

燒成條件에 따른 MHz 대역의 Mn-Zn ferrite 電力損失 特性

[†]徐政柱 · 宋炳武

이수세라비(주) 연구소

The Power Loss Characteristics of Mn-Zn Ferrites at MHz Region with Sintering Condition

J.J. Suh*, B.M Song

ISU Ceramics Co. R&D Center 5-2 Bangye-Ri Munmark-Eup Wonju-Si KangWon-Do Korea

요 약

소성온도를 1150~1320°C 영역에서 변화시킨 결과 1MHz-25mT 조건에서 전력손실의 절대값이 감소하였으며, 전력손실의 온도의 죄성이 소성온도에 따라 다르게 관찰되었다. 1150°C에서 소성한 경우 전력손실의 최소가 나타나는 온도가 자기이방성 상수가 “0”이 되는 특정 온도에서 나타나지 않고 측정 온도가 증가함에 따라 증가되는 경향을 보였다. 이러한 원인은 1 MHz 대역에서는 grain size에 따라 residual loss의 발생기구가 상이하기 때문으로 판단된다. 1150°C 소성시 서로다른 평형산소분압을 이용하여 분위기를 조정한 결과 산소분압이 증가됨에 따라 grain size 와 밀도가 미소하게 증가되는 경향을 보였다. 비저항과 투자율은 1150°C 소성시 평형산소분압에 따라 특정한 경향성을 나타내지 않았는데 이는 Fe^{2+} 농도 변화이외에 미세구조의 변화를 동반하였기 때문으로 판단된다. 평형산소분압이 상대적으로 높게 유지된 시편의 경우 100°C에서 상대적으로 낮은 전력손실값을 나타내었다.

주제어 : 망간-아연 페라이트, 전력손실, 소결, 미세구조, 분위기

Abstract

The power loss characteristics of Mn-Zn ferrite were observed with the sintering temperature. In case of 1150°C sintering, the core loss increased with measuring temperature, and does not have minimum value at the point where the magnetocrystalline anisotropy be “zero”. This reason mainly due to the change of core loss mechanism with grain size which affects residual loss. The grain size and sintered density slightly increased with equilibrium oxygen partial pressure at 1150°C sintering. The resistivity and initial permeability showed no significance with atmosphere, these results due to complex effect of Fe^{2+} concentration and microstructure change. The core loss at 100°C decreased as the equilibrium oxygen partial pressure increased.

Key words : Mn-Zn Ferrites, Power Loss, Sintering, Microstructure, Atmosphere

1. 서 론

각종 정보통신 기기에 사용되는 전원공급기의 경우 일반적으로 Power MOSFET, 다수의 capacitor, inductor, resister 그리고 magnetic core 등으로 구성되어 있다. capacitor, inductor 및 resister의 경우는 multi-layer 기술을 적용한 칩화가 상당부분 진행되어 있다. 그러나 권

선을 포함한 soft magnetic core의 경우 상대적으로 다른 부품에 비하여 소형화가 뒤쳐져 있어 전원장치의 소형화와 경량화를 저해하는 가장 큰 걸림돌로 작용하고 있다. Soft magnetic core에 있어서 소형화를 저해하는 가장 큰 이유는 패러데이 법칙에서와 같이 시간에 따른 자속의 변화에 의하여 유도되는 기전력이 magnetic core 크기에 결정되는 자속의 단면적에 비례하기 때문이다. 따라서 동일한 크기의 magnetic core에서 유도기전력을 높이기 위해서는 자속이 변화되는 속도인 스위칭 주파수를 증가시켜야 한다. 즉 스위칭 주파수를 60 Hz에서 100 kHz로

* 2003년 10월 1일 접수, 2003년 11월 24일 수리

† E-mail: jjuh@isu.co.kr

증가시킬 경우 증가되는 shape factor는 대략 1666배이므로 이에 비례하는 크기 감소를 이를 수 있다. 따라서 magnetic transformer의 소형 경량화는 스위칭 주파수를 어느 정도까지 증가시킬 수 있는가가 가장 핵심적인 관건이다. 그러나 일반적인 트랜스포머에 사용되는 자성재료는 스위칭 주파수가 증가됨에 따라 손실이 커지는 문제를 가지고 있다. 상용 페라이트 코아에 있어서 1 MHz 대역의 고주파 스위칭시 발생하는 전력손실(Power loss)은 100 kHz에 비하여 10^3 배정도 증가하여 나타나게 된다. 이러한 전력손실은 주울열 형태로 나타나며 트랜스포머 자체 와 주위 소자의 온도를 증가시켜 전원 성능을 급격히 열화(degradation) 시키게 된다.

