

# Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 조성변화에 따른 YIG의

논문  
8-6-15

## 주파수 및 자기 특성

### The Frequency and Magnetic Characteristics of YIG with the Variation of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Additions

홍기원\*, 김명호\*\*, 장경욱\*\*\*, 이준웅\*\*\*\*

Ki-Won Hong, Myung-Ho Kim, Kyung-Uk Jang, Joon-Ung Lee

#### Abstract

To improvement the magnetic and frequency properties of YIG(Yttrium-Iron Garnet) in microwave region, it is investigated that the effect of Al<sup>3+</sup> ions on magnetic and frequency characteristics of YIG, using samples of basic YIG composition(Y<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub>) added with Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> from 0 to 2.5 [mol%]. The measurment is conducted mainly for the structual properties and magnetical properties. The structual properties is measured using SEM(Scanning Electro Microscope), EDX(Energy-dispersive X-ray spectrometer) and XRD(X-ray diffraction equipment). The magnetical properties is measured with B-H curve tracer and impedance analyzer.

As a result, it is confirmed that the effect of eddy current loss is minimized while maintaining high saturation flux density of YIG, when YIG is added with 0.5 [mol%] of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

**Key Words(중요용어)** : YIG(가네트), Magnetic(자성체), Hysteresis Curve(자기이력곡선), Loss Resistance(손실저항)

#### 1. 서 론

산화물계 페리자성체 중에서 가네트는 가장 최근에 개발되어진 재료로서 고주파 응용산업의 많은 관심을 받고있다. 특히, Yttrium-Iron Garnet (YIG; Y<sub>3</sub> Fe<sub>5</sub> O<sub>12</sub>) Bertant 와 Forrar<sup>1)</sup>에 의해 개발되어진 이래로 밴드패스필터 (Band-pass Filter), 아이소레이터(isolate) 및 고주파전원용 재료로서 가장 널리 사용되어지고 있는 고주파용 자성재료이다. 또한, 고주파용 자성재료로서의 그 특성개선을 위하여 조성비의 변화, 첨가제 및 제조

공정 중의 조건변화등 여러가지 형태의 연구가 진행되어 왔으며, 크게 YIG의 고유특성과 외적특성에 대하여 이루어져 왔다.<sup>2)</sup>

최근에는 YIG 결정구조에 있어서 각 금속이온의 점유위치를 기타 금속이온으로 치환반응 시킨 혼합페라이트에 대한 연구가 활발히 수행되고 있으며, 특히 Fe<sup>3+</sup>이온을 Al<sup>3+</sup>이온으로 치환시킴으로써 고주파 영역에서의 비저항특성과 온도안정성 등의 특성을 개선시킬 수 있음이 Gardon과 Harrison등<sup>3)</sup>에 의해 보고된 이후로는 한층 가속화되고 있는 추세이다.

따라서, 본 연구에서는 최근 연구의 대상이 되고 있는 YIG에 주파수 특성 개선에 효과적인 첨가물로 알려진 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 첨가하여 Y<sub>3</sub>Fe<sub>5-x</sub>Al<sub>x</sub>O<sub>12</sub>(0≤x≤2.5)와 같이 조성식을 구성한 후, Al<sup>3+</sup>이온이 YIG의 자기특성과 주파수특성에 미치는 영향을 고찰하였다.

\* : 현대전자 반도체 2연구소 소자특성실

\*\* : 경원전문대 건축설비과

\*\*\* : 경원전문대 자동차정비과

\*\*\*\* : 광운대학교 전기공학과

접수일자 : 1995년 7월 25일

심사완료 : 1995년 11월 10일

#### 2. 실 험

2-1. 시편 제조

본 실험에 사용된 시편은 Y<sub>3</sub>Fe<sub>5-x</sub>Al<sub>x</sub>O<sub>12</sub>(0 ≤ x ≤ 2.5) 로 조성하여 일반 세라믹 제조과정을 거쳐 디스크형과 코어형의 두가지 형태로 제작하였으며, 사용된 원료의 제조회사 및 순도는 표 1 과 같다.

