

Ni, Cu 변화에 따른 Ni-Cu-Zn Ferrite의 자기적 특성

Magnetic Properties of Ni-Cu-Zn Ferrite with varying Ni, Cu

백승철¹⁾, 성승우²⁾, 김태원¹⁾, 김성수¹⁾, 최우성¹⁾
¹⁾우송공업대학 전자정보계열
²⁾원광대학교 전기전자공학부

Seung-Woo Jung¹⁾, Tae-Won Kim¹⁾, Sung-Soo Kim¹⁾, Seung-Choel Baek¹⁾, U-Sung Choi¹⁾,
¹⁾ Dept. of Electronic Materials Engineering, Wonkwang Univ.
²⁾ Division of Electronic and Information, Woosong Technical College

Abstract

In this study, we investigated magnetic properties of $Ni_{0.2-x}Cu_xZn_{0.305}Fe_{0.495}$ ($x=0\sim 0.2$) ferrites. As the x increased, the density and shrinkage increased until $5.3g/cm^3$, 20% respects, but the absorption decreased rate until 0.01%. As a results of the density, absorption rate, and shrinkage rate, the grain growth progressed rapidly in $x=0.125$ at $1050^\circ C$, $x=0.075$ at $1150^\circ C$, and $x=0.025$ at $1150^\circ C$ for 3hours. As the CuO concentration increased, initial permeability increased at sintered $1050^\circ C$ and $1150^\circ C$ for 3 hours, but decreased at $1250^\circ C$ for 3 hours. The complex permeability as a function of frequency were high values at sintered $1050^\circ C$ for 3 hours in $x=0.005, 0.075$.

Key Word(주요단어) : NCZF, Ferrite, Permeability, property

1. 서 론

연자성체는 비교적 저 손실 재료로 Mn-Zn계 페라이트와 Ni-Zn계 페라이트가 많이 사용되고 있다. 이 가운데 Ni-Zn 계 ferrite는 Mn-Zn 계에 비하여 보다 고주파 대역에서 사용가능한 것으로 알려져 있다.¹⁾

이러한 Mn-Zn나 Ni-Zn계 페라이트는 스피넬 페라이트의 대표적인 것으로 그것이 고주파 영역에서 우수한 특성을 나타내기 위해서는 페라이트 조성의 손실이 적어야 하고 이러한 손실의 정도를 구분할 수 있는 인자로 초기투자율을 예로 들 수 있다.

초기투자율은 조성의 변화에 따라 민감한 변화를 나타내는데 이러한 변화에 따라 초기투자율 크기를 조절할 수 있다.²⁾³⁾ 또한, 스피넬 페라이트의 주파수에 대한 복소투자율 변화에 대하여 살펴보면 측정 주파수 영역에서 분산현상을 관찰 할 수 있으며, 이는 페라이트의 조성에 따른 초기투자율의 변화와 관련이 있다.⁴⁾ 이러한 복소투자율의 주파수 의존성

변화를 통하여 응용 주파수 영역에 대한 페라이트 소재의 특성을 구분함으로써 조성변화에 따른 응용 범위가 결정될 수 있으며, 확대될 수 있을 것으로 기대 되어진다.

따라서, 본 연구에서는 soft ferrite 가운데 산화성 자성재료인 Ni-Zn계열의 ferrite를 중심으로, 삼성분 계인 Ni-Cu-Zn의 조성중 Zn의 조성을 0.33으로 fixed한 상태에서 Ni-Cu의 조성 변화에 따른 소결 온도 및 소결체의 밀도, 결정입자의 크기 등 물리적인 특성을 결정하는 요소에 대한 분석과 초기투자율과 복소투자율의 특성 변화를 검토하였다.

2. 실험방법

2.1 시편제조

본 연구에서 출발원료로는 NiO, CuO, ZnO, Fe_2O_3 를 사용하였고 모두 시약급으로 하였다. 실험의 공정도는 fig1.과 같다.

$Ni_{0.2-x}Cu_xZn_{0.305}Fe_{0.495}$ ($x=0\sim 0.2$) x 는 0.025로 변화를 주어 칭량한 후 Zirconia Ball(직3mm, 5mm)을 사용

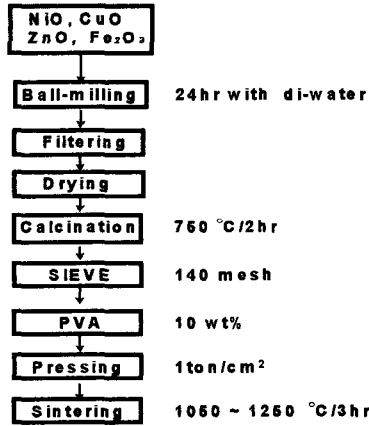


Fig. 1. Fabricating procedures of samples.