Mn-Zn ferrites는 적절한 미세구조와 조성 설계를 통하여 1 MHz 대역에서도 낮은 전력손실을 갖는 특성구현이 가능하며 이러한 특성을 개선시키기 위한 연구가 다양하게 진행되고 있다. 이러한 전력손실 개선은 우선 전력손실 현상에 대한 명확한 이해를 바탕으로 진행되어야 하며, 성공적인 양산화를 위해서는 조성 및 첨가제의 거동에 대한 정확한 이해와 고도의 공정제어기술이 필요하다. 특히 소성공정은 Mn-Zn ferrite 의 최종 물성을 결정 짓는 단계로 이 과정에서의 공정조건에 따라 상이한 특성을 나타내게 된다.¹⁾ 일반적으로 상용화되고 있는 저손실재질(Low Loss Material)과 고투자율재질(High Permeability Material)이 전혀 다른 소성조건을 갖는 것과 같이 고주파용 저손실 페라이트 역시 이에 적합한 소성 schedule을 이용하여 제작 되어야 한다. 본 논문에서는 소성조건에 따라 MHz 대역에서의 발생하는 전력손실 특성 변화를 관찰하여 최적의 소성 공정을 찾기 위한 방법을 제시하였다.

2. 실험방법

$Mn_{0.72}Zn_{0.22}Fe_{2.06}O_4$ 조성의 Mn-Zn ferrite를 일반적인 세라믹 공정을 통하여 합성하였다. 외경 20 mm, 내경 10 mm, 높이 5 mm의 토로이드 형태로 성형된 시편은 1150~1320°C 온도 영역에서 3시간동안 관상형 투브로를 이용하여 소성하였다. 냉각과정에서는 프로우메터를 이용하여 평형산소분압에 일치하도록 연속적으로 제어하였다. 시편의 전력손실은 Iwatsu SY8232 B-H analyzer를 이용하여 25~120°C 구간에서 측정하였다. 시편의 투자율은 HP 4194A LCR meter를 이용하여 측정하였으며, 비저항은 시편을 디스크 형태로 가공 후 In-Ga 전극을 도포하여 2단자 법으로 측정하였다.

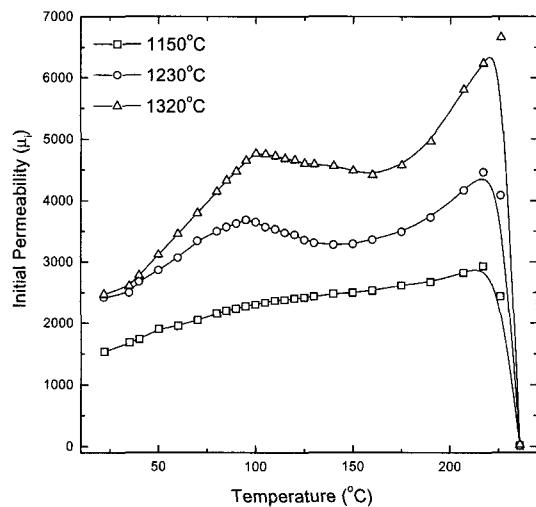


Fig. 1. Change of temperature dependence of initial permeability with sintering temperature.

