

# NiCuZn 계 페라이트의 조성에 따른 복소투자율 변화 해석

남중희 · 오재희

인하대학교 무기재료공학과

인천광역시 남구 용현동 253

(1996년 12월 6일 받음, 1997년 1월 9일 최종수정본 받음)

본 연구에서는  $(Ni_xCu_{0.2}Zn_{0.8-x}O)_{1-w}(Fe_2O_3)_{1+w}$  의 Ni 함량(x)과  $Co_3O_4$  첨가량에 따른 복소투자율 변화에 관하여 검토하였다. Ni 함량  $x=0.6$  이상에서는 매우 좁은 투자율 허수항( $\mu''$ ) 피크가 형성됨으로서 다른 조성에 비해 손실이 적음을 알 수 있었고 공명주파수( $f_{\mu''max}$ )는 Ni 함량의 변화와 비례하여 현저하게 증가하였다.  $Fe_2O_3$  결핍량(w)이 많을 수록  $\mu''$  값은 낮았으나,  $Fe_2O_3$  결핍량(w)의 변화가 공명주파수에는 큰 영향을 미치지 않는 경향을 나타내었다. NiCuZn 페라이트 조성에 대하여  $Co_3O_4$ 를 첨가한 경우는 첨가량이 많아짐에 따라 초기투자율이 감소하여  $f_{\mu''max}$  값은 증가하였으나, 전체적인 손실의 정도를 제어하는데에는 Ni 함량을 변화시키는 것이 더 효과적임을 알 수 있었다.

## I. 서 론

스피넬 페라이트가 고주파수 영역에서의 우수한 특성을 나타내기 위해서는 페라이트 조성의 손실이 적어야 하는데, 이러한 손실의 정도를 구분할 수 있는 인자로서 페라이트 조성의 초기투자율을 예로 들 수 있다. 이와 같이 초기투자율을 제어하기 위한 인자로는 결정 자기이방성 상수, 자왜 상수, 내부 응력 등이 있으며, 이들 인자는 조성에 따라 민감한 변화를 나타낸다. 특히, 스피넬 페라이트 조성중에서 Ni의 함량에 따라서는 자왜상수가 크게 변하며, Co를 소량 첨가할 경우 유도자기이방성이 증가함으로써 초기투자율이 감소하기 때문에 이러한 조성 변화에 따라서도 초기투자율의 크기를 조절할 수 있다[1, 2]. 또한, 스피넬 페라이트의 주파수에 대한 복소투자율 변화를 고찰해 보면, 특정 주파수 영역에서 자기 완화(magnetic relaxation)에 의한 분산 현상을 관찰할 수 있으며, 이는 페라이트의 조성과 그에 따른 초기투자율 변화와 관련이 있다[3]. 이러한 복소투자율의 주파수 의존성 변화를 통하여 응용 주파수 영역에 대한 NiCuZn 계 페라이트 소재의 특성을 구분함으로써, 조성 변화에 따른 응용 범위의 확대를 기대할 수 있다고 본다.

따라서, 본 연구에서는 NiCuZn 계 페라이트의 Ni 함량과 첨가제로 사용한  $Co_3O_4$ 의 첨가량에 따른 초기 투자율 및 복소투자율 변화로부터, NiCuZn 계 페라이트의 조성 변화에 따른 손실 특성에 관하여 검토하였다.

## II. 실험방법

### 2.1 시편 제조

출발원료로는 고순도의 NiO, CuO, ZnO,  $\alpha-Fe_2O_3$ 를 사용하여 일정 비율로 칭량하였고, polyethylene 용기와 nylon ball을 이용하여 10시간 혼합한 후 건조하고 750 °C에서 2시간 동안 하소하여 스피넬상의 분말을 제조하였다. 하소한 분말은 stainless steel ball(직경 5 mm)을 사용하여 40시간 분쇄하고 1,000 kg/cm<sup>2</sup>의 성형압으로 toroid 형태의 성형체를 제조하였다. 첨가제로는  $Co_3O_4$ 를 선택하여 일정량 무게비로 첨가하였다. 소결 온도는 900 °C, 유지 시간은 5시간으로 하였고, 공기중에서 5 °C/min의 승온 및 냉각 과정을 거쳐 소결체를 제조하였다.