그림 1 은 시편의 제조공정을 나타낸 것으로 각 시료를 시편의 조성식에 따라 전자천평을 사용하여 c칭량한 후, 아세톤을 분산매로 하여 알루미나 유발에서 2시간 동안 혼합, 분쇄 하였다. 혼합, 분쇄된 분말의 습기를 건조과정을 통하여 완전히 제거한 후 진공전기로에서 하소온도 700[°C], 유지시간 2시간로 하소 시켰다. 하소된 분말을 알루미나 유발에서 재분쇄한 후 바인더(P.V.A : Polyvinyl Alcohol)를 1.5[wt%] 혼합하여 오븐(Oven)에서 충분히 건조 시켰으며, 건조된 분말을 원통형 금형(Φ:12mm)에 0.9[g]씩 넣고 4[kgf/cm<sup>2</sup>]의 압력으로 성형하였다. 성형된 시료는 산소분위기 하에서 1200 [°C]로 2시간 동안 소결하였으며, 이때의 온도상승률은 300[°C/hr] 로 하였다. 소결된 시편을 두께 1 [mm]로 연마하였으며, 시편의 표면을 초음파 세척하였다. 표 2는 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량에 따른 시편번호를 나타낸 것이다.

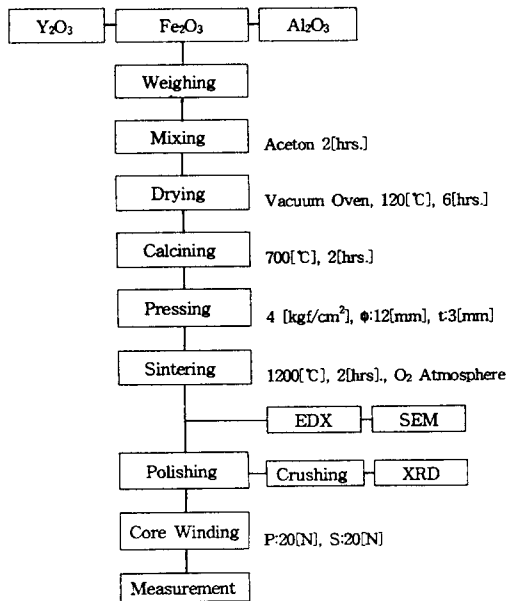


그림 1. 시편의 제조과정  
Fig. 1. Manufacturing process of the specimens

2-2. 측정방법

2-2-1. 구조적 특성의 측정

표 1. 시료의 순도 및 제조회사

Table 1. Purity and suppliers of the raw materials

시료	순도 (%)	제조회사
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	98.0 [%]	YaKuri Co.,Ltd.
Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	99.9 [%]	Strem Chemicals, Inc.
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	99.0 [%]	Junsei Chemical Co.,Ltd.

표 2. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량에 따른 시편번호

Table 2. Specimen number with Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> contents

Number of specimen	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4	No. 5
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 첨가량 (0 ≤ x ≤ 2.5)	0	0.5	1	1.5	2.5

각 시편의 조성변화에 따른 결정립의 크기, 결정 입계 및 기공 등의 미세구조를 관찰하기 위하여 소결시편을 증류수 중에서 초음파세척한 후, 주사 전자현미경(Scanning Electro Microscope;SEM, J SM-6400, Noran Instrument, U.S.A.)을 이용하여 시편의 자유표면을 관찰하였다.

제조된 시편의 결정성 및 결정구조 변화 등의 관찰은 CuKα선 (1.5418[Å])을 광원으로 하는 X선 회절장치(D-MAX3,Rigaku,Japan)를 이용하여 분석하였다. 이때, 2θ는 10° ~ 90° 로 하였다.

또한, 각 시편의 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량에 따른 정성분석을 위하여 EDX (Energy-dispersive X-ray spectrometer;Noran Instrument, U.S.A.) 측정을 하였다.