3. 결과 및 고찰

3.1. 미세구조에 따른 영향성 고찰

기존 문헌에서 고찰한 바와 같이 Mn-Zn ferrites의 미세구조는 고주파 대역에서의 전력손실을 감소시키는 key factor이다.²⁻⁴⁾ 이러한 미세구조가 전력손실에 미치는 효과를 고찰하기 위하여 소결온도에 따라 서로다른 grain size를 갖는 시편을 제작하고 자기적 특성변화를 고찰하였다. 미세조직 사진과 Image Analyzer (Image Pro-Plus, Media Cybernetics, MD, USA)를 이용하여 정량적으로 grain size를 측정한 결과 1150°C 소결한 경우 grain size가 3.5 μm 값을 나타냈으며, 1320°C로 소결한 경우 9.5 μm 로 증가하였다. Fig. 1은 소결 온도 변화에 따른 초기투자율의 온도의존성을 나타낸 data이다. 소결 온도가 증가함에 따라 전 온도 구간에서 초기투자율은 증가하였고, 뚜렷 한 T_{spm}(secondary peak maximum temperature)과 T_c(Curie Temperature)가 관찰되었다. 초기투자율의 제 2차 최대 값을 나타내는 온도인 T_{spm}은 모든 시편에서 100°C 부근으로 나타났지만, 1150°C에서 소결한 시편의 경우에는 100°C 부근에서도 뚜렷한 투자율의 변화 없이 측정 온도가 증가함에 따라 계속 증가하였다. Fig. 2는 소결 온도에 따른 상온에서 측정한 전기비저항을 나타내었다. 모든 주파수 대역에서 소결온도를 감소시킴에 따라 전기비저항이 증가하는 것을 알 수 있다. 소결 온도를 1320°C에서 1150°C로 감소시킬 경우 전기비저항이 2배 이상이나 증가하였다. 이는 소결

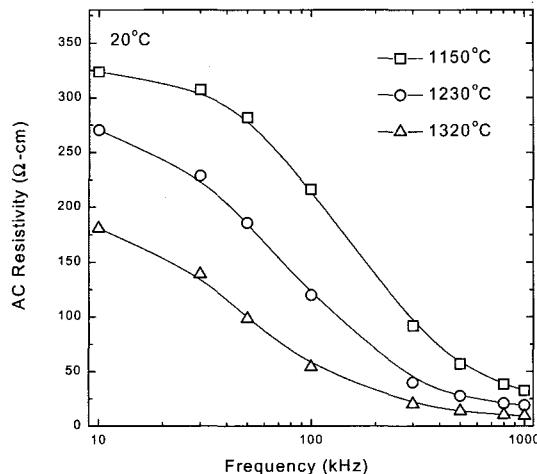


Fig. 2. Change of frequency dependence of resistivity with sintering temperature.

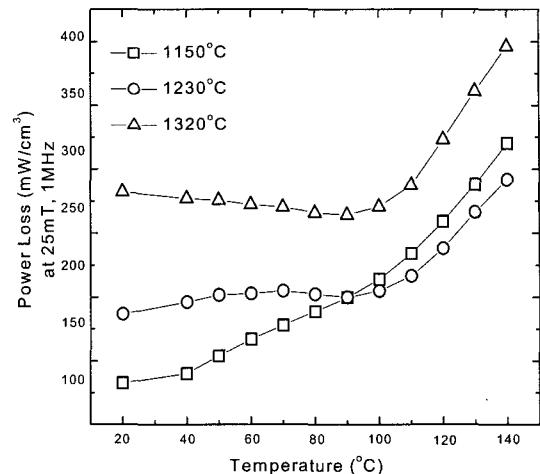


Fig. 3(b). The temperature dependence of power loss with the sintering temperature at 1 MHz-25 mT.

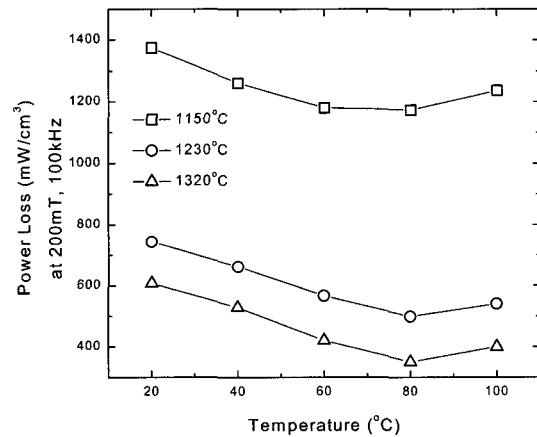


Fig. 3(a). The temperature dependence of power loss with the sintering temperature at 100 kHz-200 mT.

온도가 감소함에 따라 grain size의 감소에 의한 고저항 층인 grain boundary 면적이 증가하는 것과 소결 온도가 낮을 경우 많은 pore가 존재하게 되어 전체 bulk의 절연저항이 증가하는 것 등에 기인한 것으로 보인다.

