

논문
8-6-15

Al₂O₃ 조성변화에 따른 YIG의

주파수 및 자기특성

The Frequency and Magnetic Characteristics of YIG with the Variation of Al₂O₃ 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 Al³⁺ ions on magnetic and frequency characteristics of YIG, using samples of basic YIG composition(Y₃Fe₅O₁₂) added with Al₂O₃ 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 Al₂O₃.

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; Y₃ Fe₅ O₁₂) Bertant 와 Forrar¹⁾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.²⁾

최근에는 YIG 결정구조에 있어서 각 금속이온의 점유위치를 기타 금속이온으로 치환반응시킨 혼합페라이트에 대한 연구가 활발히 수행되고 있으며, 특히 Fe³⁺이온을 Al³⁺이온으로 치환시킴으로써 고주파 영역에서의 비저항특성과 온도안정성 등의 특성을 개선시킬 수 있음이 Gardon과 Harrison등³⁾에 의해 보고된 이후로는 한층 가속화되고 있는 추세이다.

따라서, 본 연구에서는 최근 연구의 대상이 되고 있는 YIG에 주파수 특성 개선에 효과적인 첨가물로 알려진 Al₂O₃를 첨가하여 Y₃Fe_{5-x}Al_xO₁₂(0≤x≤2.5)와 같이 조성식을 구성한 후, Al³⁺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 Y₃Fe_{5-x}Al_xO₁₂(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 알루미늄아 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 알루미늄아 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/cm²]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 Al₂O₃의 첨가량에 따른 시편번호를 나타낸 것이다.

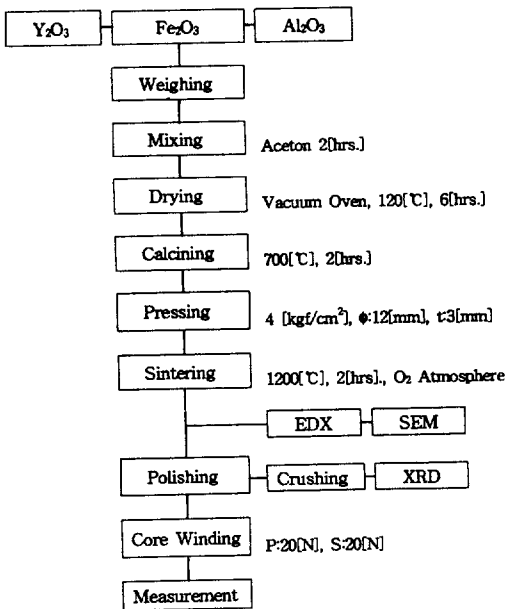


그림 1. 시편의 제조과정
Fig. 1. Manufacturing process of the specimens

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 ₂ O ₃	98.0 [%]	YaKuri Co.,Ltd.
Y ₂ O ₃	99.9 [%]	Strem Chemuculs, Inc.
Al ₂ O ₃	99.0 [%]	Junsei Chemical Co.,Ltd.

표 2. Al₂O₃의 첨가량에 따른 시편번호

Table 2. Specimen number with Al₂O₃ contents

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

각 시편의 조성변화에 따른 결정립의 크기, 결정입계 및 기공 등의 미세구조를 관찰하기 위하여 소결시편을 증류수 중에서 초음파세척한 후, 주사전자현미경(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 Al₂O₃의 첨가량에 따른 정성분석을 위하여 EDX (Energy-dispersive X-ray spectrometer:Noran Instrument, U.S.A.) 측정을 하였다.

2-2-2 자기물리 정수의 측정

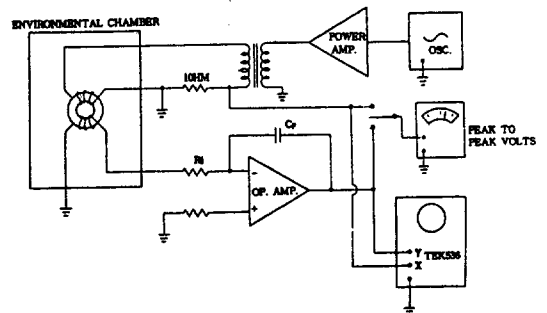


그림 2. B-H 곡선측정기의 블럭선도
Fig. 2. Block diagram of B-H Curve Tracer

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 $Y_3Fe_{3-x}Al_xO_{12}$ ($0 \leq x \leq 2.5$)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[μm] 이상으로 될 경우 μ_i 가 크게 증대하여 쉽게 포화된다²⁾는 사실과 일반적인 가네트의 입자크기가 15[μm]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

