラファイト製ダイと円柱状のグラファイト製パンチを組み, その中に粉体試料を入れる。それをパンチ電極で挟んで加圧するとともに, 直流のパ

ルス電流を通電する。電流の大部分は上部パンチ電極→パンチ→ダイ→パンチ→下部パンチ電極の順に流れてジュール熱を発生し、試料を外側から加熱するのに使われる。残りの一部分の電流が粉体試料を流れる。粉体試料に直流のパルス電流を通電することで、粉体粒子間隙に火花放電が発生し、火花放電によって瞬時に発生する放電プラズマの高エネルギーが熱拡散・電解拡散などへ効果的に利用されるといわれている。

本研究で行ったフェライト/金属磁性積層体の作製においては、異種材料であるフェライトとパーマロイを強固に接合することが重要である。強固に接合できれば、機械加工によって積層体を切断加工できるので、デバイスに应用する際の加工コストを安くできるからである。強固な接合を実現するために、SPS法は非常に適した手段である。

### 3 実験方法

#### 3.1 Mn-Zn フェライト焼結体の作製

フェライト/金属磁性積層体の作製に先立ち、SPS法におけるMn-Znフェライト自体の最適焼結温度や焼結体の磁気特性などの基礎事項を把握するために、まず、Mn-Znフェライトのみの焼結実験を行った。

Fig.2に本実験で設定した焼結中の焼結温度および加圧力の時間変化を示す。Fig.1のようにグラファイト製のダイとパンチを組んでその中に原材料粉を入れてチャンバー内にセットした。そのあと、パンチ電極で58.8MPaに加圧し、直流パルス電流の通電を開始して、100°C/minの速度で昇温させた。1000°Cの焼結温度に達したあとはその温度である一定時間だけ保持した(この時間を『保持時間』と呼ぶことにする)。保持時間が終わると直ちに加圧力を取り去り、通電をストップ

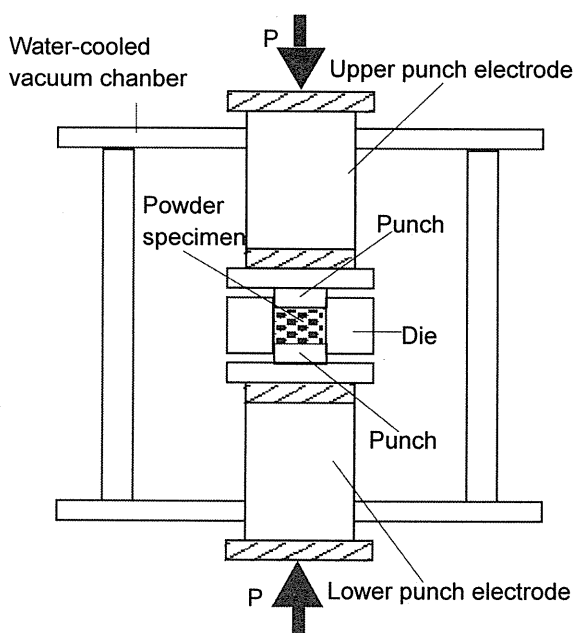


Fig.1 Spark plasma sintering apparatus.

し、チャンバー内で冷却した。

本実験では、焼結体試験片のサイズがφ15mm×1mmになるように、内径15mmのダイの中に、Mn-Znフェライト粉末を1g充填した。ソフトフェライトは、戸田工業(株)製Mn-Znフェライト粉(Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:MnO:ZnO=53.5:32.2:14.3(mol%))を使用した。

作製したMn-Znフェライト焼結体の磁気特性は振動試料型磁力計(VSM)およびH<sub>c</sub>メーターを、結晶構造はX線回折装置(XRD)を、表面観察は走査型電子顕微鏡(SEM)を用いて評価した。

#### 3.2 フェライト/金属磁性積層体の作製

金属磁性材料としては、45パーマロイ薄帯(B<sub>s</sub>=1.34T, H<sub>c</sub>=656A/m)を使用し、絶縁層として用いるフェライトは、フェライト焼結体の作製に使用したのと同じ戸田工業(株)製のMn-Znフェライト粉末を使用した。

積層体のサイズがφ15mmとなるように、内径15mmのグラファイト製ダイの中にパーマロイ薄帯を敷き、その上にMn-Znフェライト粉末を敷き詰めた。フェライトとパーマロイが交互に積層されるよう、これを2~5回繰り返し、一番上にまたパーマロイ薄帯を敷いた。

