

논문 16-6-15

## Re<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(R=Dy, Gd, Ho)첨가에 따른 Mn-Zn ferrite의 고주파 특성에 관한 연구

### A Study on the High Frequency Properties of Mn-Zn ferrite with Re<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(R=Dy, Gd, Ho) Addition

최우성  
(U-Sung Choi)

#### Abstract

We studied effects by Re<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(R=Dy, Gd, Ho) addition on the properties of Mn-Zn ferrite. The doping concentration range from 0.05 wt% to 0.25 wt%. All samples were prepared by standard fabrication of ceramics. With increasing the rare earth oxides, specific density and initial permeability increased on the whole. But, the tendencies such as upper result had the measured value on limitation and characteristics saturated or decreased properties after that. In case of excessive addition of additive beyond some level, initial permeability properties of ferrite have gone down in spite of anomalous grain. With increasing the content of additive, both the real and imaginary component of complex permeability and the magnetic loss (tanδ) increased. Because the increased rate of real component had higher than imaginary component, magnetic loss increased none the less for increasing the real component related with magnetic permeability. But, the magnetic loss of ferrite doped with the rare earth oxides was lower than that of Mn-Zn ferrite at any rate. The small amount of present rare earth oxides in Mn-Zn ferrite composition led to enhancement of resistivity in bulk, and more so in the grain boundary. It was seem to be due to the formation of mutual reaction such as between iron ions and rare earth element ions.

**Key Words** : Ferrite, Permeability, Magnetic loss, Rare earth

#### 1. 서론

최근 전자기기의 소형화와 다기능화 추세에서 사용 부품의 주파수 영역이 고주파 영역으로 확대되고 있으며, 예로 동작 주파수가 20~50 kHz 정도밖에 되지 않는 SMPS (Switching Mode Power Supply)가 소형화에 의해 최근에는 수 MHz 까지

작동영역이 확장되고 있다. 하지만 사용주파수가 증가함에 따라 자기적인 특성의 하락이 일어나게 되어 낮은 초투자율과 높은 손실 문제 등으로 인한 자체 특성의 하락은 물론 주위에 있는 부품들의 기능에도 좋지 않은 영향을 미치게 된다. 이에 Mn-Zn Ferrite[1-4]가 가져야 하는 전자기적인 특성향상을 위해서 CaO와 SiO<sub>2</sub>를 첨가하여 밀도의 증가와 고주파 영역에서의 손실감소를 시도[5]하고 있다. 손실특성은 두 첨가제간의 비에 매우 민감한 관련성을 가지고 있으나, 두 첨가제가 과다 첨가된 경우 과대 입성장에 의한 투자율의 하락과 손실의 증가를 일으키는 역효과가 발생하는 문제가 있다.

---

원광대학교 전기전자 및 정보공학부  
(익산시 신용동 344-2,  
Fax : 063-853-8350  
Corresponding Author : uschoi@wonkwang.ac.kr)  
2002년 12월 30일 접수, 2003년 2월 27일 1차 심사완료,  
2003년 3월 19일 최종 심사완료

약하거나 거의 없는 산화물을 첨가하여 입계의 고저항을 생성시켜 낮은 손실과 균일성이 있는 미세구조를 얻으려는 연구[6,7]가 진행되는 등 고주파 영역에서의 손실을 최소화하기 위한 연구가 진행되어 왔으나, 이러한 산화물은 초투자율 특성의 하락을 발생시키는 것으로 보고 되었다.

따라서 본 연구에서는 비교적 자기모멘트가 강하고, 인접 이온에 의한 이온의 자기 특성의 변화가 없는 희토류 산화물을 첨가할 경우 초투자율의 향상은 물론 첨가제의 역할로 동시에 주파수에 의한 저손실의 유지나 감소[8,9]가 예상되는 희토류 산화물 중 Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Ho<sub>2</sub>O<sub>3</sub>을 첨가하여 주파수에 따른 특성의 변화를 살펴보았다.

## 2. 실험 방법

### 2.1 시편제조

Spinel 상을 가지는 페라이트중 대표적인 Mn-Zn Ferrite 의 기본조성을 제조하고 여기에 희토류 산화물을 첨가하여 시편을 제조하였다.

출발원료는 99.9 % 이상의 시약급인 α-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Mn<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, ZnO를 이용하여 α-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>는 산화철 양에 따른 자기응력이 0에 가깝고 Mn<sub>3</sub>O<sub>4</sub>과 ZnO는 고 투자율을 보이는 α-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : Mn<sub>3</sub>O<sub>4</sub> : ZnO = 52 mol% : 25 mol% : 23 mol% 비율로 칭량하여 기본조성을 확보하였다. 칭량한 분말은 습식 볼 밀링을 24시간 실시한 후, Sieve하여 미세분말을 얻었다. 미세분말은 3 °C/min의 승온 속도로 900 °C에서 3시간동안 하소를 실시하고, 분쇄를 실시하여 45 μm이하의 분말을 제조하였다.

합성한 분말에 첨가물 Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Ho<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 각각 0.05 wt%, 0.10 wt%, 0.15 wt%, 0.20 wt%, 0.25 wt%를 칭량하여 첨가한 후 앞선 방법과 같이 분말을 제조하였다. 제조된 분말에 5 wt% PVA 수용액을 10 wt% 첨가하여 pellet 형태와 toroid형의 소체를 각 400 kg/cm<sup>2</sup>의 압력으로 일축가압성형을 실시하였다. 소결은 3 °C/min의 승온온도로 1300 °C와 1350 °C에서 3시간 실시하였고 PVA제거를 위해 400 °C에서 2시간의 온도유지 구간을 두었다.

### 2.2 분석 및 측정

#### 2.2.1 물성분석

소결체의 밀도는 표준규격(ASTM B-311-58)에 의하여 측정하였으며, 이때 사용한 소결밀도는 다음 식에 의하여 계산하였다.

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

이때 W<sub>m</sub>은 공기중에서의 무게(moisture weight), W<sub>s</sub>는 물속에서의 현수무게(suspended weight), W<sub>d</sub>는 건조무게(dry weight)를 측정한 값이다.

제조된 시편의 결정구조를 살펴보고자 XRD peak를 조사하였다. XRD 분석은 X선 회절 분석기(RIKAKU, D-MAX IIIA)를 이용하여 Cu tube에서 30 kV, 20 mA의 조건에서 5 °/min의 scan speed로 20 °에서 80 °의 2θ구간을 측정하였다.