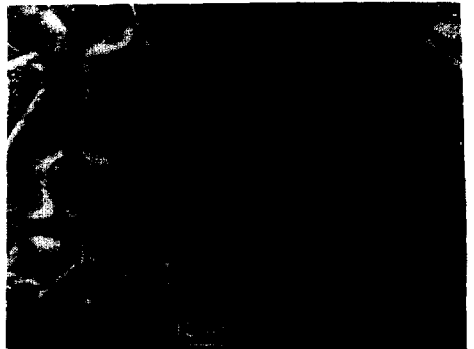
시 편 번 호	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4	No. 5
평균입자크기 [μm]	17.65	13.33	6.42	7.25	2.14

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

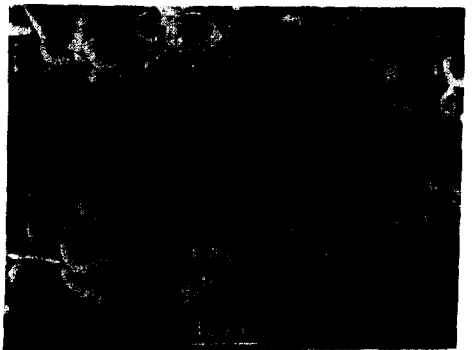
3-1-2 X 선 회절분석



NO. 1



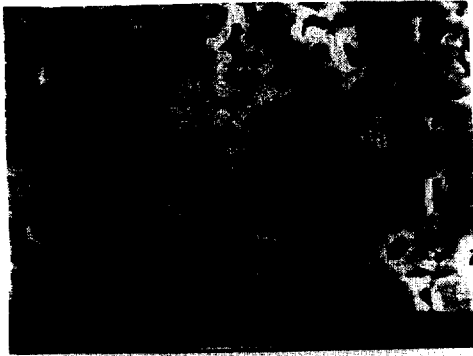
NO. 2



NO. 3



NO. 4



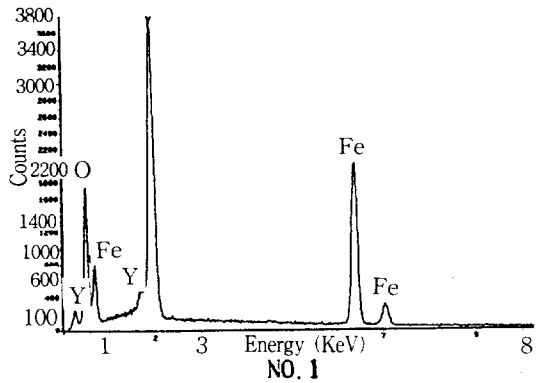
NO. 5

사진 1. Al₂O₃ 첨가량에 따른 전자현미경 사진
Photo 1. SEM photo. with Al₂O₃ contents

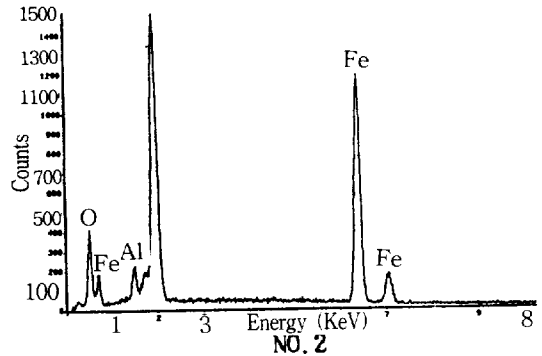
그림 4와 5는 각 하소분말과 소결시편에 대한 Al₂O₃ 첨가량에 따른 X 선회절 분석 결과이다. 그림 4와 5에서 알 수 있는 바와 같이 하소분말의 X 선회절패턴과 비교하면 소결시편에 대한 X 선회절패턴이 회절각의 폭이 좁고, 피이크가 뚜렷이 분리되는 것으로 부터 고상반응이 활발히 이루어졌음을 알 수 있다. 또한, 그림 5의 소결시편에 대한 X 선 회절패턴의 경향은 전형적인 가네트결정의 패턴과 거의 일치하고 있다. 그러나, Al₂O₃ 첨가량 증가에 따라 17.5° 부근에서 Al₂O₃ 결정에 의한 피이크가 점점 크게 나타나고 있으며, 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

