

TiO₂ 첨가와 Mn-Zn ferrites의 전자기적 특성

정원희 · 송병무* · 한영호
성균관대학교 재료공학과
*이수세라믹(주)
(2000년 8월 23일 접수)

Effects of TiO₂ Addition on the Electromagnetic Properties of Mn-Zn Ferrites

Weon Hee Jeong, Byung Moo Song* and Young Ho Han

Department of Materials Science and Engineering, Sungkyunkwan University, Suwon, 440-746, Korea

*ISU Ceramic, Wonju, 220-800, Korea

(Received August 23, 2000)

초 록

TiO₂의 첨가가 Mn-Zn ferrites의 전자기적 물성에 미치는 효과에 대해 연구하였다. TiO₂의 첨가량이 증가함에 따라 밀도와 전기비저항이 증가된 반면 초기투자율은 감소하였다. TiO₂의 첨가에 따라 Fe²⁺ ion의 증가에 기인하여 전력손실의 최소 값을 나타내는 온도가 저온으로 이동하였다. TiO₂를 0.12 wt% 첨가한 시편의 경우, 100 kHz, 200 mT, 80°C 측정 조건에서는 소결 온도가 증가함에 따라 전력손실이 감소하였으며 1250°C 소결한 시편이 340 mW/cm³으로 가장 낮은 값을 보였다. 500 kHz, 50 mT, 80°C의 측정 조건에서는 소결 온도가 감소함에 따라 전력손실이 감소하였으며 1150°C 소결한 시편이 105 mW/cm³으로 가장 낮은 전력손실 값이 관찰되었다.

ABSTRACT

The effects of TiO₂ addition on the electromagnetic properties of Mn-Zn ferrites have been studied. The sintered density and resistivity increased with increasing TiO₂ addition, while the initial permeability decreased. The ferrous ion (Fe²⁺) due to the TiO₂ addition shifted the temperature where the power loss minimum occurs to lower temperatures. The power loss of the sample with 0.12 wt% TiO₂ decreased with increasing the sintering temperature, at 100 kHz, 200 mT, 80°C and the sample sintered at 1250°C showed the lowest power loss, 340 mW/cm³. However, at 500 kHz, 50 mT, 80°C the power loss increased with increasing the sintering temperature, and the sample sintered at 1150°C showed the lowest power loss, 105 mW/cm³.

Key words : Mn-Zn Ferrites, TiO₂, Sintering temperature, Power loss

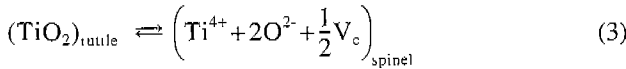
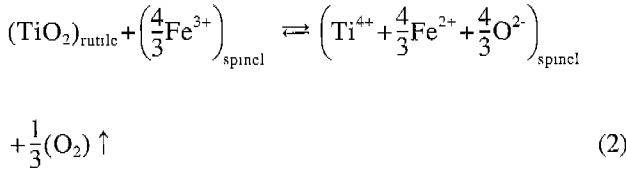
1. 서 론

Mn-Zn ferrites는 연자성 재료로서 고주파 영역까지 낮은 전력손실과 높은 투자율의 특성을 나타내기 때문에 SMPS의 transformer용 core 재질로 널리 사용되고 있다. Mn-Zn ferrites의 주요한 물성 중에 하나인 전력손실은 일반적으로 hysteresis loss와 eddy current loss, residual loss의 합으로 나타낼 수 있다. 그러나 대용량 magnetic flux를 다루는 power material에서는 residual loss는 무시할 정도로 작기 때문에 고려되지 않으므로 전력손실(P_L)은 다음 식과 같이 hysteresis loss (P_H)와 eddy current loss(P_E)만의 합으로 표시가 된다.¹⁾