#### 2.2.2 전자기적 특성 분석

전자기적 특성의 분석을 위해 저항률과 초투자율, 복소투자율 및 tanδ값을 살펴보았다.

저항률은 pellet형으로 제작된 시편 양단 표면을 평행하고 고르게 연마한 후 Ag 전극을 약 650 °C에서 20분 정도 열처리하여 KEITHLEY 6517 (High Resistance System)로 시편과 전극간의 저항성접촉을 확인한 후 I-V 특성으로써 따른 저항률을 계산하였다.

초투자율은 외경 20 mm, 내경 12 mm의 mold로 성형 후 소결한 시편을 이용하여 측정하였다. 측정은 임피던스 분석기 (HP4194A)로 제조된 시편에 0.6 mm코일을 11회 감아 인덕턴스를 측정하였고 시편의 두께와 외경, 내경을 측정한 후 수식 [10-12] (2)와 (3)으로 계산하였다.

$$\mu_i = L/L_0 \quad (2)$$

$$L_0 = \frac{0.4SN^2}{D} \times 10^{-2} \quad (3)$$

(μ<sub>i</sub>:초투자율, L:측정 inductance, L<sub>0</sub>:계산 inductance, S:단면적, N:감은회수, D:평균직경)

초투자율을 측정할 시편과 같은 것으로 100 Hz에서 40 MHz까지의 주파수 범위에서 복소 임피던스를 측정하였고, 투자율 값은 임피던스 측정값을 저항 R과 인덕터 L의 직렬 등가회로로 해석하여 수식 (4)~(6)을 이용하여 계산하였다.

$$Z^* = j\omega L_0(\mu' - j\mu'') = R + jX \quad (4)$$

$$\mu' = X/\omega L_0 \quad (5)$$

$$\mu'' = R/\omega L_0 \quad (6)$$

이를 토대로 tanδ를 계산하여 주파수에 따른 손실 특성을 살펴보았다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 물성 분석

본 실험에 의해 제조된 조성을 표 1. 과 같이 명명하였다.

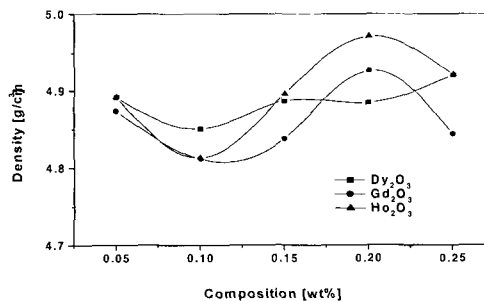
표 1. 실험조성 조성 및 표기.

Table 1. Notation of experimental samples.

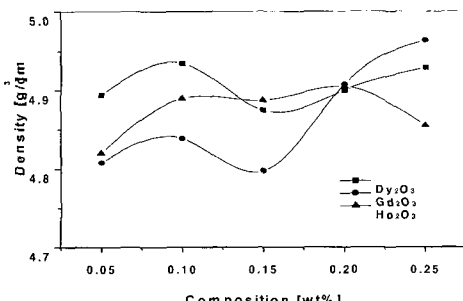
첨가제	조성	$\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3 : \text{Mn}_3\text{O}_4 : \text{ZnO}$ 52 mol% : 25 mol% : 23 mol%				
		0.05 wt%	0.10 wt%	0.15 wt%	0.20 wt%	0.25 wt%
A	Dy <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	A1	A2	A3	A4	A5
B	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	B1	B2	B3	B4	B5
C	Ho <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	C1	C2	C3	C4	C5

##### 3.1.1 밀도 측정

그림 1. 은 1300 °C와 1350 °C로 소결 하였을 때 첨가제와 첨가제 양의 변화에 따른 밀도의 변화를 보여주고 있는 것이다.



(a) sintered at 1300°C



(b) sintered at 1350°C

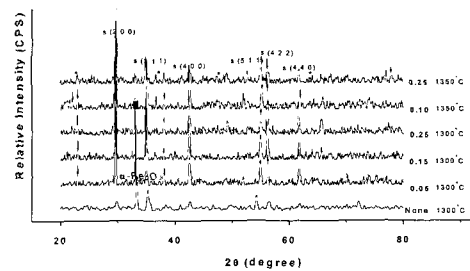
그림 1. 소결된 시편의 성분에 따른 밀도 변화.  
Fig. 1. Variation of the density with the compositions.

1300°C에서 소결한 경우 기본 Mn-Zn ferrite의 밀도는 4.82 g/cm<sup>3</sup>으로 측정되었다. 첨가제를 첨가한 경우에는 Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 0.05 wt% 첨가시 기본 조성보다 높았을 때 그 값은 다소 높게 나타났다. 0.10 wt% 첨가했을 때 밀도가 감소하였으며 이후 지속적으로 증가하는 경향을 보였다. Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>와 Ho<sub>2</sub>O<sub>3</sub>을 0.05 wt%를 첨가하여 기본 조성보다 비교해보면 높은 밀도를 보였다. 0.1 wt% 첨가시 밀도는 감소하는 경향을 보였으며, 0.15 wt% 와 0.2 wt% 첨가시 밀도가 점차로 증가하다가 0.25 wt%에서 다시 감소하였다. 그러나, 기본 조성의 밀도와 비교하였을 때 그 값에서 큰 차이가 없으며, 평균 4.85 g/cm<sup>3</sup>를 보여 밀도값은 실험상의 측정 오차에 따른 변화값이라 생각된다.

1350°C로 소결시 기본 Mn-Zn ferrite는 1300°C와 비교했을 때 거의 변화가 없이 4.84 g/cm<sup>3</sup> 이었다. A와 B 계열은 0.1 wt% 까지 증가하다가 0.15 wt%에서 감소하고, 이후 다시 증가하는 동일한 경향성을 보였으며 0.05 wt% 첨가시 A계열은 기본조성보다 높은 밀도를 보이고 B계열은 낮은 값을 나타냈다. C 계열은 0.2 wt% 까지 증가하다 이후 감소하였다. 1350°C로 소결했을 때 밀도의 변화값은 측정오차에 의한 것으로 생각된다.