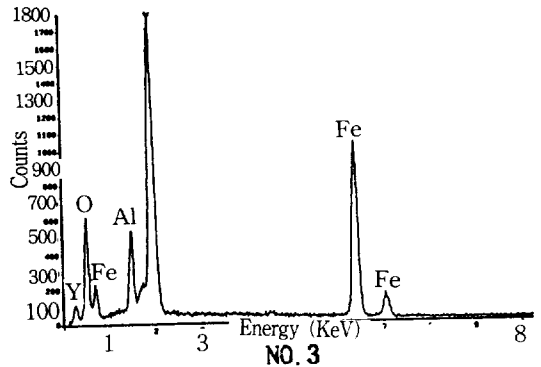
사진 2는 Al₂O₃ 첨가량에 따른 자기이력곡선의 측정사진을 나타낸 것이다. 고주파 재료에 있어서 높은 초투자율(μ_i)과 작은 보자력(H_c)이 필수적으로 요구된다는 사실을 고려할 때, 사진에서 알 수 있는 바와 같이 Al₂O₃가 0.5 [mol%] 첨가된 No.2 시편이 적절한 초투자율과 보자력을 갖고 있음을 확인할 수 있다. 즉, No.1 시편은 큰 포화자속밀도(B_s)를 지니고 있지만 보자력(H_c)의 값이 상대적으로 높게 나타나며, No.3 시편은 작은 보자력(H_c)을 나타내지만, 포화자속밀도(B_s)의 값이 매우 작게 나타난다. No.4, No.5 시편의 경우는 매우 작은 포화자속밀도를 보이고 있다. 이러한 자기적 특성은 미세구조 관측결과와 잘 일치하고 있다.



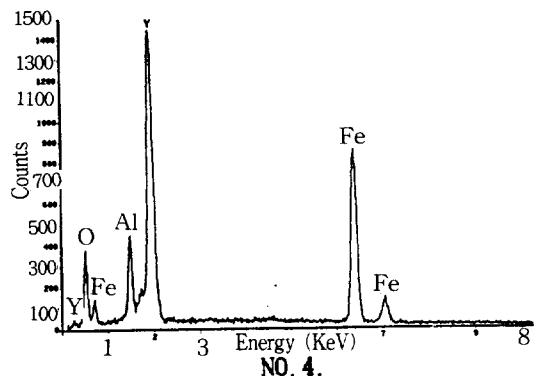
NO. 1



NO. 2



NO. 3



NO. 4

그림 3. 각 시편에 대한 EDX 분석
Fig. 3. EDX Data with Al₂O₃ contents.