하여 증류수와 같이 습식 볼밀링을 24시간 실시한 후 750°C에서 2시간 하소를 실시하였다. 하소 처리된 분말에 Binder로써 5%의 PVA를 10wt%첨가한 후, 140mesh를 이용하여 미세분말을 얻었다. 제조된 분말은 Press를 이용하여 수축률과 길보기밀도의 측정을 위한 Pellet(직경 10mm)형태의 시편과, 초투자율과 투자율을 측정하기 위하여 toroid 형태의 시편을 1ton/cm²의 압력으로 제조하였으며, 공기분위기에서 1050°C~1250°C까지 100°C 변화를 주어 분당 3°C의 승온속도로 binder를 burn-out시키기 위하여 400°C에서 2시간 delay time을 주었고 다시 소결온도까지 분당 3°C의 승온속도로 소결온도에서 3시간 소결을 실시하고 공기분위기에서 냉각시키면서 소결체를 제조하였다.

2.2 분석 및 측정

2-2-1 밀도측정

소결체의 밀도와 흡수율은 표준규격(ASTM B-311-58)에 의하여 측정하였으며, 이때 사용한 소결밀도 및 흡수율은 다음 (1),(2)식에 의하여 계산하였다.

$$\text{소결밀도} = \frac{W_d}{W_m - W_s} \quad (\text{g/cm}^3) \quad (1)$$

$$\text{흡수율} = \frac{W_m - W_d}{W_d} \times 100(\%) \quad (2)$$

이때 W_m 은 공기중에서의 무게(moisture weight), W_s 는 물속에서의 현수무게(suspended weight), W_d 는 건조무게(dry weight)를 측정한 값이다.

2-2-2 수축율측정

소성시 휘어짐의 방지를 위하여 수축율의 측정이 필요하다. 수축율은 소결전과 소결후의 길이 및 두께를 micrometer로 정확히 측정한 후 다음 (3)식에 의해서 계산하였다.

$$\text{수축율} = \frac{\text{소결전} - \text{소결후}}{\text{소결전}} \times 100(\%) \quad (3)$$

2-2-3 x선 회절분석

D-Max X선회절 분석기(RIKAKU, D-MAXⅢA)를 이용하여 30Kv, 20mA의 조건에서 5°/min의 Scan speed로 20°에서 80°의 2θ 구간을 측정하였다.

2-2-4 미세구조

미세구조를 관찰하기 위하여 파단면을 gold coating 한 후 SEM(Oxford JSM 6400)으로 관찰하였다.

2-2-5 초 투자율 및 복소투자율

toroid 형태의 시편에 0.5mm의 에나멜선을 균일하게 10회 감은다음 HP4194A를 사용하여 Impedance를 측정하였다. 측정된 모든 시편은 100Hz~40MHz까지 측정하여 초투자율과 주파수에 따른 복소투자율의 변화를 살펴보았다.

$$\mu_i = L/L_0 \quad (4)$$

(L : 측정된 inductance)

$$L_0 = \frac{0.4SN^2}{D} \times 10^{-2} \quad (5)$$

(N : turn 수, D : 평균직경, S : 시편의 단면적)

$$Z^* = j\omega L_0(\mu' - j\mu'') = R + jX \quad (6)$$

$$\mu' = X/\omega L_0 \quad (7)$$

$$\mu'' = R/\omega L_0 \quad (8)$$

3. 결과 및 고찰

3-1 소결체 특성 분석

3-1-1 온도에 따른 특성분석

본 실험에서 실시한 조성은 Ni_{2-x}Cu_xZn_{0.305}Fe_{0.435}로 A1(x=0), A2(x=0.025), A3(x=0.05), A4(x=0.075), A5(x=0.1), A6(x=0.125), A7(x=0.15), A8(x=0.175), A9(x=0.2)의 변화에 따라 시편을 명명하였다. 각 조성에서 소결온도에 따라 혼합물내에서 생성되는 결정상의 결과를 Fig. 2. 보여주고 있

다. 모든 조성과 각 소결온도에서 대부분 스피넬 상을 보여주고 있으나, 1050°C/3h에서는 α -Fe₂O₃ peak가 보이고 있다.

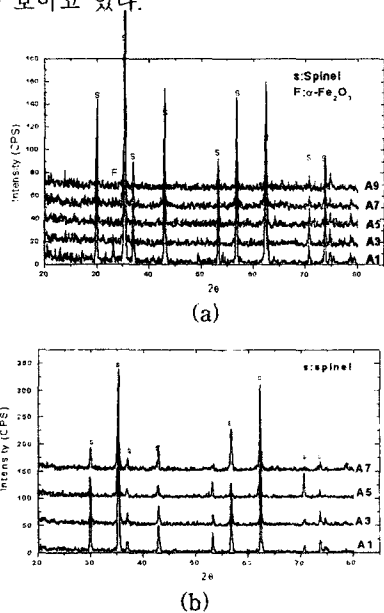


Fig. 2. XRD Pattern of Ni_{0.2-x}Cu_xZn_{0.305}Fe_{0.495} at the sintered temperature.