Fig.2と同じプロセス条件でSPS接合した結果、厚みが1mmの積層体を作製した。

作製した焼結体の磁気特性は振動試料型磁力計(VSM)およびH<sub>c</sub>メーターを、元素分析は電子プローブマイクロアナライザ(EPMA)を用いて評価した。積層体の接合強度はFig.3に示す方法で測定した。積層体の上面にスタッドと呼ばれる治具を接着し積層体を固定した後、図中の矢印の方向に一定速度で荷重をかけていき、スタッドと積層体が離れたときの荷重を、接合強度とした。

### 4 実験結果と考察

#### 4.1 Mn-Zn フェライト焼結体の作製

X線回折結果をFig.4に示す。(a)は使用した原材料粉末、(b)は保持時間5分、加圧力0.6tf/cm<sup>2</sup>として作製した焼結体のX線回折パターンを示している。

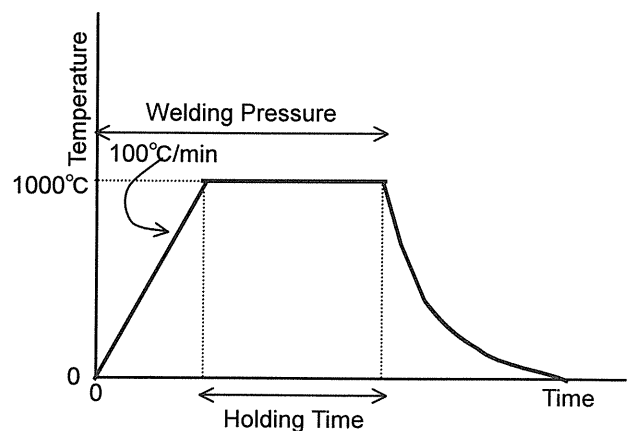


Fig.2 Sintering processing condition.

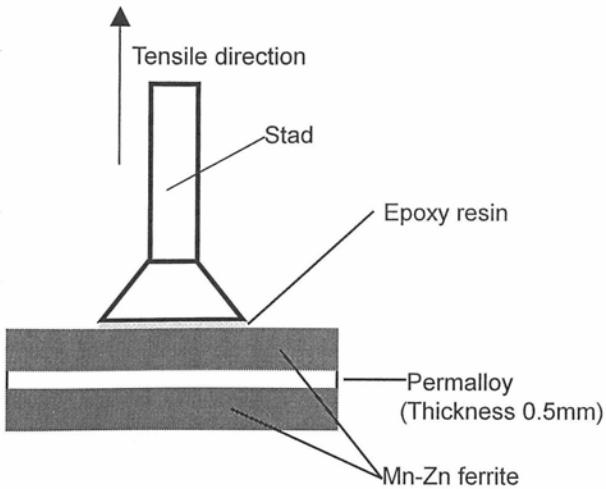


Fig.3 Measurement method of bonding strength of laminated sample.

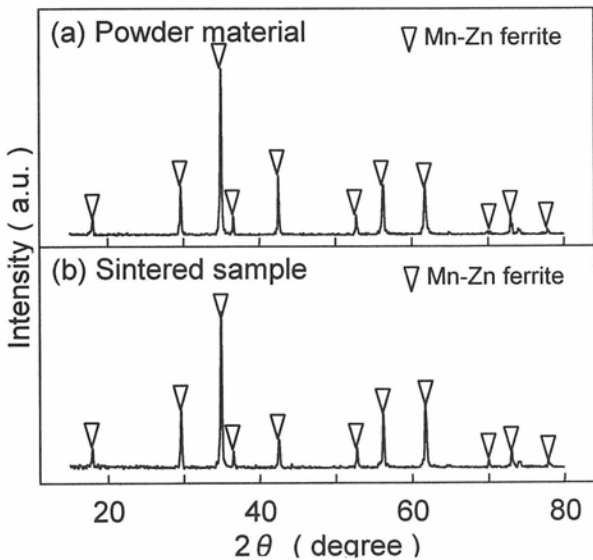


Fig.4 X-ray diffraction diagrams of powder material and sintered sample.