Fig. 3은 소결온도를 달리한 시편들을 100 kHz-200 mT 와 1 MHz-25 mT 조건에서 측정한 온도에 따른 전력손실 결과이다. 200 mT, 100 kHz에서 측정한 손실의 경우 소결 온도가 증가함에 따라 감소하였으며, 모두 80°C에서 최저 값을 나타내었다. 100 kHz 영역의 경우에는 앞에서 고찰한 것과 같이 hysteresis loss가 주도적인 손실 기구로 작용한다. 따라서 소결온도가 증가함에 따라 전력손실이 감소하는 것은, grain size와 밀도

의 증가로 인해 포화자화 값이 증가하여 hysteresis loss를 감소시켰기 때문으로 사료된다. 또한 80°C에서 전력손실의 최저값이 나타나는 것은 실험조성이 이 온도대역에서 K_1 값이 0을 가지기 때문이다. 그러나 25 mT, 1 MHz에서 측정한 경우에는 소결 온도가 감소함에 따라 전력손실이 감소하였고, 각각 서로 다른 온도의존 특성을 나타내었다. 이러한 이유는 1 MHz 대역에서 전력손실중 가장 큰 부분을 차지하는 residual loss의 차이에 기인한 것으로 판단된다. 앞에서 고찰한 바와 같이 평균 grain size가 9.54 μm인 시편의 경우 grain이 적어도 하나 이상의 domain wall을 가지고 있을 확률이 높다. 반면에 3.45 μm인 시편의 경우는 기준 문헌에 보고된 바와같이 상당부분의 grain 들이 mono domain 상태로 존재할 것으로 예측된다.⁵⁾ 따라서 grain size가 큰 시편에서의 residual loss가 domain wall movement에 의해 주도적으로 발생하게 된다.⁶⁾ 이 경우 K_1 이 작을수록 residual loss가 감소하며 80°C 부근에서 가장 작은 값을 갖는 것으로 보인다. 그러나 4 μm를 기준으로 그보다 작은 영역에서는 대부분의 grain들은 single domain으로 존재하게 되고, 자화는 rotation에 의해 발생하게 된다. 이 경우 residual loss는 K_1 에 반비례하게 되므로 온도가 증가함에 따라(resonance frequency 가 감소함에 따라) 손실이 증가된다.^{7~8)}

3.2. 소성분위기에 따른 영향성 고찰

Mn-Zn ferrites는 잘 알려진 바와 같이 대표적인 비화학양문 산화물로서 oxygen activity에 따라 다양한 원

자가를 갖는다. 앞에서 고찰한 것과 같이 코아에 내재하는 금속이온의 원자가는 Mn-Zn ferrite의 자기적 특성을 결정하는 인자로 작용하기 때문에 소성시 분위기의 제어가 필수적이다. 기존 문헌을 통하여 알려진 Mn-Zn ferrite의 상평형도에 따르면 온도와 산소분압의 조건에 따라 스피넬 안정영역, 스피넬과 hematite의 metastable 영역으로 구분되어 있다. 또한 스피넬 안정 영역내에서도 oxygen activity에 의하여 금속이온의 원자가가 변화된다. 금속이온의 transition은 spinel 조성에서 oxygen nonstoichiometry를 나타내는 원인이 되며, $(\text{Mn}, \text{Zn}, \text{Fe})_3\text{O}_{4+\delta}$ 에서 δ 값으로 표시된다. 이들의 결과에 따르면 페라이트 내에 동일한 Fe^{2+} 함량 혹은 동일한 δ 값을 유지시키기 위해서는 온도와 산소분압이 일정한 조건을 만족하여야 한다. Mn-Zn ferrites의 평형 산소분압을 연구한 Blank,⁹⁾ Slick,¹⁰⁾ Morineau¹¹⁾의 보고에서와 같이 시편의 평형산소분압이 감소될 경우 ferrous ion 증가가 나타난다. Ferrous ion의 변화는 Mn-Zn ferrites의 전기전도 기구가 전자 hopping을 통하여 이루어진다는 점을 고려할 때 비저항을 변화시키는 요인으로 된다. 또한 Ferrous ion은 자기이방성상수의 온도의존성을 변화시킨다. 이외에도 결합형태 및 농도에 따라 미세구조 변화를 동반하게 되므로 소결과정에서의 산소분압은 Mn-Zn ferrite의 특성에 큰 영향을 미친다.