##### 3.1.2 결정구조

그림 2.는 X-ray 회절특성을 조사한 것으로 첨가제를 가하지 않은 경우와 첨가한 경우 모두에서 spinel상의 피크(s로 표시)가 관찰되었다. 전체적으로 첨가제를 일정 가하고 1350 °C에서 소결한 경우가 1300 °C에서 소결한 경우 보다 약하게나마 남아 있던  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  상들이 많이 줄어들 것을 볼 수 있었고, 측정강도가 약하기는 하나 새로운 2차상(\*으로 표시)들이 존재하는 것을 알 수 있다. Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 회절패턴은 전체적으로 스피넬상 피크를 보이고 있으며 첨가제에 의해 생성된 것으로 사료되는 약한 2차상들이 보여지고 있다.



(a) Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

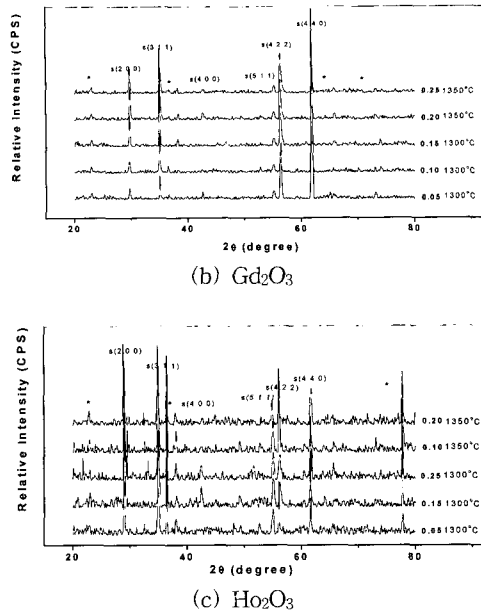


그림 2.  $Re_2O_3$ 가 첨가된 XRD 패턴.  
Fig. 2. XRD patterns with compositions of  $Re_2O_3$ .

$Gd_2O_3$ 의 회절패턴 역시 전체적으로 스피넬상과 첨가제에 의한 2차상의 피크를 볼 수 있다.  $Ho_2O_3$ 는  $Dy_2O_3$ ,  $Gd_2O_3$ 와 비교하였을 때 2차상 피크의 측정 강도가 상대적으로 크며, 스피넬상도 함께 존재하는 것을 볼 수 있다.

Mn-Zn 페라이트의 기본조성과 첨가제를 가한 각 시편에 대한 XRD peak를 내부표준법[13]에 의한 spinel화를 살펴본 결과 모두 85 % 이상의 spinel화를 이루고 있어 매우 우수한 spinel 상을 형성한 것으로 사료된다. 첨가제에 의해 2차상들이 생성된 것으로 보아 내부저항의 증가에 따른 손실의 감소를 예상할 수 있다.

### 3.2 전자기적 특성 분석

#### 3.2.1 저항률 측정

I-V 특성을 0 ~ 20 V 사이에서 측정한 결과 그림 3과 같이 선형적인 특성을 나타내었다. 이러한 결과를 바탕으로 조성에 따른 I-V 특성을 살펴본 결과 그림 4와 같은 저항률을 보였다.

그림 4의 (a)는 1300 °C에서 소결한 시편의 각 첨가물의 양에 따른 저항률의 변화를 나타낸 것이다. 첨가제를 가하지 않은 기본 ferrite의 경우 약 1.1 MΩ-cm를 보였고 첨가제를 첨가한 경우 저항률이 크게 상승하는 것을 볼 수 있다. 첨가제에 따

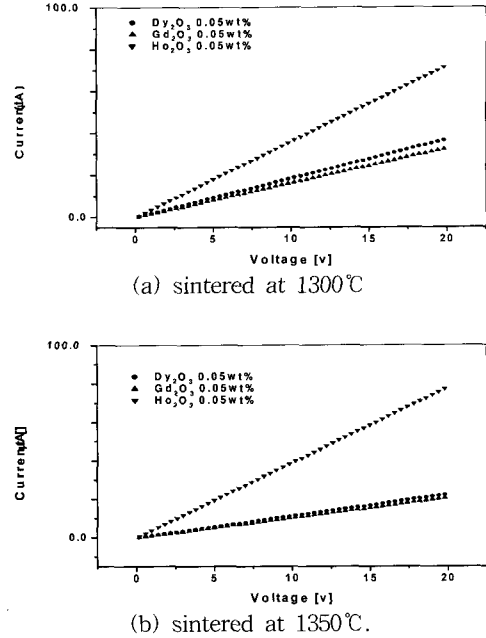


그림 3. 성분에 따른 I-V 변화.  
Fig. 3. Variation of I-V with compositions.

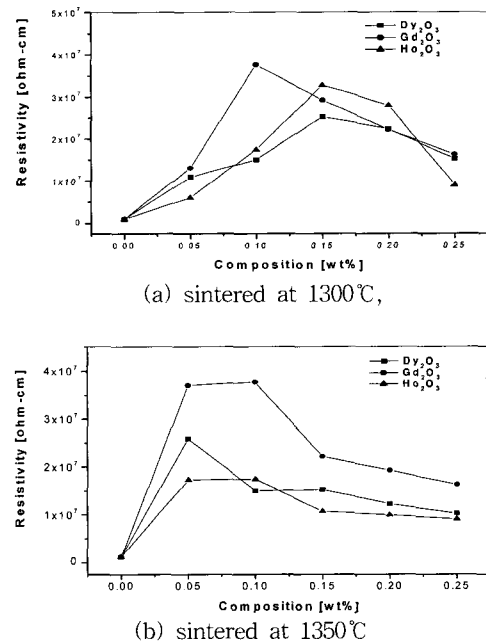


그림 4. 성분에 따른 저항률의 변화.  
Fig. 4. Variation of the resistivity with compositions.

라서 저항률이 증가하는 일정한계 양이 있으며 한계 첨가량 이후에는 저항률이 감소하는 것을 알 수 있었다.

그림 4.의 (b)는 1350℃에서 소결한 시편의 각 첨가물의 양에 따른 저항률의 변화를 나타낸 것이다. 첨가제를 가하지 않은 경우 약 1.3 MΩ-cm를 보였다. 첨가제를 첨가한 경우 1300℃에서 소결한 것과 같이 저항률이 상승하였고 일정한 한계 첨가량이 있고 한계 첨가량 이후 저항률이 감소하는 것을 알 수 있다. 그러나, 1300℃로 소결한 시편과는 달리 저항률이 포화되는 첨가제 양이 전체적으로 줄어드는 것을 볼 수 있다.