この図から、使用したフェライト粉末およびSPS法で作製した焼結体のどちらについてもMn-Znフェライトの回折ピークのみが得られた。このことから、焼結前後で構造が変化していないことがわかる。

Fig.5は作製した焼結体の抗磁力 $H_c$ と焼結体1g当たりの飽和磁化 $\sigma_s$ を焼結時の保持時間に対してプロットしたものである。

作製した焼結体の飽和磁化は $1.0 \times 10^{-4} \text{Wb} \cdot \text{m/kg}$ 程度の値を示している。これはバルクのMn-Znフェライトでの値とほぼ同じ値である。このことから、ポイドが少なく密度の高い焼結体を得られたといえる。抗磁力は、保持時間を長くすると減少する傾向が見られる。今回の実験の範囲では、保持時間を15分とした場合、抗磁力が183 A/m程度の軟磁性を示す焼結体を作製できた。これは、保持時間を長くすることで焼結が進行したためであると思われる。

作製した焼結体を研磨し、その表面の様子をSEMで観察した結果をFig.6に示す。(a)は今回放電プラズマ焼結法で作製

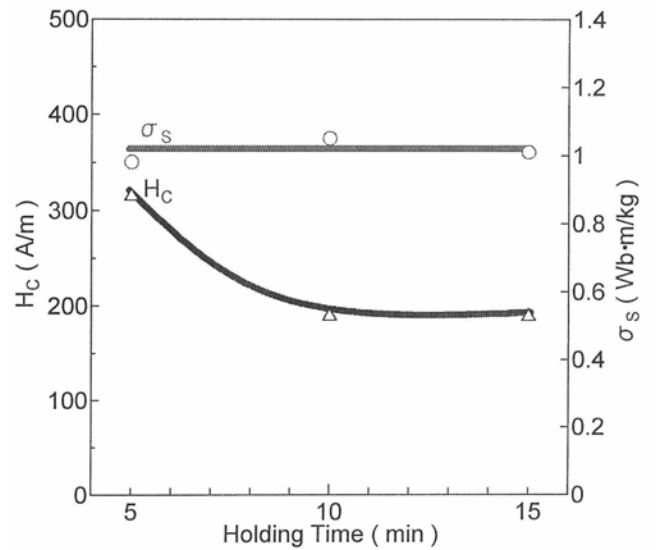


Fig.5 Dependence of  $H_c$  and  $\sigma_s$  on holding time for sintered samples.

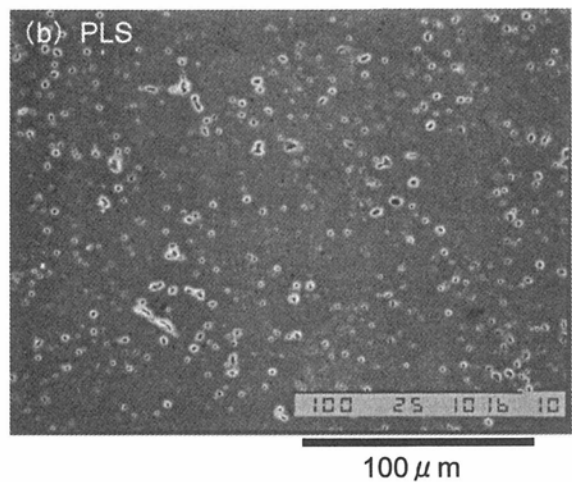
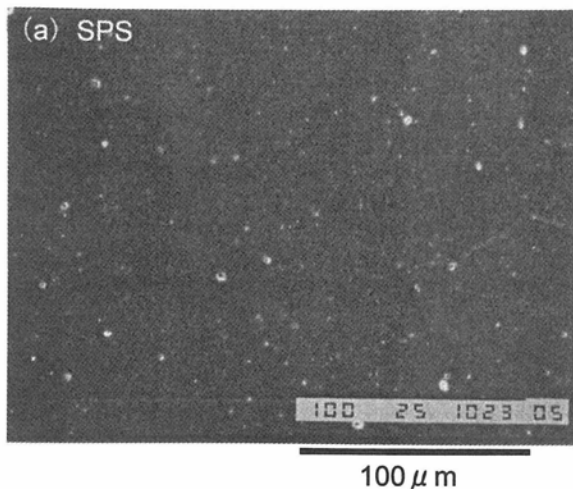


Fig.6 SEM image of polished surface of sintered sample.