2-2-2 자기물리 점수의 측정

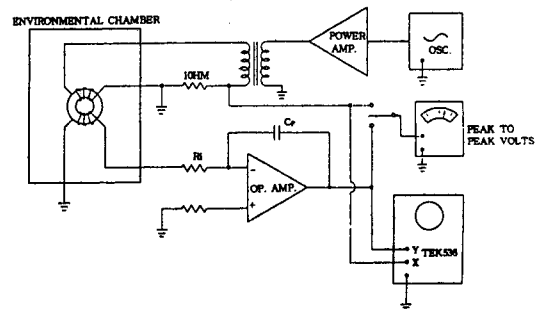


그림 2. B-H 곡선측정기의 블록선도  
Fig. 2. Block diagram of B-H Curve Tracer

측정에 사용된 시편의 형상은 코어형으로 직경 0.27[mm]의 에나멜선을 1차측과 2차측 각각 20회씩 감아서, JIS C2565 규격에 따라 제작된 B-H곡선 측정기(B-H Curve Tracer, C-R적분방식)를 이용하여 각 시편에 대한 자기이력곡선을 측정하였고, Impedance Analyzer (4191A:Hewlett Packard)를 사용하여 각각의 시편에 대한 주파수의존성을 측정하였다.

그림 2는 본 실험에 사용된 B-H곡선측정기의 블럭선도를 나타낸 것이다.

### 3. 실험결과 및 고찰

#### 3-1 구조적 특성

##### 3-1-1 미세 구조

사진 1은  $Y_3Fe_{5-x}Al_xO_{12}$  ( $0 \leq x \leq 2.5$ )의 조성에 따른 각 시편의 미세구조를 나타낸 것이다.  $Al_2O_3$ 의 첨가량이 증가함에 따라 시편의 평균입자 크기가 감소함을 알 수 있다. 이는  $Fe^{3+}$ 이온(0.66[Å])보다 이온반경이 작은  $Al^{3+}$ (0.51[Å])이온이 테트라헤드랄(tetrahedral) 위치에 존재하는  $Fe^{3+}$ 이온을 치환함에 따른 영향 및 과잉 첨가된  $Al_2O_3$ 가 입자성장에 참여하지 못하고 불순물 상태로 입계층에 잔존함에 따른 영향으로 고려된다.

표 3은 Jeffries의 면적측정법을 사용하여  $Al_2O_3$ 의 첨가량에 따른 평균입경을 조사한 것이다. 평균 결정입경이 10[ $\mu m$ ] 이상으로 될 경우  $\mu_i$ 가 크게 증대하여 쉽게 포화된다<sup>2)</sup>는 사실과 일반적인 가네트의 입자크기가 15[ $\mu m$ ]내외인 것을 고려하면  $Al_2O_3$ 의 치환량이 1.0 [mol%] 이상일 경우 자성재료로서의 우수한 특성을 기대할 수 없는 것으로 사료된다.

표 3. 시편의 평균입자 크기

Table 3. Mean grain size of the specimens

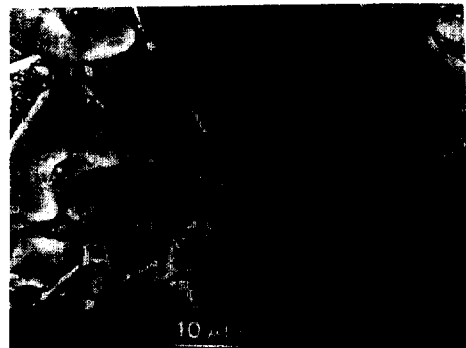
시 편 번 호	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4	No. 5
평균입자크기 [ $\mu m$ ]	17.65	13.33	6.42	7.25	2.14

그림 3은 시편 No.1,2,3,4의 입자내부에 대한 EDX 분석결과이다.  $Al_2O_3$ 의 첨가량이 증가함에 따라서 가네트 결정화에 참여하는  $Al^{3+}$  이온의 수가 포화에 도달함을 확인할 수 있다.

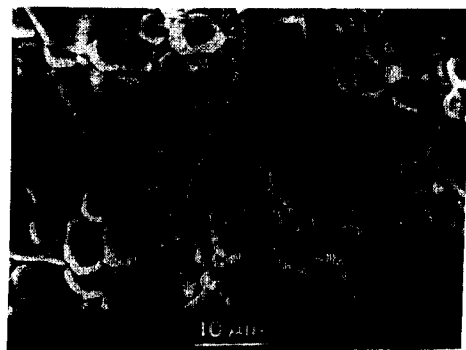
##### 3-1-2 X 선 회절분석



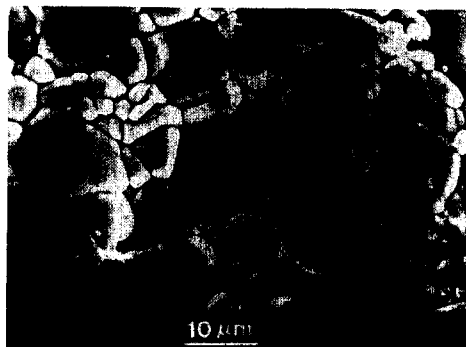
NO. 1



NO. 2



NO. 3



NO. 4



NO. 5

사진 1. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량에 따른 전자현미경 사진  
Photo 1. SEM photo. with Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> contents