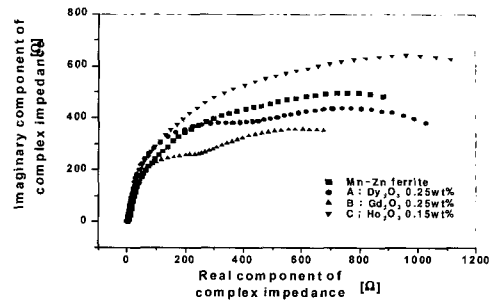
이와 같은 결과에서, 첨가제를 첨가한 경우, 첨가제를 가하지 않은 경우 보다 높은 저항율을 보였으며, 일정한 첨가제 이상은 미량 첨가시보다 오히려 저항률이 하락하는 것으로 확인되었다.

### 3.2.2 복소임피던스 측정

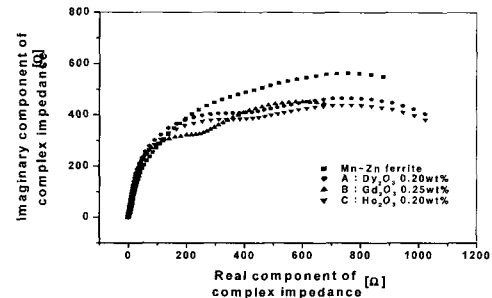
복소 임피던스를 측정한 결과 기본 Mn-Zn 페라이트 조성에서는 1개의 반원을 볼 수 있었다. 희토류 산화물을 첨가한 경우 종류에 따라 다소 차이를 보이지만 0.15 wt% 이하로 첨가한 경우에는 1개의 반원이 실수와 허수 성분의 값의 변화만을 보이다가 0.15 wt% 이상을 첨가하게 되면 2개의 반원을 볼 수 있었다.

그림 5.의 (a)는 1300℃에서 소결하고 임피던스 측정에서 2개의 반원이 보이기 시작하는 조성을 각 첨가제 별로 나타낸 것이다. 첨가제를 가하지 않은 경우에서 임피던스는 한 개의 반원만을 보이고 있으며, 첨가제를 0.15 wt%이상 가한 경우 2개의 반원이 겹쳐진 형태를 보이고 있다. 실제로는 0.05 wt%에서도 두개의 반원이 생성되지만 반원의 직경이 적어 큰 반원에 포함된 채로 나타나는 것으로 사료된다. 그림 5.의 (b)는 1350℃에서 소결한 시편의 임피던스를 측정한 결과로 첨가제를 가하지 않은 경우에는 1300℃에서 소결한 경우와 같이 한 개의 반원을 보이고 있으며, 실수 및 허수 임피던스의 변화도 거의 보이지 않았다. 첨가제를 가하고 1350℃에서 소결한 경우 2개의 반원이 겹친 형태를 보이고 있다. 1300℃에서 소결한 경우와 마찬가지로 실제로는 0.05 wt%에서도 반원이 생성되지만 반원의 직경이 적어 큰 반원에 포함된 채로 나타나는 것이고, 대략 0.15 wt% 이상에서 2개의 반원이 형성된다. 앞에서 1개의 반원이 보여지는 것은 입경과 입경사이에 저항성분이 아주 작다는 것을 의미하지만 2개의 반원이 입경과 입경

사이에 입자와 비슷한 공진주파수를 가진 새로운 저항성분이 생겨났을 것으로 사료된다.



(a) sintered at 1300 °C



(b) sintered at 1350 °C

그림 5. 조성에 따른 복소임피던스.

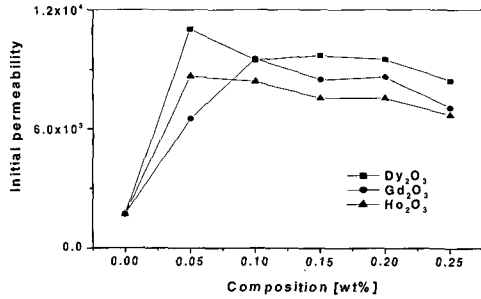
Fig. 5. Complex impedance with various composition.

### 3.2.3 초투자율 측정

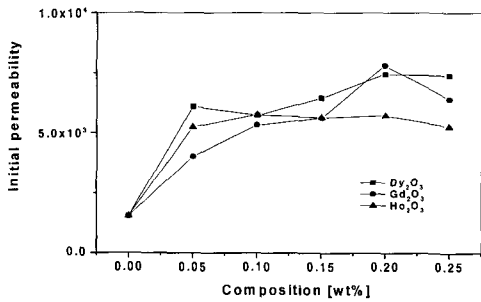
그림 6.은 1300℃로 소결한 시편의 10 kHz에서 측정한 첨가제에 따른 초투자율의 변화를 나타내었다.

첨가제를 가하지 않은 기본 Mn-Zn 페라이트의 초투자율은 약 1500 정도의 값을 보였으나 첨가제를 가한 경우 그 값이 모두 증가하였다. Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Ho<sub>2</sub>O<sub>3</sub>은 0.05 wt%에서 초투자율값이 최고점을 가지고 이후 점차 감소하는 경향을 보였다. Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>는 0.10 wt% 까지 증가하다가 이후 그 값을 유지하였으며, 0.25 wt% 첨가시 감소하였다.

그림 6.의 (b)는 100 kHz에서 측정한 초투자율의 결과이다. Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 첨가한 결과는 10 kHz에서는 0.05 wt%를 정점으로 초투자율이 감소하였으나, 100 kHz에서는 0.1 wt%에서 다소 감소하다 0.15 wt%부터 첨가량이 증가할수록 초투자율이 증가하였다. Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 경우에는 0.20 wt% 까지 지속



(a) at 10 kHz



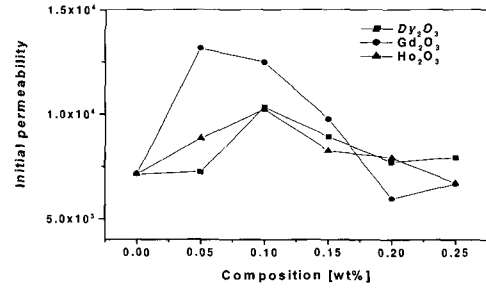
(b) at 100 kHz

그림 6. 1300°C에서 소결한 초투자율의 변화.  
Fig. 6. Variation of the initial permeability sintered at 1300°C.