### 2.2 물성 측정

Toroid 시편에 대한 코일의 권선수를 10회로 하여 100 kHz에서 Impedance Analyzer로 inductance(L)를 측정하였으며, Spectrum Analyser를 이용하여 1~500 MHz의 범위에서 시편의 복소투자율 변화를 측정하였다. 시편의 초기투자율( $\mu_i$ )은 다음 식에 의하여 계산하였다.

$$L_o = \frac{(0.4 \cdot S \cdot N^2)}{D} \times 10^{-2} [\mu H]$$

$$S : \text{toroid의 단면적, } S = \frac{d_o - d_i}{2} \times t$$

t : 시편의 두께

N : Coil의 권선수 (= 10)

$$D = d_o - C$$

$$C = \frac{d_o - d_i}{2} \quad (d_o, d_i : \text{시편의 외경, 내경})$$

$$\mu_i = \frac{L}{L_o} \quad (L : \text{measured value})$$

### III. 결과 및 고찰

#### 3. 1 NiCuZn 페라이트 조성에 따른 복소투자율 변화

저은 소결 및 전자기적 특성이 우수한 NiCuZn 페라이트 조성[4]으로서  $(\text{Ni}_x\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.8-x}\text{O})_{1-w}(\text{Fe}_2\text{O}_3)_{1+w}$  을 택하여 Ni 함량을  $x=0.1\sim 0.7$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  결핍량을  $w = -0.02\sim -0.1$ 로 변화시켜 실험을 진행하였다.

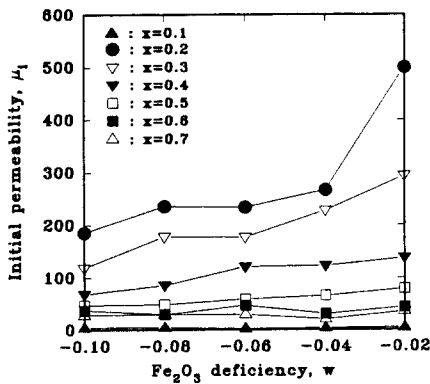


Fig. 1. Initial permeability of  $(\text{Ni}_x\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.8-x}\text{O})_{1-w}(\text{Fe}_2\text{O}_3)_{1+w}$  ferrites sintered at  $900\text{ }^\circ\text{C}$  for 5 hours.

Fig. 1은  $(\text{Ni}_x\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.8-x}\text{O})_{1-w}(\text{Fe}_2\text{O}_3)_{1+w}$ 의 소결체에 대한 초기투자율의 변화를 나타낸 결과이다. 대체로  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  결핍량이 많아질수록 초기투자율은 감소하는 경향이었으며 Ni 함량이  $x=0.2$ 에서  $x=0.7$ 로 증가함에 따라  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  결핍량의 증가에 따른 초기투자율의 감소 정도는 크게 완화된 것을 알 수 있다. 또한,  $x=0.2$ 에서  $x=0.7$ 로 증가하면 NiCuZn 페라이트의 초기투자율값이 현저하게 감소하는데, Ni 함량이  $x=0.5$  이상인 경우는  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  결핍량  $w = -0.02\sim -0.1$ 에 대한 초기투자율의 변화폭이 다른 조성에 비하여 매우 작음을 알 수 있었다. 일반적으로 초기투자율이 높은 조성은 고주파수 영역에서의 손실이 커서 Q값이 낮게 되므로 저손실 특성을 갖기 위해서는 Ni 함량과  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  결핍량이 많은 조성이 바람직하다고 생각한다.

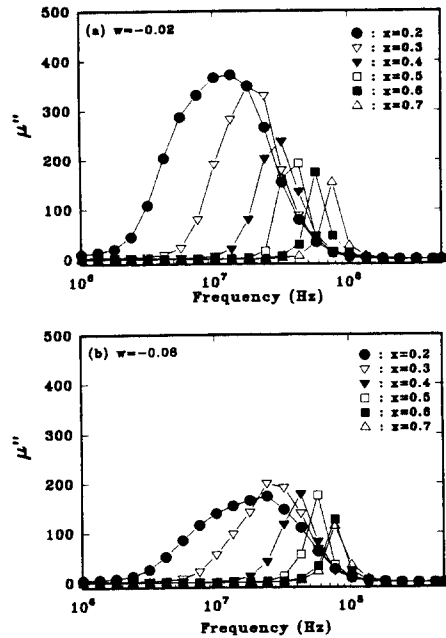


Fig. 2. Imaginary part of complex permeability of  $(\text{Ni}_x\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.8-x}\text{O})_{1-w}(\text{Fe}_2\text{O}_3)_{1+w}$  ferrites sintered at  $900\text{ }^\circ\text{C}$  for 5 hours.