그림 4와 5는 각 하소분말과 소결시편에 대한 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량에 따른 X 선회절 분석 결과이다. 그림 4와 5에서 알 수 있는 바와 같이 하소분말의 X 선회절패턴과 비교하면 소결시편에 대한 X 선회절패턴이 회절각의 폭이 좁고, 피크가 뚜렷이 분리되는 것으로 부터 고상반응이 활발히 이루어졌음을 알 수 있다. 또한, 그림 5의 소결시편에 대한 X 선 회절패턴의 경향은 전형적인 가네트결정의 패턴과 거의 일치하고 있다. 그러나, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량 증가에 따라 17.5° 부근에서 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 결정에 의한 피크가 점점 크게 나타나고 있으며, 특히 No.5 시편의 경우에는 그 값이 매우 커서 가네트 결정구조에 대한 불순물로서 작용할 것으로 생각되며, 시편의 회절선 폭이 매우 넓고 그 강도가 미약하기 때문에 충분한 가네트결정이 형성되지 않았다는 것을 알 수 있다.

### 3-2 자기이력곡선 특성

사진 2는 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량에 따른 자기이력곡선의 측정사진을 나타낸 것이다. 고주파 재료에 있어서 높은 초투자율( $\mu_i$ )과 작은 보자력(H<sub>c</sub>)이 필수적으로 요구된다는 사실을 고려할 때, 사진에서 알 수 있는 바와 같이 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 0.5 [mol%] 첨가된 No.2 시편이 적절한 초투자율과 보자력을 갖고 있음을 확인할 수 있다. 즉, No.1 시편은 큰 포화자속밀도(B<sub>s</sub>)를 지니고 있지만 보자력(H<sub>c</sub>)의 값이 상대적으로 높게 나타나며, No.3 시편은 작은 보자력(H<sub>c</sub>)을 나타내지만, 포화자속밀도(B<sub>s</sub>)의 값이 매우 작게 나타난다. No.4, No.5 시편의 경우는 매우 작은 포화자속밀도를 보이고 있다. 이러한 자기적 특성은 미세구조 관측결과와 잘 일치하고 있다.

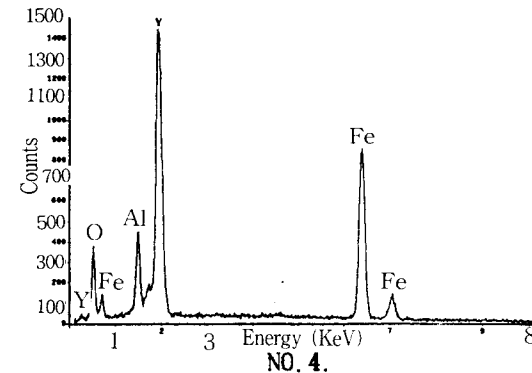
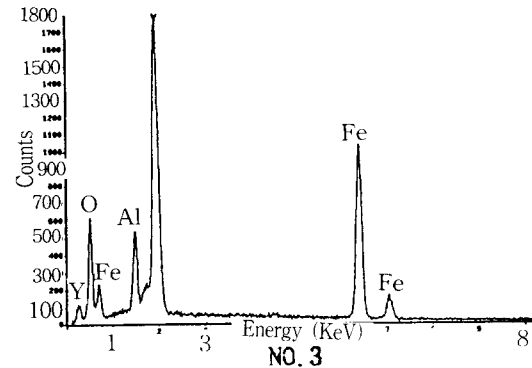
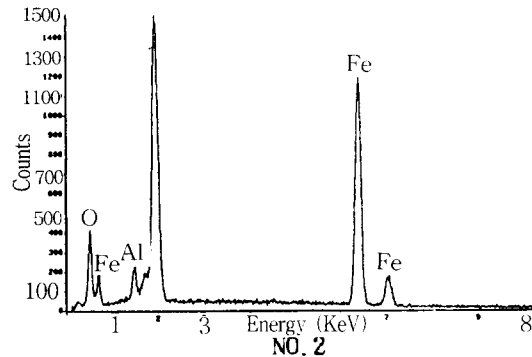
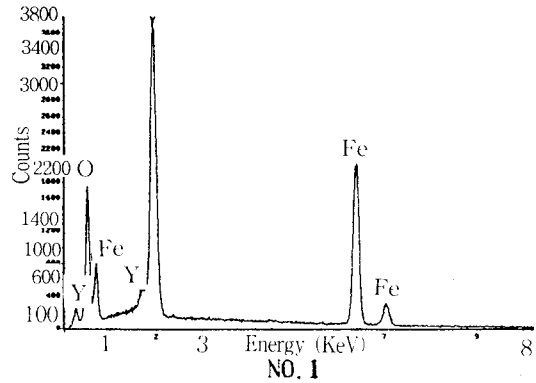