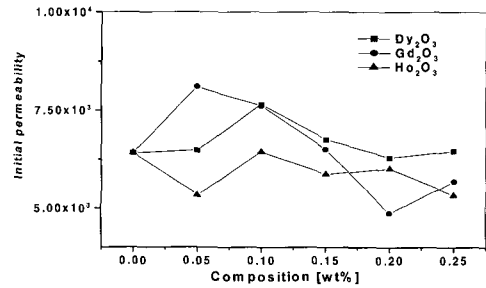
적으로 증가하다가 이후에 감소하는 경향을 보였다. Ho<sub>2</sub>O<sub>3</sub>은 0.1 wt%에서 최대값을 보이고 있으며, 0.05 wt% ~ 0.2 wt% 까지 그 값이 큰 차이를 보이지 않았다.

1350 °C로 소결한 시편의 10 kHz와 100 kHz에서의 초투자율의 변화를 그림 7에 나타내었다.

그림 7의 (a)에서 보면 Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>을 첨가했을 경우는 0.05 wt%를 첨가했을 때 초투자율 값이 최고점을 보이다가 점차 감소하였다. Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Ho<sub>2</sub>O<sub>3</sub>은 0.10 wt%까지 증가 하다가 이후 첨가량의 증가에 따라 점차 감소하였다. 그림 7의 (b)을 보면 첨가제에 따른 초투자율의 변화는 10 kHz 경우와 동일한 경향성을 보이고 있으며, 0.05 wt%나 0.1 wt%에서 높은 값을 보였다. Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>는 0.10 wt% 까지 증가하다가 이후 감소하였으며, Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>는 0.05 wt%에서 0.20 wt%까지 급격한 감소의 경향을 볼 수 있었다. Ho<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 경우는 기본조성보다 오히려 초투자율이 감소하는 것을 알 수 있었다.



(a) at 10 kHz



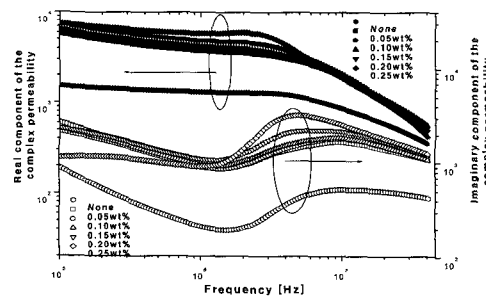
(b) at 100 kHz

그림 7. 1350°C에서 소결한 초투자율의 변화.  
Fig. 7. Variation of the initial permeability sintered at 1350°C.

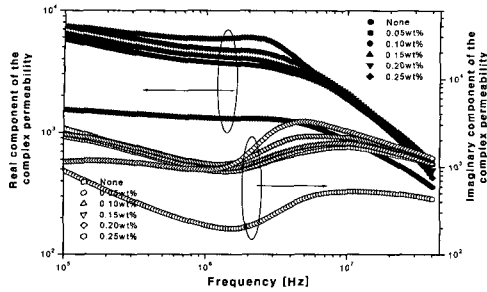
### 3.2.4 복소투자율

그림 8~10은 1300 °C와 1350 °C에서 소결한 시편의 첨가제에 따른 복소 투자율 중 실수와 허수 성분 투자율을 나타낸 것이다.

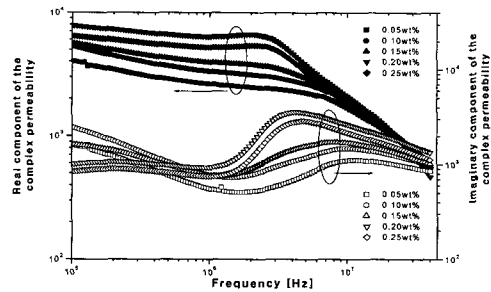
그림 8은 기본조성과 Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 첨가하여 1300 °C와 1350 °C로 소결한 시편에 대한 투자율의 변화이다. 기본조성의 경우 1350 °C에서 소결했을 때 1300°C에서 소결한 결과와 비교하면 실수투자율은 급격히 감소하기 시작하는 주파수까지 4배 이상



(a) sintered at 1300°C,



(b) sintered at 1350 °C.



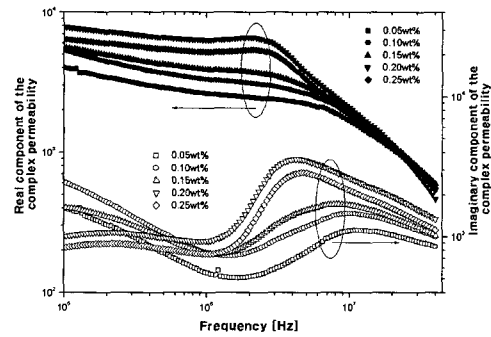
(a) sintered at 1300 °C,

그림 8. Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가에 따른 투자율의 변화.

Fig. 8. Variation of the permeability with a quantities of Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

증가하였으나, 그 주파수가 4 MHz에서 2 MHz로 감소하였다. Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 첨가하고 1300 °C 소결 시 첨가량의 증가에 따라 실수 투자율이 증가하였으며, 4 MHz 이후에 급격한 감소를 보였다. 1350 °C에서 소결한 경우는 실수 투자율이 1300 °C와 비교하여 큰 변화를 보이지는 않았다. 다만, 0.15 wt%까지는 동일한 경향을 보이고, 이를 정점으로 첨가량이 증가함에 따라 투자율이 감소하는 것을 알 수 있었다.

기본 Mn-Zn ferrite의 허수 투자율은 1 MHz 까지 감소하다가 다시 증가하며 8 MHz를 기준으로 약 500 정도까지 증가하여 40 MHz까지 유지하였다. 1350 °C에서 소결한 첨가제를 가하지 않은 Mn-Zn ferrite의 경우 1 MHz 이하에서는 일정한 값을 유지하다가 1 MHz에서부터 증가하여 약 2 MHz에서 정점값 2800을 가지며 주파수가 증가함에 따라 감소하는 경향을 보였다. Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 첨가하고 1300 °C에서 소결한 경우 기본 조성과 비교하였을 때 허수 투자율은 증가하였다. 허수 투자율이 정점을 보이는 주파수가 0.15 wt%까지 10 MHz, 0.2 wt%와 0.25 wt%는 4 MHz로 첨가제 양이 증가할수록 저주파 대역으로 이동하였다. 100 kHz에서 1 MHz까지는 0.2 wt%까지 첨가제 양이 증가할수록 허수 투자율이 점차 증가하였으며, 0.25 wt%에서 감소하는 경향을 보였다. 1350 °C에서 소결한 경우는 1 MHz 이하에서 첨가제 양이 증가함에 따라 0.05 wt%에서 최대값을 보이며 점차 감소하는 경향을 보였고, 1 MHz 이상에서는 허수 투자율이 정점의 주파수가 9~10 MHz 부근에서 나타났으며, 0.25 wt%는 기본조성과 같은 2 MHz 대역에서 정점을 보였다.