(a) 1050°C/3h (b) 1150°C/3h

이와같은 결과로 볼 때, 소결온도가 1050°C 이상에서는 전자기 특성에 대한 스피넬 화의 영향은 없다고 판단할 수 있다.

3-1-2 밀도 및 수축률

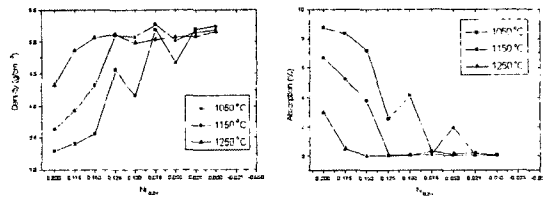


Fig. 3. Density and Absorption of Ni_{0.175-x}Cu_xZn_{0.33}Fe_{0.495} Ferrites with various composition.

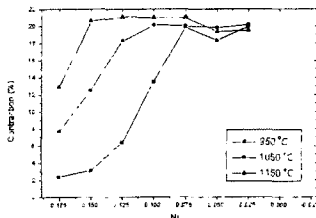


Fig. 4. Contraction of Ni_{0.175-x}Cu_xZn_{0.33}Fe_{0.495} ferrites with various composition.
Fig 3-4는 시편에 대한 밀도 및 흡수율, 수축율을

나타낸 것이다. 1050°C로 소결한 경우 x=0.125인 이상에서부터 밀도와 흡수율의 변화가 적고 그 이상의 온도에서는 0.075부터 변화가 없는 것을 알 수 있다. 온도의 변화에 따라 온도가 높을수록 CuO의 양이 적은곳에서 밀도가 내략 5.3으로 일정한 값을 보여주었고, 흡수율 역시 온도가 온도가 높은곳에서부터 CuO의 양이 적어도 흡수율이 0.01%까지 감소함을 보였다. 수축율의 경우 밀도의 변화와 마찬가지로 어느정도 증가하다가 일정해지는 경향을 보여준다. 이것으로 CuO의 양과 소결온도의 관계를 살펴보면, CuO의 첨가량이 적으면 소결온도가 높아지고, 많으면 소결온도가 낮아진다는 것을 알 수 있다. 이는 CuO가 용제역할을 함으로써 소결 구동력이 증가된다는 앞선 연구자들의 결과^{(7),(8)}와 일치한다.

3-1-3 미세구조

Fig 5.은 시편의 파단면을 찍은 SEM 사진이다. 배율 7,500배로, 것으로 사진 위쪽의 line의 길이는 2μm이다.

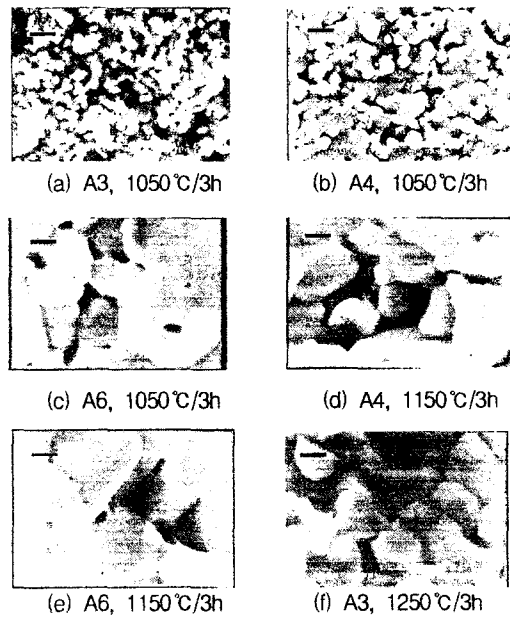


Fig. 5. SEM Images of Ni_{0.2-x}Cu_xZn_{0.305}Fe_{0.495} ferrites

1050°C에서 3시간 소결한 경우 앞서 살펴본 바와 같이 비록 그 결정구조가 스피넬상이나 x가 0.~0.075로 변화할 때까지 성장이 거의 일어나지 않고, 미세기공이 많으며, 그 grain size 역시 수 μm로 작은 것을 볼 수 있다. 그러나, x=0.1 이상에서는 미

세기공이 급격히 줄어들었으며, grain이 급격히 커지고 있음을 볼 수 있었다. 그러나 1150°C 이상에서 소결한 시편의 경우 $x=0.1$ 이하에서도 급격한 성장이 있었다.