그림 3. 각 시편에 대한 EDX 분석  
Fig. 3. EDX Data with Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> contents.

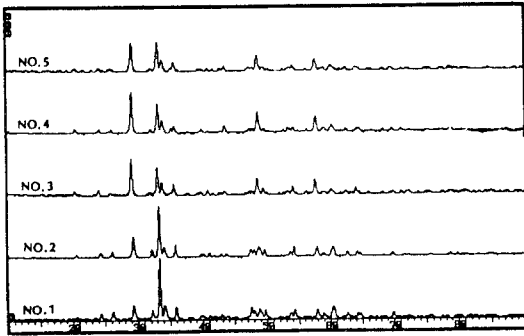


그림 4. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>첨가량에 따른 하소분말의 X 선 회절

Fig. 4. X-ray diffraction of calcined powders with Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> contents

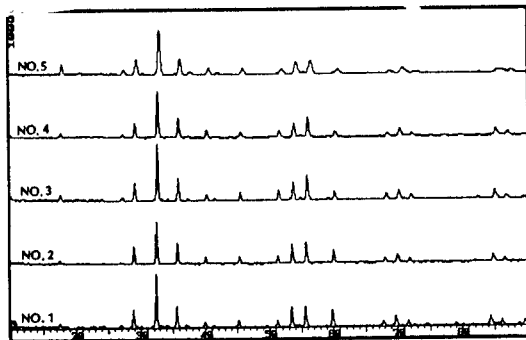


그림 5. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량에 따른 소결시편의 X 선 회절

Fig. 5. X-ray diffraction of sintered specimens with Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> contents

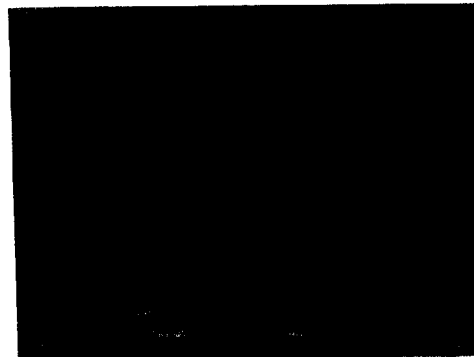
표 4는 각각의 시편에 대한 이력곡선으로 부터 얻은 자기물리정수의 값을 나타낸 것이다. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량이 증가함에 따라 자기물리정수의 값이 감소하는 현상은 영자기모우먼트를 가지는 Al<sup>3+</sup>이온의 치환이 가네트의 자화를 감소시킨다는 사실에 기인하다.<sup>2)</sup> 또한, Al<sup>3+</sup>이온의 치환량이 증가함에 따라 d 위치(d site)와 a 위치(a site)사이의 강한 Fe-Fe 초교환 상호작용의 수가 감소하게 되므로 큐리온도도 점차 상온측으로 이동하게 된다.