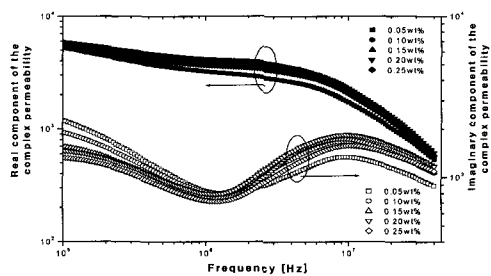
(b) sintered at 1350 °C.

그림 9. Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가에 따른 투자율의 변화.

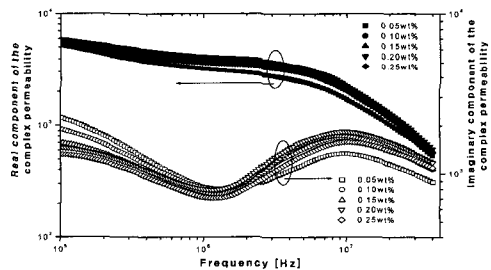
Fig. 9. Variation of the permeability with a quantities of Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

그림 9는 Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 첨가하여 1300 °C와 1350 °C에서 소결했을 때의 투자율 변화를 보여주는 것이다. Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 첨가한 경우와 마찬가지로 1300 °C에서 소결한 경우 기본조성에 비하여 실수 투자율은 증가한 것을 알 수 있다. 이때 0.2 wt% 첨가까지는 첨가제량의 증가에 따라 실수 투자율이 상승하였으며 0.2 wt% 첨가시 가장 높은 투자율값을 보였고 이후 투자율값이 감소하였다, 실수 투자율이 급격히 떨어지는 주파수는 0.15 wt% 첨가까지는 약 4 MHz 정도였으나, 0.2 wt%에서는 2 MHz 대역으로 이동하였다. 1350 °C로 소결한 경우는 1300 °C와는 반대로 첨가제량이 증가함에 따라 0.2 wt%까지는 감소하였으며, 0.25 wt% 첨가시 다시 증가하였다. 또한, 0.2 wt%와 0.25 wt% 첨가시 실수 투자율값은 기본조성에 비해 오히려 낮은 값을 보이고 있음을 알 수 있었다. 허수 투자율은 1300 °C에서 소결했을 때 1 MHz 대역 이상에서 정점을 보이는 주파수 대역까지 첨가제가 0.2 wt%까지 증가할수록 허수 투자율은 증가하였으며, 0.25

wt%에서는 감소하는 경향을 보였다. 또한 허수 투자율의 정점을 보이는 주파수 대역은 0.05 wt%에서는 10 MHz, 0.1 wt%에서는 8 MHz, 0.15 wt%에서는 6 MHz, 0.2 wt%와 0.25 wt%에서는 4 MHz 대역으로 점차 감소하는 경향을 보였다. 1350 °C에서 소결한 경우는 1300 °C로 소결한 것과 동일한 결과를 보였다.



(a) sintered at 1300 °C



(b) sintered at 1350 °C.

그림 10. Ho<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가에 따른 투자율의 변화.

Fig. 10. Variation of the permeability with a quantities of Ho<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

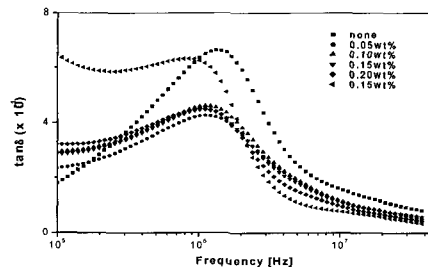
그림 10.은 Ho<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 첨가하여 1300 °C와 1350 °C에서 소결했을 때의 실수 투자율 변화를 보여주는 것이다. 1300 °C에서 소결했을 때 0.2 wt%까지는 실수투자율이 증가하였고, 이후에서 실수투자율의 감소를 보였으며, 실수 투자율값이 급격히 변화를 일으키는 주파수는 4 MHz 대역이었다. 1350 °C로 소결한 경우는 첨가량이 증가함에 따라 0.1 wt%까지 증가하다 다시 감소하는 경향을 보이고 있으며, 0.15 wt% 첨가량 이후부터는 첨가제를 넣지 않은 기본 조성보다도 실수 투자율이 오히려 감소하였다. Ho<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 첨가는 다른 첨가제와는 달리 첨가량에 따른 변화의 정도가 적음을 알 수 있었고, 1300 °C와 1350 °C로 소결했을 때 실수 투자율 값의 차이가 거의 없음이 관찰되었다. 허수 투

자율 변화를 보면 1300 °C 소결한 조성은 1 MHz에서 허수투자율이 정점을 보이는 주파수 대역까지 0.2 wt%까지는 첨가제가 증가할수록 허수 투자율이 증가하였으며, 0.25 wt%에서는 감소함을 알 수 있다. 또한, 허수투자율이 정점을 보이는 주파수는 약 9 MHz 대역이고, 첨가량에 따라 변화가 거의 없음을 보였다. 1350 °C로 소결한 경우는 1300 °C로 소결한 경우와 달리 0.1 wt%까지는 허수투자율이 증가하다가 이후 점차적으로 감소하는 경향을 보였다.

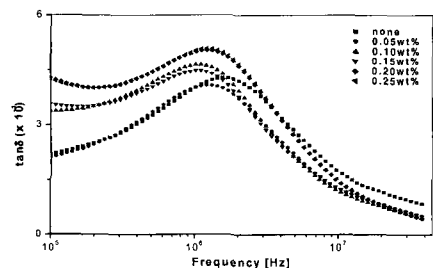
이상과 같이 실수 투자율과 허수투자율의 변화를 살펴본 결과, 첨가량에 따라 일정한 첨가는 투자율의 증가를 보이며 공진주파수도 하락하는 Sneek 한계와 동일한 결과를 보이나, 과다 첨가하는 경우에는 오히려 투자율의 하락과 공진주파수의 하락을 동시에 가져옴을 알 수 있었다.