$(\text{Ni}_x\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.8-x}\text{O})_{1-w}(\text{Fe}_2\text{O}_3)_{1+w}$ 의 조성에서  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  결핍량  $w = -0.02, w = -0.08$ 에 대하여 복소투자율을 측정하는 결과를 Fig. 2에 나타내었다.  $x$ 값이 증가할수록 투자율 허수항 ( $\mu''$ )의 피크가 형성되는 주파수 영역이 좁아지고 최대가 되는 주파수도 점차 증가하여 손실 정도가 감소함을 알 수 있는데, 이러한 현상은 Ni이 함유된 스피넬 페라이트에서 Ni 함량이 증가하면 자왜상수  $\lambda$ 가 증가하여 초기투자율이 감소하기 때문에  $\mu''$ 이 최대가 되는 주파수 ( $f_{\mu''\text{max}}$ ) 즉, 공명주파수는 증가하게 되는 것이다. Fig. 2에서와 같이  $f_{\mu''\text{max}}$  값이 증가하게 되는 이유는, 스피넬 페라이트 구조내에서  $\text{Ni}^{2+}$ 의 확산이 용이하지 않으므로[3] 자벽의 이동에 의한 자화 기구에 영향을 미치지 때문인 것으로 생각된다.

Fig. 2에서의 복소투자율 변화를 Ni 함량( $x$ )과  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  결핍량( $w$ )에 대한  $f_{\mu''\text{max}}$  값으로 나타내면 Fig. 3과 같다.  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  결핍량이 많아짐에 따라  $f_{\mu''\text{max}}$  값이 약간씩 증가하고 있음을 알 수 있는데, 이는 NiCuZn 페라이트 조성에서  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  결핍량에 따른 공명주파수의 변화와 관련된 것[3]으로 생각된다. 즉, 출발 물질 조성이  $w=0$ 이면 분쇄시의 Fe 혼입으로 인해 결국  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  과잉 조성이 되므로  $900\text{ }^\circ\text{C}$ 와 같이 낮은 소결 온도로는 높

은 소결밀도를 얻을 수 없게 되지만, 일정량 이상  $Fe_2O_3$  결핍된 상태가 되면 산소 이온의 빈자리를 통한 양이온의 확산을 용이하게 하여 소결이 촉진된다. Fig. 3의 결과와 같이  $Fe_2O_3$  결핍량이  $w = -0.02 \sim -0.1$ 의 범위로 변하더라도  $f_{\mu'' \max}$  값에는 큰 변화가 없고 오히려 Ni 함량에 따라서 현저한 차이를 보이고 있으므로, 결국 페라이트 조성중의  $Fe_2O_3$  함량은 전체적인 소결 과정에서 중요한 역할을 하며, 그에 따른 소결체의 미세구조 등의 변화로 인해 전자기적 특성에도 영향을 미치지만 그 정도는 상대적으로 작음을 알 수 있다. 따라서, NiCuZn 페라이트의 조성중의  $Fe_2O_3$  결핍량 보다는 Ni 함량 변화가 공명주파수 ( $f_{\mu'' \max}$ )의 변화에 지배적인 영향을 미치는 인자임을 확인할 수 있었다.

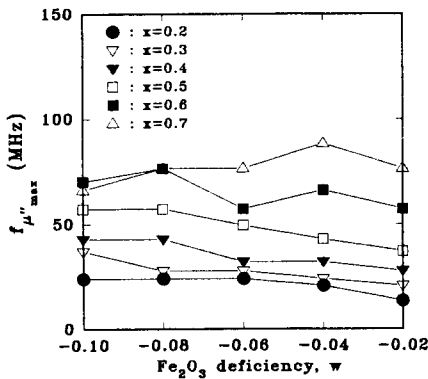


Fig. 3. Relationship of frequency at  $\mu''_{\max}$  and  $Fe_2O_3$  deficiency of  $(Ni_xCu_{0.2}Zn_{0.8-x}O)_{1-w}(Fe_2O_3)_{1+w}$  ferrites sintered at  $900\text{ }^\circ\text{C}$  for 5 hours.