した焼結体で, (b)は比較のために, 常圧焼結法で作製した焼結体の表面のSEM写真である。

二つの写真を比較すると, 常圧焼結法で作製された焼結体には, 数 $\mu\text{m}$ 程度の気孔が多数見られるのに対し, 今回放電プラズマ焼結法で作製した焼結体では, 明らかに気孔が少ないことがわかる。放電プラズマ焼結法は加圧しながら焼結を行う方法であるので, 緻密な焼結体を作製できることが確認できた。

#### 4.2 フェライト/金属磁性積層体の作製

本実験で作製した積層体はすべて, パーマロイとフェライトの界面がかなり強固に接合されていた。そこで作製した積層体の接合強度を測定した。

測定の結果, 荷重が10MPaのときにスタッドと積層体が離れた。Fig.7は, 測定後の積層体の断面を示した写真である。この写真から, フェライトとパーマロイの界面で剥離したのではなく, 図中に破線で示したフェライトの部分で破壊が起こり, スタッドが離れたことが分かった。よって積層体のフェライトとパーマロイ間の接合強度は少なくとも10MPa以上であり, かなり強固に接合されていることが確認できた。

そこで, 積層体の界面の状態を調べた。測定サンプルはパーマロイを3層として作製した積層体を用い, 電子プローブマイクロアナライザでパーマロイの構成元素であるNiに注目して, Ni元素の分布状態を調べた。その結果をFig.8に示す。図中の白い部分はNiが多く分布していることを, 黒い部分はNiが存在していないことを示している。この図の真中のパーマロイ層に注目すると, Ni元素が多少両側のフェライト部分の間隙に拡散していることが分かった。このことから, パーマロイがフェライト部分に拡散することが, 強力な接合界面が実現された主な原因と思われる。

次に, SPS法で作製した積層体の磁気特性について調べた。

Fig.9は, 保持時間10分として作製した積層体の $H_c$ を焼結時の加圧力に対してプロットしたものである。この積層体は, 厚さ0.05mmのパーマロイ薄帯を3層とし, 間にはさんだフェライトはそれぞれ0.3gとして作製した。

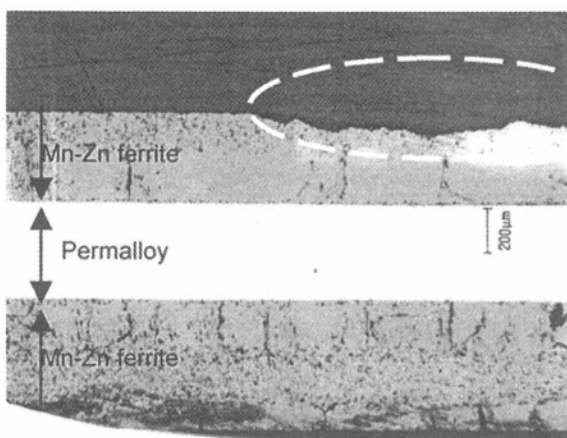


Fig.7 Cross sectional view of laminated sample after bonding strength test.

この図から, 積層体については, 加圧力を低くしたほうが軟磁気特性の良いものを作製できるということが分かった。加圧力を大きくするにつれて軟磁気特性が悪くなるのは, パーマロイの拡散量が増大するためではないかと思われる。また積層体の $H_c$ は, 使用したパーマロイの $H_c$ (656 A/m)よりも小さい値になった。これは, 焼結中にパーマロイが熱処理された効果も含まれているためである。

そこで, 加圧力を29.4 MPaとして保持時間を変化させて積層体を作製した。Fig.10は, 積層体の $H_c$ を保持時間に対して

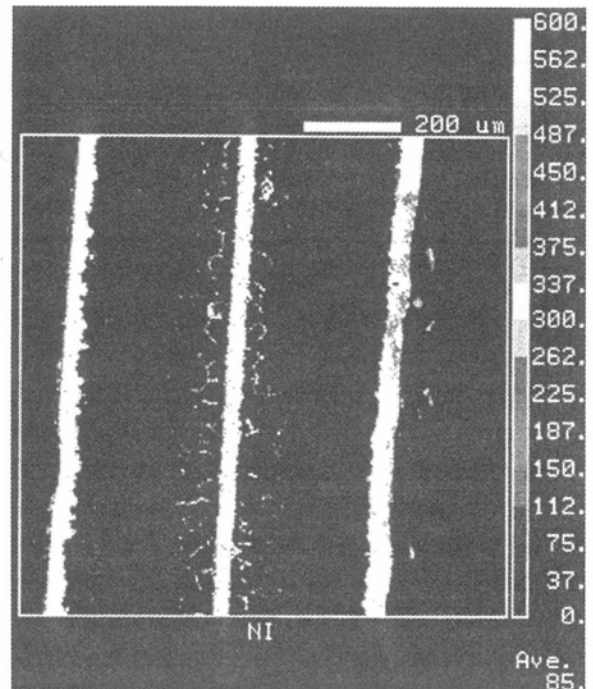


Fig.8 Mapping of Ni element.