3 2 자기적 특성변화

3-2-1 초투자율

Fig. 7.은 온도에 따른 초투자율의 변화를 보여주는 것이다.

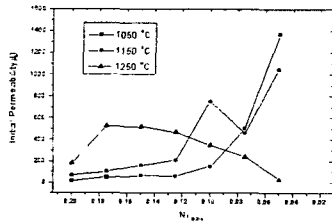


Fig. 7. Variation of initial permeability of $Ni_{0.2-x}Cu_xZn_{0.305}Fe_{0.495}$ ferrites

초투자율은 꾸준히 증가하는 경향을 보이고 있으나 1250°C에서 소결을 실시한 경우 A3부터 감소하고 있음을 알 수 있다. 초투자율의 최고값은 NiO가 첨가되지 않은 A9에서 보여주었으나, 소결온도가 높아짐에 따라 감소하고 그 값이 급격히 감소한다.

3-2-2 복소투자율

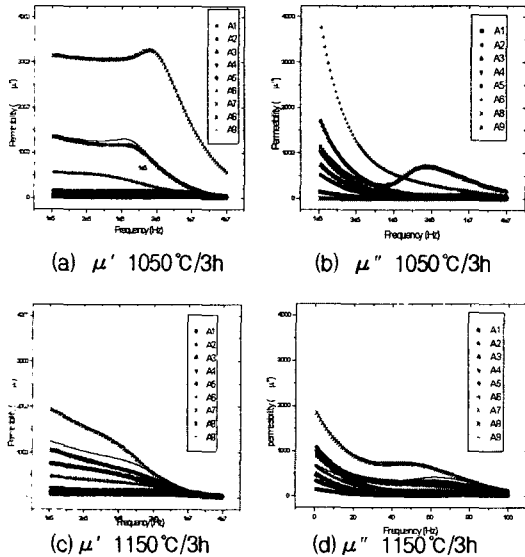


Fig. 8. Permeability spectrums as a function of frequency.

2절에서 언급한 조성의 변화에 따른 복소투자율

의 변화를 100KHz~40MHz 주파수범위에서 측정하였다. 소결온도에 따른 μ' , μ'' 을 Fig. 8.에 보였다.

복소투자율 값을 살펴보면, 두 온도구간에서 A3 조성과 A4 조성이 크게 나왔으며 주파수가 증가함에 따라 그 값이 감소하는 경향을 보여주고 있다.

4.결 론

Ni-Cu-Zn ferrite의 조성중에서 Zn와 산화제2철의 조성을 각각 0.305mol%, 0.495mol%로 결정한 후, NiO와 CuO의 함량 변화를 주어 소결온도에 따른 투자율 등의 변화에 대하여 살펴보았다.

(1)1050°C로 소결한 것 중 $x=0$ 인 조성에서 α - Fe_2O_3 Peak와 스피넬상이 관찰이 되었고 나머지 조성과 온도에서는 모두 스피넬상 만이 관찰되었다.

(2)초투자율은 소결온도가 1050°C와 1150°C에서는 CuO가 증가함에 따라 증가하는 경향을 보이고 있으나 1250°C에서 소결한 것은 감소하는 경향을 나타내었다.

(3)100KHz~40MHz 대역에서 측정된 복소투자율은 $x=0.05, 0.075$ 의 조성에서 높은 투자율의 값을 보였다.

5. 참고문헌

- 1)S. Komarneni, E. Fregeau, E. Breval, R. Roy "Hydrothermal Preparation of Ultrafine Ferrites and their Sintering", *J. Am. Ceram. Soc.* 71(1) c-26-c-28, (1988).
- 2)近角聰信, 太田忠造, 安達建正, 津屋 昇, 石川義和, "磁性體 핸드ブック, 朝會, pp. 767-878 (1987).
- 3)J. G. M. de lau and A. L. Stuijts. Philips res. Rept., 21, 104(1966)
- 4)Joong-Hee Nam and Jae-Hee Oh, *J. Magnetics*, 1(1), 37 (1996)
- 5)김경용, 이종규, 김왕섭, 강선모, "소형화 적층 칩 인덕터(Chip Filter)개발에 관한 연구"보고서, 99(1191)
- 6)이상식, "MHz 대역에서의 Impedance Analyzer를 이용한 Ni-Zn Ferrite의 투자율 특성에 관하여", 석사학위논문, 포항공대, (1993)
- 7)J. H. Nam, H. H. Jung, J. Y. Shin and J. H. Oh, proceeding of The 3rd International Symposium on Physics of Magnetic Materials. 436(1995).
- 8)류병환, 김선희, 최경수, 고재천 한국자기학회지. 6(6), 937(1995).