### 3.2.5. 자기 손실

준비된 각 조성에 대하여 100 kHz ~ 40 MHz 대역에서 자기손실(tanδ) 값을 조사하였으며, 그 결과를 그림 11.~13.에 나타내었다. 자기손실 값은 1~10 MHz 근처에서 정점을 이루고 있다. 대체적으로 첨가제를 가한 경우가 첨가제를 가하지 않은



(a) sintered at 1300 °C



(b) sintered at 1350 °C,

그림 11. Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가에 따른 손실의 변화.

Fig. 11. Variation of the loss with a quantities of Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.



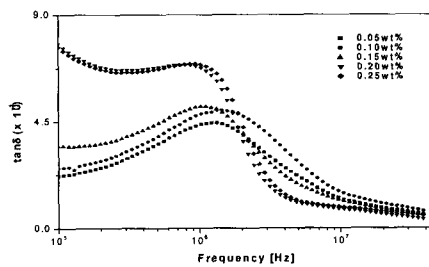
경우보다 자기 손실은 낮았으나 첨가제가 증가함에 따라 손실이 증가하는 경향을 보였다.

그림 11.은 기본조성과 Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 첨가하여 1300 °C와 1350 °C에서 소결했을 때 자기손실의 변화를 보여주는 것이다. 1300 °C에서 소결을 한 Mn-Zn ferrite 기본 조성에서의 자기손실은 1 MHz 주파수 영역에서 보였으며, 100 kHz에서 1 MHz까지의 손실은 증가하다가 이를 정점으로 감소하였다. 1350 °C에서 소결한 경우는 1300 °C로 소결했을 때와 동일하게 1 MHz 부근에서 정점을 보이고 있으며, 손실값은 다소 낮게 나타났다.

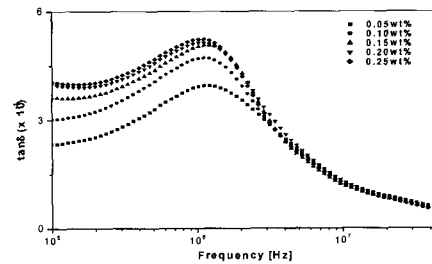
Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 첨가하고 1300°C에서 소결한 조성은 100 kHz부터는 손실이 증가하여 약 1.2 MHz에서 정점을 보이고 이후 감소하는 것을 볼 수 있으며, 첨가제 양의 증가에 따라 손실이 대체적으로 증가하였다. 첨가제를 가하지 않은 Mn-Zn ferrite 기본 조성의 손실보다는 낮게 측정되었다. 0.25 wt%를 첨가하였을 때는 다른 조성과는 달리 1 MHz 이하에서도 높은 손실을 보이고 있다. 1350 °C에서 소결했을 때는 첨가제양이 증가함에 따라 손실이 증가하였으며 0.05 wt%를 첨가한 경우를 제외하고 그 이상 첨가했을 때는 기본조성보다 손실이 커짐을 알 수 있으며, 손실정점의 값이 1300 °C로 소결했을 때보다 증가된 형태의 특성을 보였다.

그림 12.는 Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 첨가하여 1300 °C와 1350 °C에서 소결했을 때 자기손실의 변화를 보여주는 것이다. 1300 °C에서 소결하여 측정된 결과 0.15 wt%까지는 첨가제를 가하지 않은 경우 보다 낮은 손실 특성을 보였으나, 그 이상의 첨가에 대해서는 기본 조성보다 높은 손실값을 보였다. Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>는 첨가량이 증가함에 따라 손실이 증가하였고 0.2 wt% 이상의 첨가시 높은 손실값을 보였다. 1350 °C에서 소결한 경우는 1300 °C로 소결한 것과 비교 하였을 때 0.1 wt% 까지는 손실이 다소 증가하였으나, 그 이상의 첨가에 대해서는 감소하였다. 특히 0.2 wt% 이상의 첨가시 급격한 손실의 증가를 보이지 않았다. 첨가량이 증가함에 따라 손실은 점차로 증가하는 경향을 보였다.

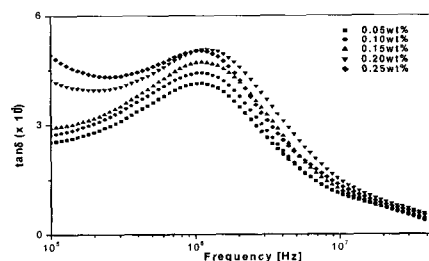
그림 13.은 Ho<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 첨가하여 1300 °C와 1350 °C에서 소결했을 때 자기손실의 변화를 보여주는 것이다. 그림에서 보면 손실 정점은 모두 약 1.3 MHz 정도에서 나타났다. Ho를 첨가하였을 때는 다른 첨가제와 같이 첨가량이 증가할수록 손실이 증가하는 경향을 보였으나, Dy나 Gd가 각 소결온도에서 변화값이 큰 값을 보인 반면 Ho는 1300 °C와 1350 °C 모두 유사한 특성과 값을 보여 주고 있다.



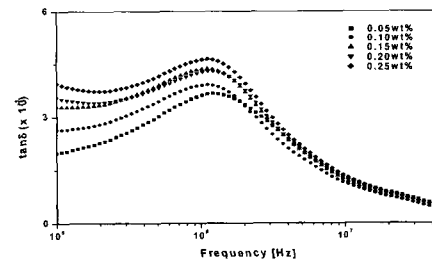
(a) sintered at 1300 °C



(a) sintered at 1300 °C



(b) sintered at 1350 °C,



(b) sintered at 1350 °C,

그림 12. Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가에 따른 손실의 변화.

Fig. 12. Variation of the loss with a quantities of Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

그림 13. Ho<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 첨가에 따른 손실의 변화.

Fig. 13. Variation of the loss with a quantities of Ho<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

첨가제가 0.2 wt%까지 증가함에 따라 손실은 증가하였다. 1350 °C에서 소결한 경우도 마찬가지로 첨가제 양의 증가에 따라 손실이 증가하였다.