NiCuZn 페라이트의 조성 변화에 따른 손실 특성을 검토하기 위하여 복소투자율 측정 결과로부터 얻은 Cole-Cole plot [3, 5]을 Fig. 4에 나타내었다.  $(Ni_xCu_{0.2}Zn_{0.8-x}O)_{1-w}(Fe_2O_3)_{1+w}$ 의 조성에서  $Fe_2O_3$  결핍량  $w = -0.08$ 의 Cole-Cole plot 형태를 보면  $w = -0.02$ 에 대한 경우 보다 그 면적이 훨씬 작음을 알 수 있으며, 그 만큼 자기 완화 현상(magnetic relaxation phenomenon)에 의한 손실이 적음을 의미하므로, 이로부터  $w = -0.08$ 의 경우가  $w = -0.02$  보다는 상대적으로 저손실 NiCuZn 페라이트 조성임을 확인할 수 있었다. 또한, x값이 증가할수록  $w = -0.02$  및  $w = -0.08$ 의 Cole-Cole plot 형태가 타원이나 반원이 아닌 다각형 모양을 형성하고 있는데, 이것은 다른 조성에 비하여 초기투자율이 낮을수록 공명주파수가 증가하여 자기 완화 현상이 발생하는 주파

수 영역이 그 만큼 좁음을 의미하는 것이다. 따라서, NiCuZn 페라이트 조성의 Ni 함량과  $Fe_2O_3$  결핍량을 적절하게 제어하면 응용 주파수 범위가 비교적 넓은 저손실형 페라이트 소재의 제조가 가능할 것으로 기대된다.

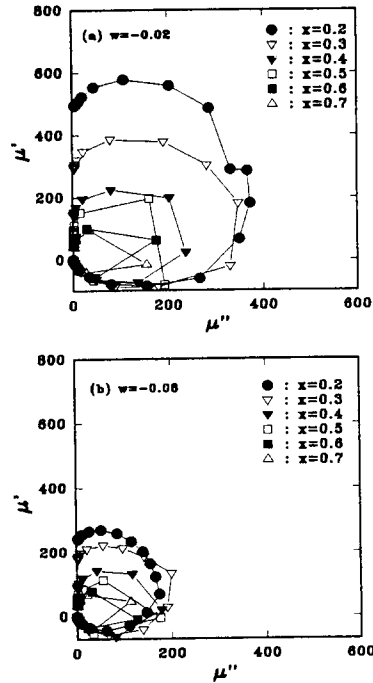


Fig. 4. Cole-Cole plot for complex permeability of  $(Ni_xCu_{0.2}Zn_{0.8-x}O)_{1-w}(Fe_2O_3)_{1+w}$  ferrites sintered at  $900\text{ }^\circ\text{C}$  for 5 hours.

### 3.2 $Co_3O_4$ 가 첨가된 NiCuZn계 페라이트 조성에 따른 복소투자율 변화

$(Ni_xCu_{0.2}Zn_{0.8-x}O)_{1.02}(Fe_2O_3)_{0.98}$ 의 조성에서 Ni 함량  $x = 0.2, x = 0.6$ 에 대하여  $Co_3O_4$ 를 무게비로 첨가한 경우의 조성에 따른 복소투자율 변화를 통해 NiCuZn계 페라이트의 손실 특성을 검토하였다.

Fig. 5는  $Co_3O_4$ 를 첨가한 상기 NiCuZn 페라이트 조성에 대한 초기투자율의 변화이다.  $Co_3O_4$ 의 첨가량이 증가할수록 초기투자율은 감소하였는데, 이는 본 연구에서와 같이  $Fe_2O_3$  결핍 조성인 경우  $Co^{2+} \leftrightarrow Co^{3+} + e$ 의 전자 확산에 의해 결보기상 존재하는  $Co^{2+}$ 의 이동에 따라 유도자기이방성이 발생하여 자력이 안정한 위치로 고착[2]되기 때문에 초기투자율이 감소하게 되는 것으로 설명할 수 있다.