본 실험조건에서 소결시 분위기 조정은 Fig. 4에 나타낸 바와 같이 Mn-Zn ferrites의 상평형 구간에서 상대적인 oxygen activity를 나타내는 상수A 값을 변화시

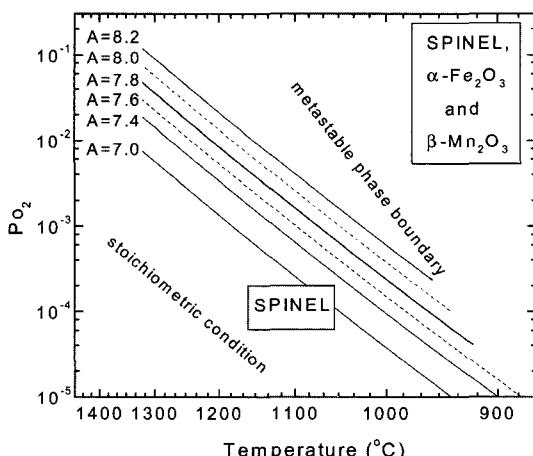
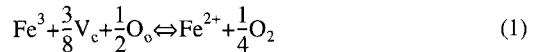
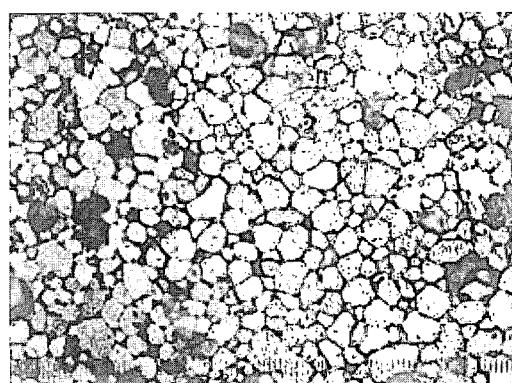


Fig. 4. The P_{O_2} range of our experiment with phase boundary and stoichiometric condition that was calculated from Morineaus.

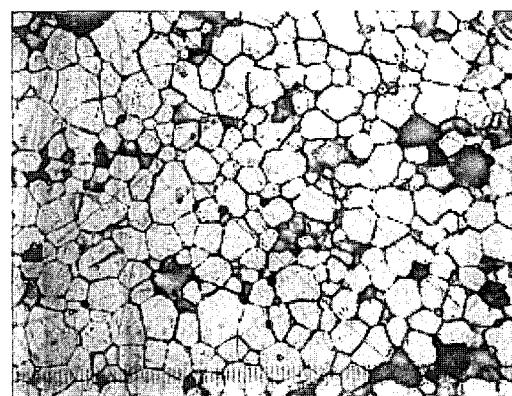
키며 소성하였다. Mn-Zn ferrites의 평형산소분압을 연구한 기존의 보고에서와 같이 소성분위기에 따라 아래와 같은 비화학양론적 변화가 시편내부에서 발생된다.



1150°C에서 atmosphere parameter (A)를 7.0에서 8.8로 변화시켜 소성한 시편의 경우 미세하나마 밀도와 grain size의 변화가 관찰되었다. Fig. 5는 1150°C에서 $A=7.0(\text{P}_{\text{O}_2}=0.06\%)$ 인 조건에서 소결한 시편과 $A=8.4(\text{P}_{\text{O}_2}=1.5\%)$ 의 조건에서 소결한 시편의 미세구조이다. 양 시편의 미세구조를 비교하면 $A=8.4$ 인 조건에서 소결한 시편의 grain size가 $A=7.0$ 의 조건으로 소결한 시편보다 큼을 알 수 있다. 밀도값 역시 4.60 g/cm^3 에서 4.69 g/cm^3 로 증가되었다. 이러한 현상은 산소분압이 증가할 경우 아래 식에서와 같이 cation vacancy의 농도가 증가되며, 각이온의 불질확산계수가 증가된



1150°C 3 hr, $A=7.0$ ($\text{P}_{\text{O}_2}=0.06\%$)



1150°C 3 hr, $A=8.4$ ($\text{P}_{\text{O}_2}=1.5\%$)

Fig. 5. Microstructure change with sintering atmosphere (1150°C sintering).