### 3-3 주파수 의존성

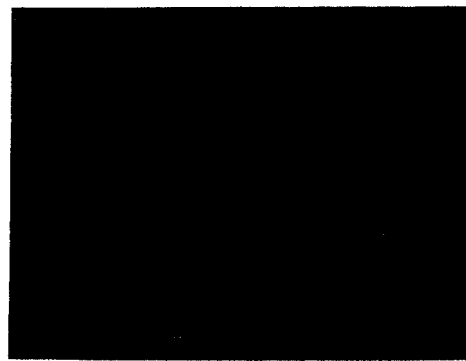
일반적인 고주파용 자성재료는 고주파영역으로 갈수록 와전류 손실에 의한 영향이 크기 때문에 보다 높은 비저항이 요구된다.<sup>6)</sup> 그림 6는 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>첨가량에 따른 직렬손실저항 (series loss



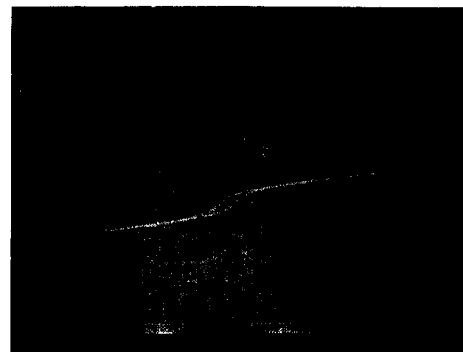
NO. 1



NO. 2



NO. 3



NO. 4

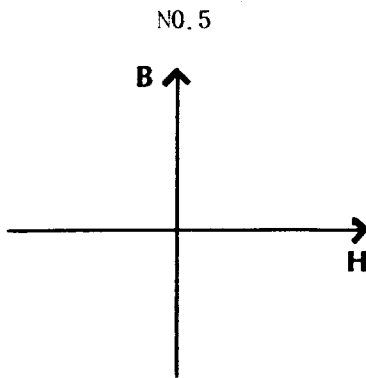
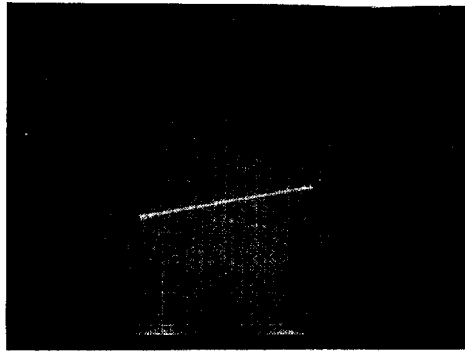


사진 2. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량 변화에 따른 자기이력곡선

Photo 2. Hysteresis curve with Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> contents

표 4. 시편 No.1,2,3,4,5 에 대한 자기물리정수  
Table 4. Magnetic physical constant for the specimens

시편 정수	No.1	No.2	No.3	No.4	No.5
Bs	1073	766	383	179	-
Br	536	364	217	28.6	-
Hc	1.44	1.28	1.2	1.6	-
ΔB	537	402	166	150	-
Ms	82.206	57.775	27.286	11.062	-
K	2.055	1.444	0.682	0.277	-

\* f<sub>B</sub> = 1 [kHz] , H<sub>a</sub> = 40 [Oe]

resistance; R<sub>s</sub>)의 주파수 의존성을 나타낸 것으로서 주파수 상승과 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량의 증가에 따라 감소하는 경향을 보인다.

주파수 상승에 따른 직렬손실저항의 감소는 측

정 주파수영역이 그림 6에서의 한계주파수 f<sub>1</sub> 과 f<sub>2</sub> 사이의 감소영역임을 나타낸다. 따라서, 시편 No.1,2,3의 경우는 한계주파수가 800[MHz] 이하의 영역에 존재할 것이며, 시편 No.4,5의 경우는 한계주파수가 1[GHz] 이상에서 존재할 것이다. 즉, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가가 시편의 한계주파수를 높히는 효과를 가지는 것으로 사료된다.

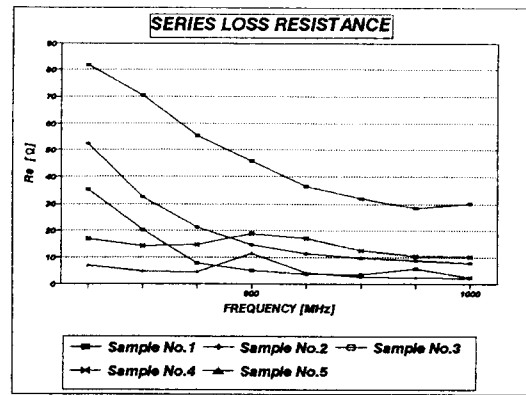


그림 6. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량에 따른 손실저항의 주파수 의존성

Fig 6. Frequency dependence of loss resistance with Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> content