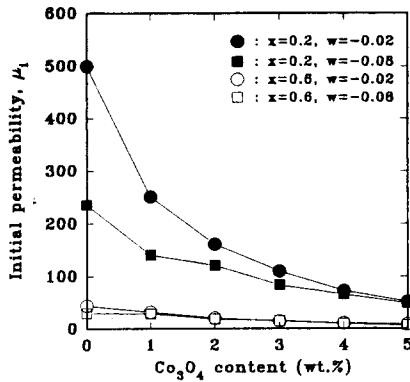


Fig. 5. Initial permeability of  $(Ni_xCu_{0.2}Zn_{0.8-x}O)_{1-w}(Fe_2O_3)_{1+w}$  ferrites with addition of  $Co_3O_4$  sintered at  $900\text{ }^\circ\text{C}$  for 5 hours.

또한, 일반적으로 NiZn 페라이트는 자기이방성 상수  $K$  값이 음(negative)의 값이므로, Co의 첨가로 인해 상온에서  $K$  값이 음에서 양(positive)의 값으로 변하게 되어 초기투자율이 감소하는 것[6, 7]으로도 생각할 수 있다. 이러한 현상을 설명하기 위하여  $Co_3O_4$ 가 첨가된  $(Ni_xCu_{0.2}Zn_{0.8-x}O)_{1.02}(Fe_2O_3)_{0.98}$  ( $x=0.2, x=0.6$ )의 조성에 대하여 복소투자율을 측정 한 결과를 Fig. 6에 나타내었다.  $Co_3O_4$ 의 첨가량이 증가할 수록 공명주파수 ( $f_{\mu''\text{max}}$ )가 증가하는 경향임을 알 수 있는데, Fig. 2와 Fig. 6의 결과를 비교해 보면 Fig. 2에 나타난 Ni 함량에 따른 복소투자율의 변화로부터 주파수 영역별로  $f_{\mu''\text{max}}$  값이 이동하는 현상을 보다 분명하게 구분할 수 있다. 이는 NiCuZn 페라이트 조성별 초기투자율의 변화로부터 공명주파수 또는  $f_{\mu''\text{max}}$ 를 제어하는데에는 Ni 함량의 변화가 결정적인 영향을 미치는 변수임을 뒷받침할 수 있는 결과라고 생각한다.

Fig. 6에서는 Ni 함량이  $x=0.2$ 와  $x=0.6$ 인 경우가 서로 다른  $\mu''$ 의 변화 형태를 보이고 있는데, Fig. 6(a)는  $\mu''$  피크 폭의 주파수 영역에 대한 상한선이 거의 일정한 상태이지만, Fig. 6(b)는  $\mu''$  피크 폭은 상대적으로 좁으며,  $Co_3O_4$ 의 첨가량이 많아질 수록 이에 해당하는 주파수 영역이 약간씩 고주파수쪽으로 이동하고 있음을 알 수 있다. 즉, Ni 함량이 많은 NiCuZn 페라이트에  $Co_3O_4$ 를 첨가하면, Fig. 3과 같은 Ni 함량 조절에 따른 공명주파수의 제어 뿐만 아니라,  $Co_3O_4$  첨가로 인하여 공명주파수를 더 높일 수도 있을 것으로 예상된다. 또한, Fig. 6의 복소투자율 결과로 제시된 바와 같이  $x=0.6$ 으로서 Ni 함량이 많은 조성일 경우에는 자기 완화 현상이 발생하는

주파수 영역이 매우 좁게 형성되므로, 이로 부터 얻은 Fig. 7의 Cole-Cole plot도 타원형이 아닌 다각형 모양을 갖게 됨을 알 수 있다. 즉, 자기 완화 현상에 의한 손실이 발생하는 주파수 영역이 상대적으로 좁고 공명주파수 부근 이외에는 주파수 변화에 따른 자기 완화 현상이 거의 생기지 않으므로, Ni 함량이  $x=0.2$ 인 조성에 대한 복소투자율 변화와 비교해 보면  $x=0.6$ 일 때가 저손실형 NiCuZn 페라이트 소재로서 바람직함을 알 수 있다.