$$P_L = P_H + P_E = f \oint H dB + K_e S B^2 f^2 / \rho \quad (1)$$

여기서 H는 자계(magnetic field)이며, B는 자기유도(mag-

netic induction), K_e는 상수, f는 주파수, S는 자속이 통과하는 단면적으로서 다결정 소결체에서는 결정립 크기(grain size)의 자승으로 알려져 있으며, ρ는 절연저항을 나타낸다. 식 (1)에서 보듯이 hysteresis loss는 주파수에 직선적으로 비례하며, eddy current loss는 주파수의 제곱에 비례하며 증가하게 됨으로 고주파 대역에서는 eddy current loss가 주도적으로 발생하게 된다. Eddy current loss를 줄이기 위해서는 작고 균일한 grain size와 높은 전기비저항을 지닌 물질이 요구된다. 전기비저항을 증가시키는 방법으로는 CaO, SiO₂ 등의 산화물을 첨가함으로써 입계에 고저항층을 형성시키는 것²⁾과 TiO₂, SnO₂ 등의 금속 4가 이온을 격자내에 치환하여 electron hopping에 의한 전기전도를 억제하는 방법³⁾ 등이 연구되고 있다. Johnson은 TiO₂의 경우 다음 반응식에서 처럼 Mn-Zn ferrites내에 고용되어 ferrous ion (Fe²⁺)의 농도를 변화시키고, 일부는 ferrous ion의 농도와는 상관없이 cation vacancy를 증가시킨다고 보고하였다.⁴⁾



일반적으로 세라믹의 전기전도도(σ)는 전하운반자의 농도(n), 전하량, mobility(μ)의 곱으로 표시된다. 그런데 Ti^{4+} 첨가에 따라 ferrous ion 농도(n)의 증가에도 불구하고 전체 전기전도도가 감소하는 것은, mobility(μ)를 효과적으로 감소시키기 때문이다. 즉 Ti^{4+} 와 Fe^{2+} 가 유효전하에 의하여 서로 결합(association)되어 ferrous ion(Fe^{2+})이 전기전도에 참여하지 못하도록 하여 전기비저항을 증가시킨다.⁵⁾ 그리고 식 (3)에서 처럼 TiO_2 의 첨가량에 따라 증가된 cation vacancy에 의해 소결시 치밀화를 촉진시킨다고 알려져 있다.⁴⁾ 본 연구에서는 금속 4가 이온인 TiO_2 의 첨가량변화와 TiO_2 가 0.12 wt% 첨가된 시편에 있어서 소결 온도 변화가 Mn-Zn ferrites의 전력손실, 투자율, 밀도, 저항, 미세구조 등의 여러 가지 물성에 미치는 효과에 관해 연구하였다.

2. 실험방법

시편은 일반적인 세라믹 공정을 따라 제작하였다. 기본조성으로 저손실제질의 특성을 나타내는 53.2 mol% Fe_2O_3 , 35.4 mol% MnO , 11.4 mol% ZnO 를 선택하였고,³⁾ TiO_2 를 각각 0 wt%, 0.12 wt%, 0.30 wt%, 0.50 wt% 첨가하여 습식 혼합후 건조하였다. 건조한 후 box furnace를 이용하여 1000°C에서 3시간 동안 하소하였다. 하소된 분말은 planetary mill에서 150 rpm으로 2시간 30분 동안 분쇄하였다. 이때 입계에 고저항층을 형성하는 산화물로 알려진 SiO_2 와 $CaCO_3$ 를 모든 시편에 각각 0.01 wt%, 0.04 wt% 첨가하였으며,²⁾ 액상형태로 PVA(polyvinyl alcohol) 0.7 wt%, PEG(polyethylene glycol) 0.7 wt%를 넣은 후 atomizer 형태의 분무건조기를 이용하여 과립화시켰다. 과립화한 분말에 윤활제로 Zn-stearate를 첨가한 뒤 15 g씩 칭량하여 약 1.7 ton/cm²의 압력으로 성형하여 외경 3 cm, 내경 2 cm, 높이 1 cm의 크기를 갖는 toroid 형태의 코어를 만들었다. 별도의 전기로에서 binder를 제거한 후 1130°C, 1150°C, 1170°C, 1220°C, 1250°C, 1270°C의 온도구간에서 각각 3시간씩 소결하였다. 승온구간에서 600°C까지는 산소분압을 21%로 유지하였으며, 그 이후의 승온구간과 소결온도에서의 산소분압은 1%로 유지하였다. 냉각 시에는 소결 온도 상태에 있는 양이온의 산화상태를 유지하기 위하여 다음 식을 따라서 산소분압을 조절하면서 냉각하였다.⁶⁾