저항률과 자기 손실과의 관계를 살펴보면 1300 °C와 1350 °C에서 소결한 경우 대체적으로 저항률은 자기 손실과 반비례 관계를 가져 저항률이 높게 되면 자기손실이 감소하는 것을 볼 수 있었으나, 첨가제가 일정량 이상 첨가되었을 때 저항률이 높으면서도 자기손실 역시 높은 것은 불순물의 과다 첨가에 의한 히스테리 손실의 증가가 그 원인으로 사료된다.

#### 4. 결론

스피넬 페라이트중에서 Mn-Zn 페라이트의 기본 조성계를 얻어 Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Ho<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 산화물을 첨가하여 다음과 같은 연구결과를 얻었다.

1. 희토류 산화물을 첨가한 경우 첨가전 보다 초투자율이 상승하는 결과를 나타냈다. 이는 다른 이온들에 영향을 받지 않으면서 높은 보어 자기모멘트를 갖는 3가 전이 금속(희토류 금속)에 기인하는 것으로 생각되며, 희토류의 자기 모멘트가 외부 철 이온(Fe<sup>3+</sup>)에 영향을 받지 않았기 때문으로 사료된다. 초투자율은 Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>를 0.05 wt% 첨가한 조성에서 가장 높은 값을 보였다.

2. 희토류 산화물에 의한 자기 손실특성은 첨가제를 가하지 않은 조성에서 대체적으로 낮은 결과를 얻었는데, 이는 첨가제로 작용한 희토류 산화물이 입계 혹은 입계 내부의 저항성을 높임으로써 손실특성의 하락을 가져 온 것으로 사료된다. 또한, 희토류 산화물의 첨가량을 일정 수준 초과하게 되면 사용 주파수보다 낮은 주파수에서도 손실이 발생되며 첨가량의 증가에 따라 손실은 대부분 증가하였다. 첨가제중 Gadolinium oxide를 0.05 wt% 첨가하고 1300°C에서 소결한 경우 가장 우수한 손실 특성을 보였다.

3. 저항률과 자기 손실의 관계에서 대체적으로 저항률은 자기 손실과 반비례 관계로서 저항률이 높게 되면 자기손실이 감소하는 것을 볼 수 있으나, 저항률이 다소 높으면서도 자기손실 역시 높은 것은 과대 입성장에 의한 입자내 demagnetization area의 생성으로 사료된다. 또한 지나친 과다 첨가물 첨가는 저항을 높여 와전류 손실을 낮추지만 오히려 불순물과 자기 모멘트를 가지는 불순물에 의한 자기응력의 변화과 포화자화 변화에 의한 히

스테리 손실이 증가하기 때문인 것으로 판단된다.

4. Mn-Zn ferrite의 XRD 상의 관찰에서 ferrite 자체는 spinel 결정 구조를 보이고 희토류 첨가제를 첨가한 경우 측정 강도에 있어 약하지만 새로운 2차상들이 생기는 것을 볼 수 있었다. 임피던스 분광 특성을 적용하면 새로운 작은 저항 성분이 입경과 입내의 공진주파수와 비슷하게 되면 2개의 반원이 생기게 된다는 이론으로부터 희토류 첨가제가 새로운 저항성분으로 작용한다는 것을 알 수 있다.

#### 감사의 글

“이 논문은 2002년도 원광대학교의 교비 지원에 의해서 수행됨”

#### 참고 문헌

- [1] M. A. Amer, "Mossbauer, infrared, and x-ray studies of the Mn-Zn ferrites", Phys. Stat. Sol., Vol. 151, No. 205, p. 205, 1995.
- [2] 김정식, "열처리 조건에 따른 (Mn,Zn)-ferrite의 전자기적 특성에 관한 연구", 한국요업학회, 36권, 3호, p. 255, 1999.
- [3] N. Hiratsuka, K. Kakizaki, and H. Kobayashi, "High frequency characteristics of crystal oriented Mn-Zn ferrite", J.J.S of Powder and Powder Metallurgy, Vol. 45, No. 1, p. 86, 1998.
- [4] E. C. Snelling, "Soft Ferrites Properties and Application", Butterworth & Co. Ltd, p. 4, 1988.
- [5] D. Arcos, M. Vázquez, R. Valenzuela, and M. Vallet-Regí, "Grain boundary impedance of doped Mn-Zn ferrites", J. mater. Res., Vol. 14, No. 3, p. 861, 1999.
- [6] 문현욱, 서강수, 최희태, 신용진, "저손실 Mn-Zn-Fe 페라이트의 제조에 관한 연구", 전기전자재료학회논문지, 3권, 3호, p. 205, 1990.
- [7] 서정주, 신명승, 한영호, "Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 첨가 Mn-Zn ferrite의 전자기적 특성에 미치는 효과", 한국재료학회, Vol. 5, No. 8, p. 1026, 1997.
- [8] K. Asai, K. Fujiyoshi, N. Nishimori, Y.

- Satoh, Y. Kobayashi, and M. Mizoguchi,  
"Magnetic properties of  $\text{ReMe}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{O}_3$   
(Re=rare earth element, Me=Ni,Cu)", Jpn. J.  
Phy. Soc., Vol. 67, No. 12, p. 4218, 1998.
- [9] E. Rezlescu, N. Rezlescu, P. D. Popa, L.  
Rezlescu, and C. Pasnicu, " The influence  
of  $\text{R}_2\text{O}_3$  (R=Yb, Er, Dy, Tb, Gd, Sm and  
Ce) on the electric and mechanical  
properties of a nickel zinc ferrite", Phys.  
Stat. Sol., Vol. 162, No. 673, p. 673, 1997.
- [10] 정승우, 김태원, 최우성, "희토류(Gd,Er)첨가가  
Ba 페라이트의 투자율에 미치는 영향", 전기  
전자재료학회논문지, 13권, 10호, p. 887, 2000.
- [11] 정승우, 김태원, 전석택, 김성수, 최우성,  
"NCZF의 특성에 미치는 B-Bi-Zn의 영향",  
전기전자재료학회논문지, 13권, 4호, p. 343,  
2000.
- [12] 백승철, 최우성, " $\text{Re}_2\text{O}_3$ (R=Dy, Er)가 Mn-Zn  
ferrite의 전자기적 특성에 미치는 영향", 전기  
전자재료학회논문지, 15권, 2호, p. 178, 2002.
- [13] 김경용, 김황섭, 강선모, 정형진, "페라이트 복  
합형 전파흡수체의 거동", 한국요업학회, Vol.  
28, No. 7, p. 556, 1991.