것이 주된 이유로 판단된다.

$$[V_c]^{3/8} = K \frac{P_{O_2}^{1/4} F^{2/3}}{[O^{2-}]^{1/2}}, F = \frac{[Fe^{2+}]}{[Fe^{3+}]} \quad (2)$$

1150°C 소결시 A 값 변화에 따른 시편의 비저항 값은 A=7.0, 7.8, 8.4, 8.8의 조건에서 각각 483, 452, 458, 520Ω·cm로 A값에 따른 특징적인 경향이 나타나지 않았다. 이러한 원인은 ferrous ion 농도변화 이외에 grain의 크기에 따른 size factor 변화가 복합적으로 나타난 것으로 사료된다. 산소분압에 따른 비저항의 증가에 대해서는 대부분의 연구결과에서 일관된 경향을 보이고 있으나 변화량에 대해서는 상당한 차이를 보이고 있다. 이러한 원인으로는 각 실험조건에 있어서 oxygen activity의 차이, grain boundary의 선택적 산화에 의한 고저항층 형성 그리고 미세구조 변화 등이 주요 원인으로 예상된다.

Fig. 6에 도시한 투자율 결과는 상온과 100°C 부근에서의 절대값이 산소분압에 따라 차이를 나타냈는데 이는 산소분압에 따라 자기이방성상수 증가와 밀도 및 grain size의 변화가 상반된 역할을 하기 때문으로 보인다.

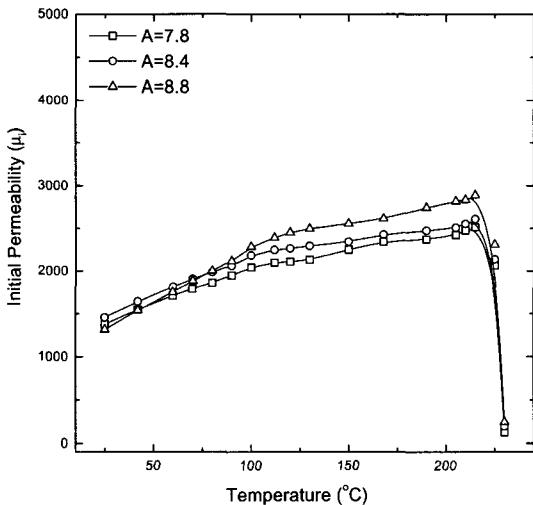


Fig. 6. The temperature dependence of permeability with oxygen parameter(1150°C).

Fig. 7은 1150°C의 온도에서 서로다른 산소분압으로 소결한 후 1 MHz 25 mT의 조건에서 측정한 전력손실 결과이다. 앞의 결과와 유사하게 1 MHz에서 전력손실의 온도의존성은 Tspm에서 최소값을 갖지 못하고 온도에 따라 증가되는 현상을 보이고 있다. 이러한 원인은 1 MHz 대역에서 손실의 상당부분을 차지하는 residual

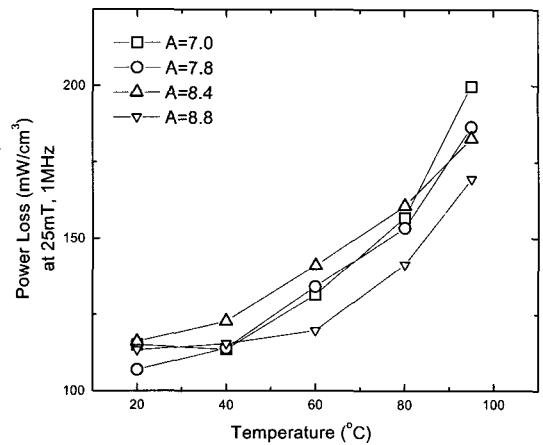


Fig. 7. The temperature dependence of power loss with the sintering temperature at 1 MHz-25 mT. Controlled at soaking & cooling region(1150°C).

loss 때문이다. 즉 측정온도가 증가함에 따라 나타나는 투자율의 증가는 resonance frequency를 낮은 주파수 대역으로 이동시키게 되므로, domain의 rotation에 의하여 발생하는 residual loss를 증가시키게 된다. Fig. 7에 따르면 작동온도인 100°C를 기준으로 볼 때 산소분압이 증가됨에 따라 전력손실이 감소되는 경향을 보이고 있다. 또한 측정된 data 상에서는 명확하지는 않으나 전력손실의 최소가 나타나는 온도역시 높은 쪽으로 이동되는 듯한 형태를 보이고 있다.

4. 결 론

저손실 조성의 Mn-Zn ferrite를 서로다른 조건에서 소성한 결과 다음과 같은 결과를 얻었다.