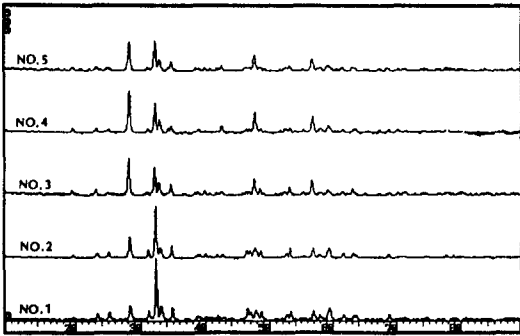


그림 4. Al₂O₃첨가량에 따른 하소분말의 X 선 회절

Fig. 4. X-ray diffraction of calcined powders with Al₂O₃ contents

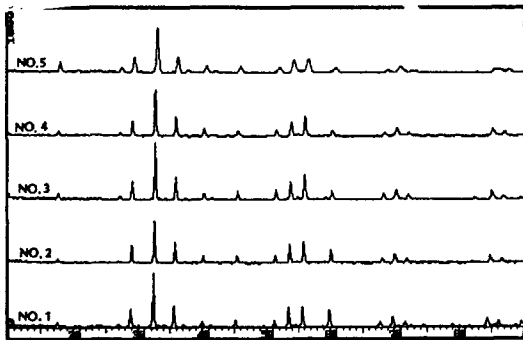


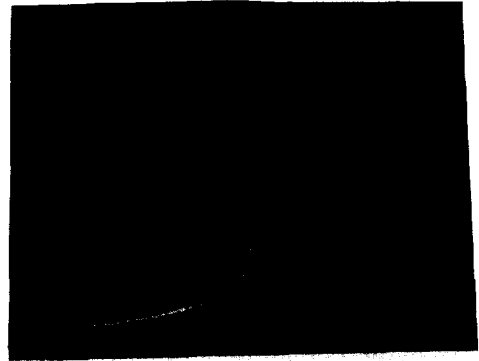
그림 5. Al₂O₃ 첨가량에 따른 소결시편의 X 선 회절

Fig. 5. X-ray diffraction of sintered specimens with Al₂O₃ contents

표 4는 각각의 시편에 대한 이력곡선으로 부터 얻은 자기물리정수의 값을 나타낸 것이다. Al₂O₃의 첨가량이 증가함에 따라 자기물리정수의 값이 감소하는 현상은 영자기모우먼트를 가지는 Al³⁺이온의 치환이 가네트의 자화를 감소시킨다는 사실에 기인한다.²⁾ 또한, Al³⁺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.⁶⁾ 그림 6는 Al₂O₃첨가량에 따른 직렬손실저항 (series loss



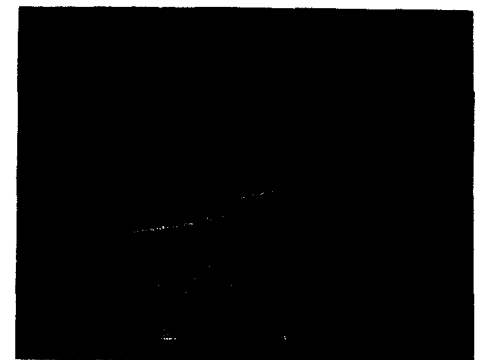
NO. 1



NO. 2



NO. 3



NO. 4

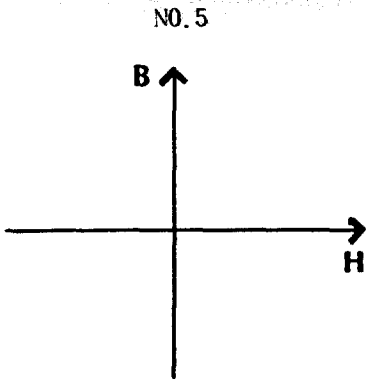


사진 2. Al₂O₃ 첨가량 변화에 따른 자기이력곡선

Photo 2. Hysteresis curve with Al₂O₃ 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	-
△B	537	402	166	150	-
Ms	82.206	57.775	27.286	11.062	-
K	2.055	1.444	0.682	0.277	-

* $f_B = 1$ [kHz], $H_a = 40$ [Oe]

resistance; R_s)의 주파수 의존성을 나타낸 것으로서 주파수 상승과 Al₂O₃ 첨가량의 증가에 따라 감소하는 경향을 보인다.

주파수 상승에 따른 직렬손실저항의 감소는 즉

정 주파수영역이 그림 6에서의 한계주파수 f_1 과 f_2 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, Al₂O₃의 첨가가 시편의 한계주파수를 높히는 효과를 가지는 것으로 사료된다.

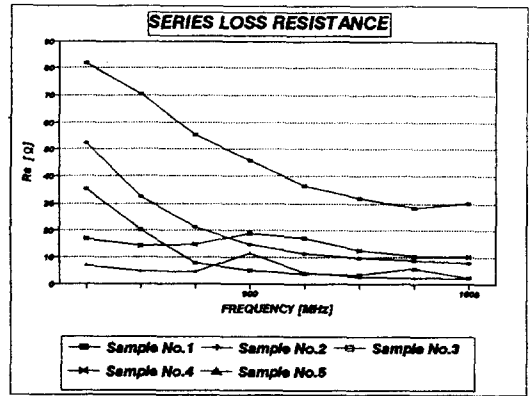


그림 6. Al₂O₃ 첨가량에 따른 손실저항의 주파수 의존성

Fig 6. Frequency dependence of loss resistance with Al₂O₃ content

한편, Al₂O₃가 첨가되지 않은 No.1 시편과 Al₂O₃가 일정량 첨가된 시편들 사이의 손실저항값은 현격한 차이를 나타내고 있으며, 이는 미세구조 분석에서 확인한 바와 같이 결정성장에 참여하지 못하고 입계에 잔존하는 Fe³⁺이온에 의한 영향으로 사료된다. 즉, Al₂O₃가 일정량 첨가된 시편들에서는 Al³⁺이온이 Fe³⁺이온을 치환함으로써 시편의 비저항이 증가되고, 입계층에 잔존하는 미반응 Fe₂O₃의 양이 상대적으로 감소함으로써 낮은 손실저항을 나타내는 것으로 고려된다.