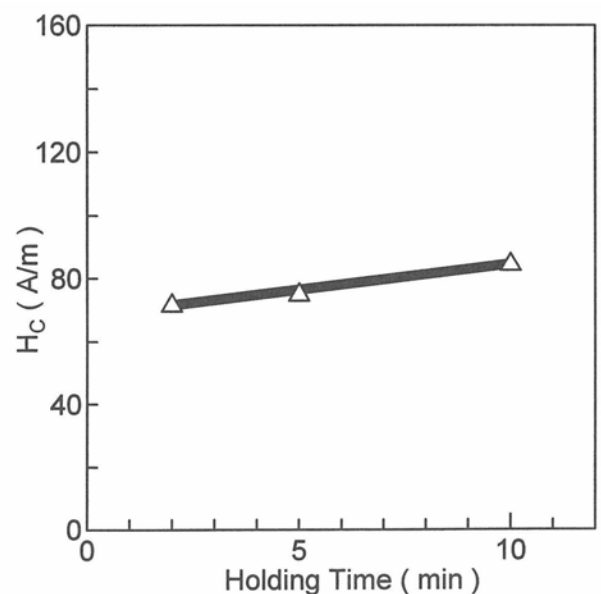


Fig.9 Welding pressure dependence of  $H_c$  of laminated sample.

プロットしたものである。この積層体は、厚さ0.3mmのパーマロイ薄帯を3層とし、間にはさんだフェライトはそれぞれ0.1gとして作製した。

この図のように、若干ではあるが、保持時間は短いほうが軟磁気特性の良い積層体を作製できることがわかった。保持時間を長くすると若干軟磁気特性が劣化するのはFig.9の場合と同様にパーマロイの拡散量が増大するためだと思われる。

積層体の $B_s$ はフェライトとパーマロイの割合によって大きく変化すると思われた。そこで、積層体の全体の厚さが1mmと一定になるようにし、その中のパーマロイの全厚を変化させて作製した積層体の磁気特性を調べた。その結果をFig.11に示す。図中のパーマロイの全厚0mmはフェライトのみの焼結

体、0.6mmは0.1mmを6層、0.8mmは0.2mmを4層、0.9mmは0.3mmを3層積層したサンプル、そして1mmはパーマロイのみの積層体である。

この図から、パーマロイの全厚が1mmに近づくほど $B_s$ が増大し、 $H_c$ は減少していくことがわかる。このことから、大きな $B_s$ を得るには積層体中のパーマロイの割合を可能な限り大きくすることが重要であるといえる。また、パーマロイを含む積層体の $B_s$ はフェライトのみの焼結体の $B_s$ よりも大きな値が得られた。ただし、 $B_s$ の値はパーマロイの厚みの割合に対してリニアには変化しておらず、このような $B_s$ の変化にはパーマロイのフェライトへの拡散が磁気特性に影響を与えていることを示唆しているものと思われる。よって、今後は拡散が磁気特性に与える影響の検討と拡散量を制御することが肝要になるとと思われる。

Fig.12は、積層体中のパーマロイの層数を変化させて作製した積層体の透磁率の周波数特性を示している。なおこれは、周波数50Hzでの透磁率の値で規格化して表示している。透磁率は、円板状の積層体をトロイダル状に加工し、これにコイルを巻いて測定したインダクタンスの値から求めた。図中の○はパーマロイのみの積層体、△は厚さ0.2mmのパーマロイを4層、□は厚さ0.1mmのパーマロイを6層とした積層体を示している。