1) 소성온도를 1150~1320°C 영역에서 변화시킨 결과 1 MHz-25 mT 조건에서 전력손실의 절대값과 온도의존성이 다르게 관찰되었다. 1150°C에서 소성한 경우 전력손실의 최소가 나타나는 온도가 자기이방성 상수가 “0”이 되는 특정 온도에서 나타나지 않고 측정 온도가 증가함에 따라 증가되는 경향을 보였다. 이러한 원인은 1 MHz 대역에서는 hysteresis loss가 아닌 residual loss가 전체 전력손실을 주도하기 때문이다. 소성코아의 grain size를 고려할 때 1150°C 소성의 경우 mono domain 상태로 자구들이 존재한다. 이 경우 측정온도가 증가함에 따라 resonance frequency가 낮아지고 전체 손실은 증가하는 것으로 판단된다.

2) 1150°C에서 서로 다른 평형산소분압으로 소성한

결과 산소분압이 증가됨에 따라 grain size 와 밀도가 미소하게 증가되는 경향을 보였다. 이러한 원인은 소성시 시편내에 존재하는 cation vacancy 농도가 증가하였기 때문이다. 비저항과 투자율은 소성시 평형산소분압에 따라 특정한 경향성을 나타내지 않았는데 이는 Fe^{2+} 농도 변화이외에 미세구조의 변화를 동반하였기 때문으로 판단된다. 평형산소분압이 상대적으로 높게 유지된 시편의 경우 100°C에서 상대적으로 낮은 전력손실값을 나타내었다.

참고문헌

1. 윤상우 외 공역, 1996: 자성재료세라믹스, 반도출판사, pp. 89-135.
2. Goldman, A., 1992: *Modern Ferrite Technology*, Chapter 4., Van Norstrand Reinhold, N.Y.

3. Rikukawa, H., 1982: IEEE Trans. Magn., Mag-18(6), pp. 1535-1537.
4. Otsuki, E., and Yamada, S., 1997: International conference on ferrite ICF-7, pp. C1-113.
5. Van der Zaag, P. J., Johnson, M. T., Noordermeer, A., Por, P.T., and Rekeldt, M., 1991: J. Magn. Magn. Mater., **99**, pp. L1-L6.
6. Tsutaka, T., Kasagi, T., and Hatakeyama, K., 1999: J. European Ceramic Society, **19**, pp. 1531-1535.
7. Van der Zaag, P. J., et al, 1993: J. Appl. Phys., **74**(6), pp. 4085-4095.
8. Van der Zaag, P. J., 1999: J. Magn. Magn. Mater. **193**, 196-197, pp. 315-319
9. Blank, J. M., 1961: J. Appl. Phys., **32**(S3), pp. 378S.
10. Slick, P. I., 1970: Ferrites (ICF-1), pp. 81.
11. Morineau, R., 1976: Phys. Stat. Sol., **38**, pp. 559.



徐政柱

- 1993. 2 성균관대학교 재료공학 학사
- 1995. 3 성균관대학교 재료공학 석사
- 2000. 2 성균관대학교 재료공학 박사
- 현재 이수세라믹(주) 선임연구원



宋炳武

- 1982. 2 서울대학교 요업공학과 석사
- 1984. 2 서울대학교 무기재료공학과 석사
- 1987. 8 서울대학교 무기재료공학과 박사
- 1998. 5 쌍용양회 중앙연구소 전자세라믹 연구실장
- 현재 이수세라믹(주) 연구소장

《광고》 本 學會에서 發刊한 자료를 판매하오니 學會사무실로 문의 바랍니다.

* EARTH '93 Proceeding(1993) 457쪽, (International Symposium on East Asian Recycling Technology)	價格 : 20,000원
* 자원리사이클링의 실제(1994) 400쪽,	價格 : 15,000원
* 학회지 합본집 I, II, III, IV (I : 통권 제1호~제10호, II : 통권 제11호~제20호, III : 통권 제21호~제30호, IV : 통권 제31~제40호)	價格 : 40,000원, 50,000원(非회원)
* 한·일자원리사이클링공동워크샵 논문집(1996) 483쪽, 價格 : 30,000원	
* 한·미자원리사이클링공동워크샵 논문집(1996) 174쪽, 價格 : 15,000원	
* 자원리사이클링 종서I(1997년 1월) 311쪽,	價格 : 18,000원
* 日本의 리사이클링 產業(1998년 1월) 395쪽,	價格 : 22,000원, 発行처-文知社
* 리사이클링백서(자원재활용백서) 440쪽	價格 : 15,000원 "