그림 7은 Al₂O₃의 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 Al₂O₃의 첨가가 초투자율의 변화에는 특별한 영향을 미치지 못하는 것으로 사료된다.

그림 8은 Al₂O₃의 첨가량 변화에 따른 상대손실

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

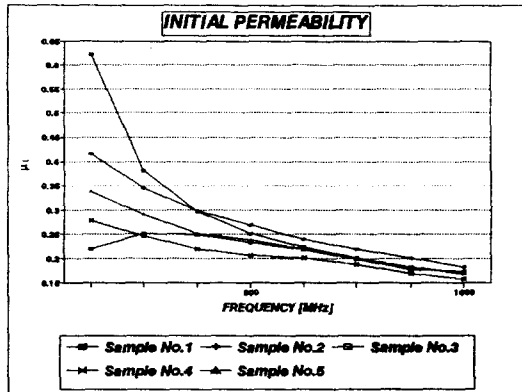


그림 7. Al₂O₃ 첨가량에 변화에 따른 초투자율의 주파수의존성

Fig. 7. Frequency dependence of initial permeability with Al₂O₃ content

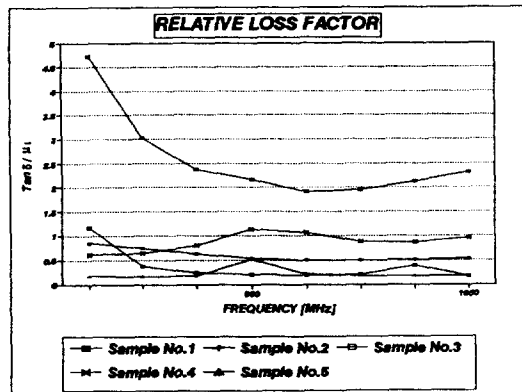


그림 8. Al₂O₃ 첨가량 변화에 따른 상대손실계수의 주파수 의존성

Fig. 8. Frequency dependence of relative loss factor with Al₂O₃ content

그림으로 부터 Al₂O₃가 전혀 첨가되지 않은 No.1 시편에 비하여 Al₂O₃가 일정량 첨가된 그밖의 시편들에서 상대손실계수가 현저히 감소되었음을 알 수 있다. 이러한 현상은 자벽이동기구만으로 충분히 포화자화에 도달할 수 있는 No.1 시편에 Al₂O₃가 첨가됨에 따라서 시편의 자화과정이 자벽

이동 뿐만 아니라 회전자화에 의해서도 이루어지기 때문으로 생각된다. 회전자화기구는 자벽이동구에 비하여 높은 에너지가 요구되며, 또한 자벽형성이 어려운 경우(입자직경 3[μ m] 이하)에 발생하므로 외부자계에 둔감하며²⁾, 상대손실계수를 낮추는데 기여할수 있다. 그러나, 회전자화에 의한 자화기여도는 매우 작기 때문에 Al₂O₃를 과잉첨가할 경우 자기적 특성에 악영향을 미칠 수도 있다. 즉, 그림 8에서 No.5 시편의 상대손실계수 곡선이 매우 낮은 값을 나타내고 있으나 자기이력곡선측정 및 미세구조관측 결과로 부터 확인한 바와 같이 양호하지 않은 자기특성을 나타내는 사실과도 일치한다.

4. 결 론

Y₃Fe_{5-x}Al_xO₁₂(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_i), 손실저항(Rs), 상대손실계수 등의 특성이 현저히 개선되었다. 특히, No.2 시편의 경우에 있어서 그 개선도가 훨씬 우수하였다.

(2) No.4, No.5 시편의 경우는 Al₂O₃가 과잉첨가되어 완전한 가네트구조 형성에 참여 하지 못하고 입계에 잔존하며, 이러한 과잉 첨가된 Al₂O₃는 저항성분으로 작용하여 고주파영역에서의 손실특성을 개선하였으나, 상대적으로 Bs, μ_i 등의 자기 물리정수값들을 극히 낮춤으로서 자성재료로서의 성질을 상실하였다.

이상의 결과로 부터, YIG의 기본조성에 Al₂O₃를 0.5[mol%] 첨가시킬 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(공박). 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.



이준용

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