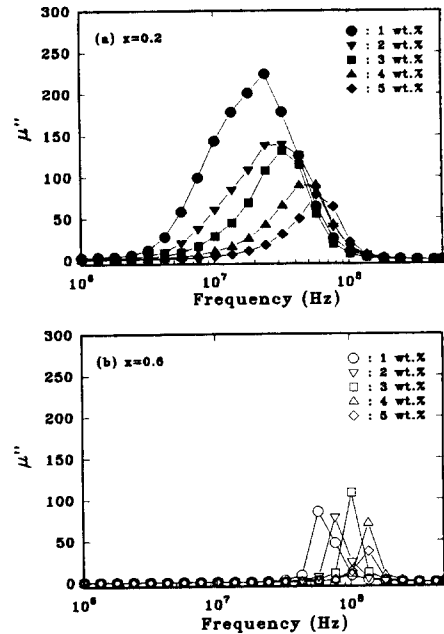


Fig. 6. Imaginary part of complex permeability of  $(Ni_xCu_{0.2}Zn_{0.8-x}O)_{1.02}(Fe_2O_3)_{0.98}$  ferrites with addition of  $Co_3O_4$  sintered at  $900\text{ }^\circ\text{C}$  for 5 hours.

Fig. 7은 Fig. 6의 복소투자율 변화로부터 얻은 Cole-Cole plot의 결과이다.  $Co_3O_4$ 의 첨가량이 증가함에 따라 Cole-Cole plot의 크기가 작아짐으로써 그만큼 손실이 감소하고 있음을 알 수 있었다. 한편, Fig. 7(a)는  $Co_3O_4$  첨가량이 증가하여 초기투자율이 감소하더라도 대체로 타원형을 유지하는 것으로 보아 Fig. 4(a)의 결과와는 달리 주파수 변화에 따른 NiCuZn 계 페라이트의 손실 기구를 해석하는데 있어서 서로 다른 특성을 나타내고 있는 결과라고 생각된다.

이상과 같이 3. 2절에서 설명한  $(Ni_xCu_{0.2}Zn_{0.8-x}O)_{1-w}(Fe_2O_3)_{1+w}$  ( $x=0.2, x=0.6/w=-0.02, w=-0.08$ )의 조성에 대하여  $Co_3O_4$ 의 첨가량에 따른

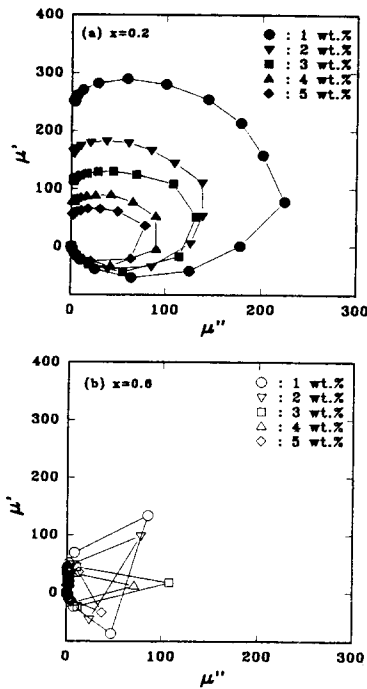


Fig. 7. Cole-Cole plot for complex permeability of  $(\text{Ni}_x\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.8-x}\text{O})_{1.02}(\text{Fe}_2\text{O}_3)_{0.98}$  ferrites with addition of  $\text{Co}_3\text{O}_4$  sintered at  $900^\circ\text{C}$  for 5 hours.

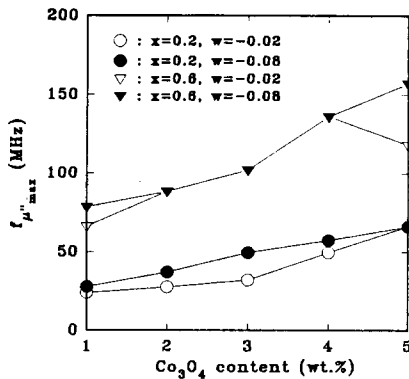


Fig. 8. Relationship of frequency at  $\mu''_{\max}$  and  $\text{Co}_3\text{O}_4$  content of  $(\text{Ni}_x\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.8-x}\text{O})_{1-w}(\text{Fe}_2\text{O}_3)_{1+w}$  ferrites sintered at  $900^\circ\text{C}$  for 5 hours.

