



Title	Z型六方晶Baフェライトの磁気構造解析と透磁率向上に関する研究 : Ba <sub>3</sub> Co <sub>2</sub> Fe <sub>24</sub> O <sub>41</sub>
Author(s)	橋, 武司
Citation	大阪大学, 2003, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/44910">https://hdl.handle.net/11094/44910</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、<a href=" <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed</a> ">大阪大学の博士論文について</a>をご参照ください。

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏名	たちばな 橋 武 司
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	第 18124 号
学 位 授 与 年 月 日	平成 15 年 9 月 30 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第 4 条第 1 項該当 工学研究科原子力工学専攻
学 位 論 文 名	Z 型六方晶 Ba フェライトの磁気構造解析と透磁率向上に関する研究： $Ba_3Co_2Fe_{24}O_{41}$
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 山中 伸介 (副査) 教 授 西嶋 茂宏 助教授 山本 孝夫 助教授 泉 佳伸

## 論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、GHz 帯域の電磁波吸収材料として用いられる Z 型 Ba フェライトの透磁率が、プロセス条件によって変化する諸要因を、Z 相の相安定性、および結晶構造中の Co、Fe サイトと分布、磁気モーメントの角度変化や磁気異方性などの磁気構造の観点から詳細に解析し、透磁率向上の方向性を見出すと共に、高透磁率材料を開発することを目的としている。

第 1 章では、導入部として本研究の背景と研究の取り組みについて述べている。

第 2 章では、透磁率向上には、Z 相を単相で得ることが重要であるとの観点から、Co の一部を Fe で置換した組成で、焼成温度、酸素分圧をパラメータに実験を行い、X 線回折法により生成相の変化を観察している。その結果、Z 単相は焼成温度、酸素分圧の限られた条件で生成し、Fe 置換量増加により単相生成の条件領域が広がることを示している。また異相の消失に伴い透磁率が増加すること、さらに高酸素分圧での焼成は、透磁率向上の効果があることを示している。

第 3 章では、透磁率が酸素分圧に依存する要因を、X 線回折と中性子回折実験から Co、Fe サイトと分布、磁気モーメントの角度を解析し検討している。また磁場中で配向した試料を用いて、c 面の配向度、飽和磁化および異方性磁界を評価し、中性子回折実験から得られた結果と比較検討している。その結果、Co が存在するサイトには嗜好性があり、その分布は酸素分圧に依存して変化すること、また磁気モーメントの角度が増加することが明らかとなり、ひいては透磁率に影響していることが示されている。高酸素分圧で作製した試料の、磁気モーメントの c 軸に対する角度はほぼ 90° となり、磁気異方性の増加が透磁率向上の一要因であることが示されている。

第 4 章では、第 3 章までに得られた結果に基づいて透磁率向上の指針を示し、高透磁率材料の開発について議論している。飽和磁化の増加と磁気異方性の増加を狙い、 $Fe^{3+}$  ( $5 \mu_B$ ) の一部を  $Cr^{3+}$  ( $3 \mu_B$ ) で置換した組成に加え、Z 相を安定化するために  $Co^{2+}$  の一部を  $Fe^{2+}$  で置換した組成と、酸素分圧を最適化した条件を組み合わせることで、 $\mu_r' = 21$  (100 MHz)、 $\mu_r'' = 14$  (peak) とこれまでに報告例のない最高値を示す材料が得られている。さらに磁気モーメントの角度が 90° になることで、磁場中で配向した試料の c 面の配向度が向上した結果、透磁率が大幅に向上することが示されている ( $\mu_r' = 44.5$  (100 MHz)、 $\mu_r'' = 31$  (peak))。

第 5 章では、FT-IR や XAFS など他の分光学的原理に基づいた手法を用いて、陽イオン分布の解析を試みた内容に

について議論している。FT-IRではAサイトとBサイトをそれぞれ選択的に占有する傾向が強い、正スピネルの $ZnFe_2O_4$ と逆スピネルの $NiFe_2O_4$ 型フェライトを用いて、赤外反射率のスペクトル解析から陽イオンサイトの占有率を評価しており、解析結果は、 $ZnFe_2O_4$ の $Zn^{2+}$ が100%Aサイトを占有する正スピネルであることを示し、本解析手法が陽イオン分布の解析手法として有用であることを示している。また逆スピネルの $NiFe_2O_4$ の $Ni^{2+}$ の一部がAサイトにも存在することを示唆している。XAFSではZ型BaフェライトのBa、Fe、Coサイトを解析し、中性子回折実験の結果と比較検討している。それぞれの陽イオンが入るサイトと分布の傾向は一致しており、局所構造解析が可能なEXAFS解析の有用性を示している。

第6章は結論であり、本研究で得られた成果の要約と今後の展望を示している。プロセス条件によって変化する透磁率の要因を結晶構造および磁気構造を詳細に解析し設計指針を見出すことで、透磁率特性を向上させる材料を開発可能であることが結論として得られている。

### 論文審査の結果の要旨

本論文は、GHz帯域の電磁波吸収材料として用いられるZ型Baフェライトの透磁率が、プロセス条件によって変化する諸要因を、Z相の相安定性、および結晶構造中のCo、Feサイトと分布、磁気モーメントの角度変化や磁気異方性などの磁気構造の観点から詳細に解析しており、透磁率向上の方向性を見出すと共に、高透磁率材料を開発した成果がまとめられている。主な成果は以下のように要約できる。

- (1) Z単相は温度、酸素分圧の限られた条件で生成し、Fe置換により単相生成の条件領域が広がる。透磁率向上にはZ相を単相で得ること、高酸素分圧での焼成が重要である。
- (2) 酸素分圧がCo、Fe占有サイトと分布に影響することによって、磁気モーメントの角度が変化し、ひいては透磁率に影響する。高酸素分圧で作製した試料の磁気モーメントの角度は、ほぼc面内に向いており、磁気異方性の増加が透磁率增加の一要因である。
- (3) (1)、(2)の結果に基づいて最適化された組成、プロセス条件に加えて、 $Fe^{3+}$ の一部に磁化の異なる $Cr^{3+}$ を置換することにより、異方性を増加させることができる。これらの条件により、さらに透磁率が向上する材料が得られる。

以上のように、本論文はこれまでにほとんど報告例がないZ型Baフェライトの、組成やプロセス条件による磁気構造の変化と透磁率の関係が議論されており、また材料開発の設計指針を見出し、それに基づいて高透磁率な材料を開発している。これらの知見は、学術的かつ工業的に価値があり、今後さらに深刻化すると思われる電磁波環境問題にも貢献するものである。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。