この図から、積層体中のパーマロイ層を薄くすることによって渦電流を低減して高周波での透磁率の減少を抑えられることが確認できた。

5 む す び

本研究では、放電プラズマ焼結法という新しい焼結法を導入して、まずMn-Znフェライト焼結体の作製を試みた。その

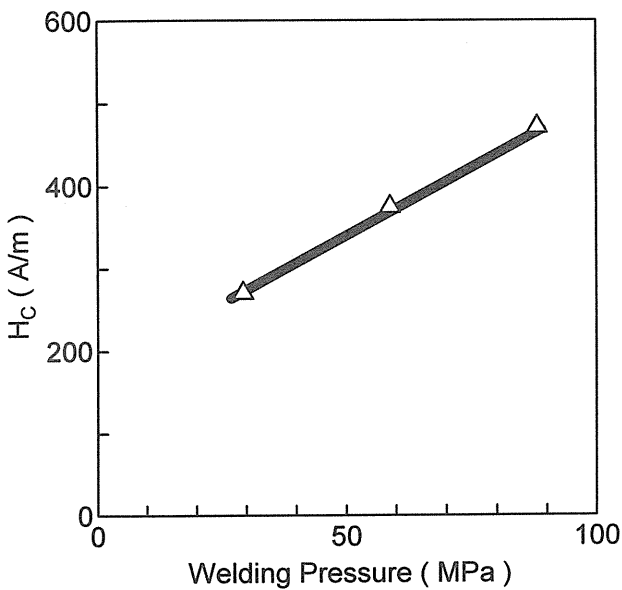


Fig.10 Holding time dependence of  $H_c$  of laminated sample.

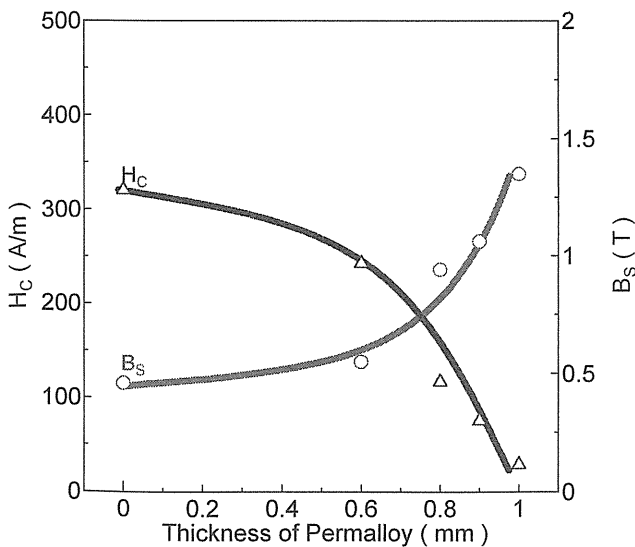


Fig.11 Dependence of  $H_c$  and  $B_s$  on total thickness of permalloy in 1mm laminated samples.

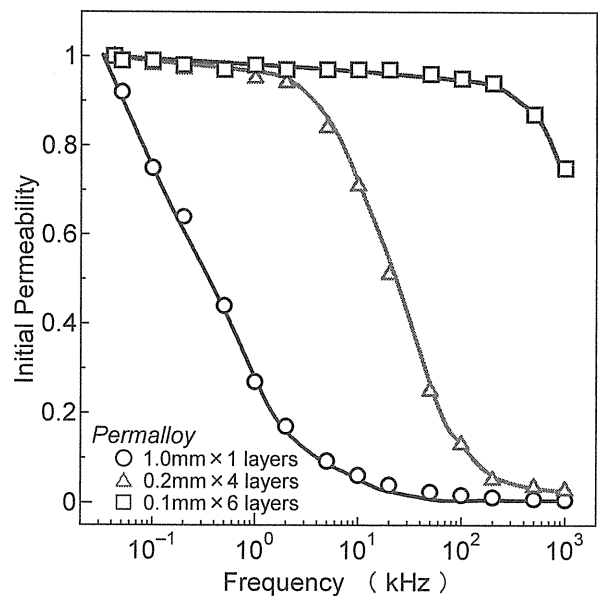


Fig.12 Frequency dependence of initial permeability of laminated samples (permeability is normalized at 50Hz).

結果, 保持時間を長くすると軟磁気特性に優れ, しかも緻密な焼結体を作製できることがわかった. 次に, フェライト/金属磁性積層体の作製を試み, フェライトとパーマロイの界面が強固に接合された積層体を作製することができた. この積層体は, 大きな飽和磁束密度を持ち, 高周波での透磁率の低下のないことを確認した. この積層体は, 薄型のインダクタ(コイル)やトランスのコア材料として, また磁気カードリーダー用の磁気ヘッドコア材料としての用途が期待される. 今

後, これらへの応用を視野に入れて, 本法による磁性体作製についてさらに検討していきたい.

#### 文 献

- 1) セラミックスの高速焼結技術, 第1版, ティー・アイ・シー, (1998)183-185.
- 2) 鴫田正雄: "SPS放電プラズマ焼結法の最近の技術動向", 粉体工学会誌, 30(1993)790-804.