한편, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 첨가되지 않은 No.1 시편과 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 일정량 첨가된 시편들 사이의 손실저항값은 현격한 차이를 나타내고 있으며, 이는 미세구조 분석에서 확인한 바와 같이 결정성장에 참여하지 못하고 입계에 잔존하는 Fe<sup>3+</sup>이온에 의한 영향으로 사료된다. 즉, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 일정량 첨가된 시편들에서는 Al<sup>3+</sup>이온이 Fe<sup>3+</sup>이온을 치환함으로써 시편의 비저항이 증가되고, 입계층에 잔존하는 미반응 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 양이 상대적으로 감소함으로써 낮은 손실저항을 나타내는 것으로 고려된다.

그림 7은 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량에 따른 초투자율(μ')의 주파수 의존성을 나타낸 것이다. 일반 자성재료의 투자율은 주파수가 상승함에 따라 감소하게 되며, 그림 7의 곡선에서도 이러한 경향을 보이고 있다. 그러나, 850[MHz]이상의 주파수영역에서는 각 시편들 사이의 초투자율값에 커다란 차이가 없는 것으로 보아 기본조성에 대한 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가가 초투자율의 변화에는 특별한 영향을 미치지 못하는 것으로 사료된다.

그림 8은 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가량 변화에 따른 상대손실

계수의 주파수의존성을 나타낸 것이다. 상대손실계수는 자석을 고주파에서 구동시킬 때 발생하는 히스테리시스손실, 와전류손실, 잔류손실의 합에 의해서 결정되므로 전자재료의 고주파성능을 나타내는 중요한 지표이며, 각각의 재료에 대하여 가능한 낮은 값이 요구된다.

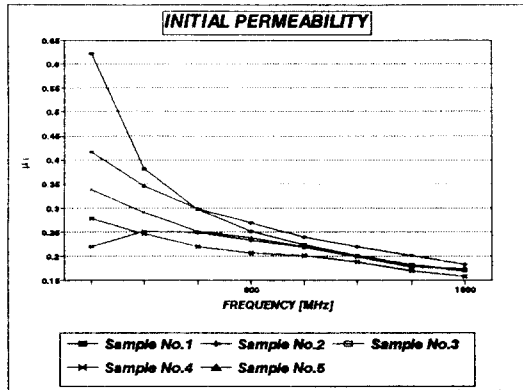


그림 7. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량에 변화에 따른 초투자율의 주파수의존성

Fig. 7. Frequency dependence of initial permeability with Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> content

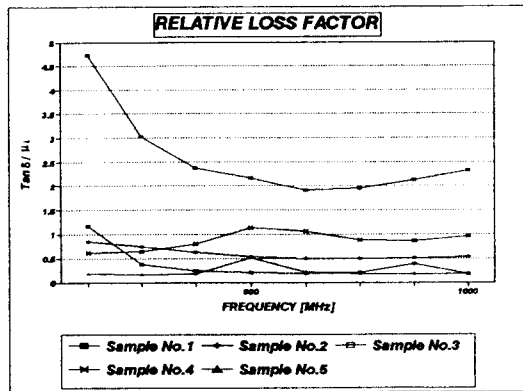


그림 8. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가량 변화에 따른 상대손실계수의 주파수 의존성

Fig. 8. Frequency dependence of relative loss factor with Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> content

그림으로 부터 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 전혀 첨가되지 않은 No.1 시편에 비하여 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 일정량 첨가된 그밖의 시편들에서 상대손실계수가 현저히 감소되었음을 알 수 있다. 이러한 현상은 자석이동기구만으로 충분히 포화자화에 도달할 수 있는 No.1 시편에 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 첨가됨에 따라서 시편의 자화과정이 자벽

이동 뿐만 아니라 회전자화에 의해서도 이루어지기 때문으로 생각된다. 회전자화기구는 자석이동기구에 비하여 높은 에너지가 요구되며, 또한 자벽형성이 어려운 경우(입자직경 3[μm] 이하)에 발생하므로 외부자계에 둔감하며, 상대손실계수를 낮추는데 기여할수 있다. 그러나, 회전자화에 의한 자화기여도는 매우 작기 때문에 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 과잉첨가할 경우 자기적 특성에 악영향을 미칠 수도 있다. 즉, 그림 8에서 No.5 시편의 상대손실계수 곡선이 매우 낮은 값을 나타내고 있으나 자기이력곡선측정 및 미세구조관측 결과로부터 확인한 바와 같이 양호하지 않은 자기특성을 나타내는 사실과도 일치한다.