NiCuZn 페라이트 조성의 공명주파수 ( $f_{\mu''_{\max}}$ ) 변화를 Fig. 8에 나타내었다.  $\text{Co}_3\text{O}_4$ 의 첨가량이 증가함에 따라 초기투자율의 크기에 무관하게  $f_{\mu''_{\max}}$  값의 변화는 증가

하는 경향이였다. 또한, 3. 1절에서 서술한 바와 같이 Fig. 2와 Fig. 6의 결과를 비교해 보더라도,  $\text{Co}_3\text{O}_4$ 를 첨가한 경우는  $\mu''$  피크 변화 폭만 감소시켰을 뿐, Fig. 2와 같은  $\mu''$  피크 형태 변화에는 거의 영향을 주지 않았지만 공명주파수는 증가하였음을 알 수 있었다.

#### IV. 결 론

본 연구에서는 NiCuZn계 페라이트 조성으로 부터 얻은 복소투자율 변화를 통하여 손실 특성의 차이를 고찰하였다. Ni 함량에 따라 NiCuZn계 페라이트의 초기투자율이 민감하게 변하였으나, Ni 함량이 증가할 수록 주파수에 따른 투자율 허수항의 피크 폭이 감소하였고 이로 부터 다른 조성에 비하여 상대적으로 손실이 적게 발생함을 알 수 있었다. 또한, NiCuZn 페라이트에  $\text{Co}_3\text{O}_4$ 를 첨가한 경우, 전체적인 복소투자율의 변화에는 큰 영향을 미치지 않았으며, 첨가량이 증가함에 따라  $f_{\mu''_{\max}}$  즉, 공명주파수값은 증가하였다. 따라서, NiCuZn계 페라이트가 고주파수 영역에서 손실이 적은 저손실형 조성을 갖기 위해서는 Ni 함량이 많고  $\text{Co}_3\text{O}_4$ 와 같은 적절한 첨가제를 사용하는 것이 효과적임을 확인할 수 있었다.

#### 감사의 글

본 연구는 1995년도 과학기술처 특정연구개발사업의 연구비 지원으로 수행되었으며, 이에 감사드리는 바입니다.

#### 참고문헌

- [1] 近角聰信, 太田惠造, 安達健五, 津屋 昇, 石川義和, "磁性體ハンドブック", 朝倉, pp. 767-878 (1987).
- [2] J. G. M. de Lau and A. L. Stuijts, Philips Res. Rept., **21**, 104 (1966).
- [3] Joong-Hee Nam and Jae-Hee Oh, J. Magnetism, **1**(1), 37 (1996).
- [4] 남중희·정현학·신재영·오재희, 한국자기학회지, **5**(3), 191 (1995).
- [5] J. Smit and H. P. J. Wijn, FERRITES, Philips, Eindhoven, Netherlands, pp. 216-300 (1959).
- [6] M. Manzel, F. Voigt and P. Kleinet, Phys. Stat. Sol., **3**, 1392 (1963).
- [7] S. Miyamoto, N. Tanaka and S. Iida, J. Phys. Soc., Jpn., **20**, 753 (1965).

## Complex Permeability Analysis of NiCuZn Ferrites

Joong-Hee Nam and Jae-Hee Oh

*Department of Ceramic Engineering, Inha University, Incheon 402-751, Korea*

(Received 6 December 1996, in final form 9 January 1997)

The characteristics of the complex permeability of  $(\text{Ni}_x\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.8-x}\text{O})_{1-w}(\text{Fe}_2\text{O}_3)_{1+w}$  with various Ni and  $\text{Co}_3\text{O}_4$  contents were investigated in this work. It is found that the NiCuZn ferrites with  $x \geq 0.6$  have a relatively small peak width of the imaginary part of permeability  $\mu''$ . The resonance frequency is increased as Ni content becomes higher, where the loss is low. The  $\mu''$  value decreases with increasing  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  deficiency, but the resonance frequency ( $f_{\mu'' \text{ max}}$ ) is only slightly affected by  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  deficiency. In case of  $\text{Co}_3\text{O}_4$  addition to the NiCuZn ferrites, the  $f_{\mu'' \text{ max}}$  increases since the initial permeability decreases with the amount of  $\text{Co}_3\text{O}_4$ . It is concluded that the Ni content in the NiCuZn ferrite is a dominant factor for the total loss of these spinel ferrites.