#### 4. 결 론

Y<sub>3</sub>Fe<sub>5-x</sub>Al<sub>x</sub>O<sub>12</sub>(0 ≤ x ≤ 2.5) 가네트 자성재료의 자기특성 및 주파수의존성을 측정, 분석한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) No.2, No.3 시편은 기본 YIG 조성을 갖는 No.1시편과 비교하여 포화 자속밀도(Bs)는 작아졌으나, 보자력(Hc), 초투자율(μ<sub>i</sub>), 손실저항(Rs), 상대손실계수 등의 특성이 현저히 개선되었다. 특히, No.2 시편의 경우에 있어서 그 개선도가 훨씬 우수하였다.

(2) No.4, No.5 시편의 경우는 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 과잉첨가되어 완전한 가네트구조 형성에 참여 하지 못하고 입계에 잔존하며, 이러한 과잉 첨가된 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>는 저항성분으로 작용하여 고주파영역에서의 손실특성을 개선하였으나, 상대적으로 Bs, μ<sub>i</sub> 등의 자기물리정수값들을 극히 낮춤으로서 자성재료로서의 성질을 상실하였다.

이상의 결과로 부터, YIG의 기본조성에 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 0.5[mol%] 첨가시킨 경우, YIG의 자기특성 및 고주파특성을 현저히 개선시킬 수 있었다.

#### 참 고 문 헌

1. Alex Goloman , " Morden Ferrite Technology " Vau Nostrand Reinhold, pp.39-43 (1990)
2. 平賀貞太郎, " フェライト ",丸善株式會社 ,pp. 58-152,(1986)
3. Gordon R. Harrison, "Microwave Garnet Compounds", Marcel Dekker, Inc. New York pp.367-405 (1972)

4. 金柄勳, 宋宗澤 etc. 共譯, "세라믹스總論", 半島出版社, pp 472-491 (1991)
5. Cullity, "Introduction to Magnetic Material" Addison-Wesley Publishing Company pp.232-390 (1972)
6. J.D.Adam, S.V.Krishnaswamy, S.H.Talisa and K.C.Yoo, "Thin-film Ferrites for Microwave and Millimeter-wave Applications", Journal of Magnetism and Magnetic Materials 83 pp.419-424 (1990)
7. Ronald F.Soochoo, "Microwave Magnetics", Happer and Row Publishers. New York, pp. 190-194 (1985)
8. Chiu - wen Chen, "Magnetism and Metallurgy of Soft Magnetic Materials", North-Holland Pub. Co., pp.395-417(1977)
9. E.C.Snelling, "Soft ferrites properties and applications", Butter worths, pp.26-31 (1988)



**홍기원**

1968년 4월 25일생. 1992년 2월 광운대학교 전기공학과 졸업. 1994년 2월 동대학교 전기공학과 전기·전자재료 연구실 (석사). 현재 현대전자 반도체 2연구소 소자특성실 연구원.



**장경욱**

1963년 8월 27일생. 1986년 2월 광운대학교 전기공학과 졸업. 1988년 9월 광운대 전기공학과 석사. 1993년 9월 광운대 전기공학과(공학). 1995년 현재 경원전문대학 자동차 정비과 전임강사.



**김명호**

1963년 5월 11일생. 1989년 강원대 공대 전기공학과 졸업. 1991년 광운대 대학원 전기공학과 졸업(석사). 1994년 현재 동대학원 전기공학과 박사과정. 1995년 현재 경원전문대 건축설비과 전임강사.



**이준웅**

1940년 10월 24일생. 1964년 2월 한양대학교 전기공학과 졸업. 1970년 2월 한양대학교 전기공학과(석사). 1979년 9월 France 국립 Montpellier 전기공학과(공학). 1990년 1월 -12월 미국 미시시피주립대 교환교수. 1995년 현재 광운대 전기공학과 교수. 현재 당 학회 편수위원장.