$$\log Po_2 = A - \frac{14540}{T(K)} \quad (4)$$

위 화학평형식에서 Po_2 는 산소분압, A는 실험적으로 변화시킬 수 있는 atmosphere parameter, T는 절대온도를 나타낸다. A 값은 7.8로 고정하여 모든 실험에 적용하였다. 이렇게 소결된 시편들의 전력손실, 밀도, 비저항, 그리고 초기 투자율을 측정하였다. 전력손실을 Iwatsu B-H analyzer (SY 8332)를 이용하여 100 kHz, 200 mT와 500 kHz, 50 mT의 조건에서 측정하였다. 밀도는 아르키메데스 법을 이용하여 측정하였고, 초기투자율과 비저항은 Impedance analyzer (Hewlett Packard 4194A)를 이용하였다. 소결체의 미세구조는 주사전자현미경을 이용하여 관찰하였다. 소결체의 grain size는 Image Analyzer(Image Pro-Plus, Media Cybernetics, MD, USA)를 이용하여 미세조직사진으로부터 정량적으로 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. TiO_2 첨가와 Mn-Zn Ferrites의 물성

TiO_2 의 첨가량을 0에서 0.5 wt%까지 변화시킨 후 1250°C에서 3시간 소결한 시편의 밀도와 grain size의 변화를 Fig. 1에 나타내었다. TiO_2 의 첨가량이 증가함에 따라 밀도 및 grain size가 증가하였다. 특히 TiO_2 의 첨가가 없는 시편의 경우 4.78 g/cm³ 정도의 낮은 밀도 값을 보인 반면 TiO_2 를 첨가할 경우 4.90 g/cm³ 이상의 밀도 증가를 관찰할 수 있었다. TiO_2 가 Mn-Zn ferrites에 첨가되어 치밀화를 증가시키는 원인으로서는 TiO_2 -FeO, TiO_2 -MnO 계의 낮은 공용온도로 인해 소결시 액상이 형성되어 치밀화가 촉진된다는 연구 결과와⁷⁾ Ti^{4+} ion이 Mn-Zn ferrites내에 첨가됨으로서 cation vacancy가 생성되어 치밀화를 촉진시킨다⁴⁾는 보고가 있다. 64.4 wt% TiO_2 와 35.6 wt% MnO 계에서의 공용온도는 1290°C로 알려져 있고, 5 wt% TiO_2 와 95 wt% FeO 계에서는 1305°C, 37.6 wt% TiO_2 와 62.4 wt% ZnO 계에서는 1416°C로 알려져 있다.⁷⁾ 이에 비해 본 연구에서는 소성 온도가 1250°C로 공용온도보다 낮기 때문에

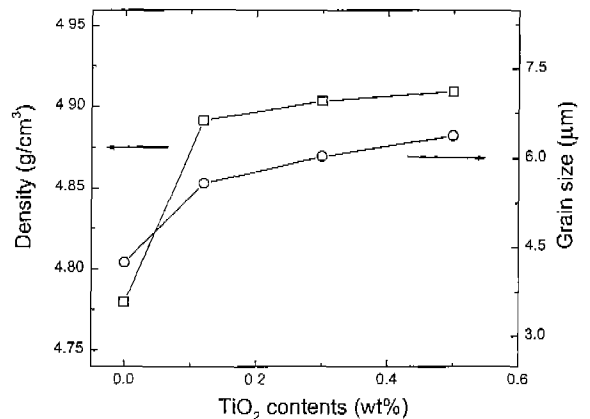


Fig. 1. Effects of TiO_2 contents on the density and grain size. (1250°C sintering).

액상의 생성은 기대하기 어렵다. 따라서 본 실험에서 나타난 밀도의 증가는 식 (3)에 나타난 바와 같이 TiO₂의 첨가량이 증가함에 따라 발생하는 cation vacancy의 증가에 기인한 것으로 사료된다. 치밀화는 vacancy를 매개체로 한 불질이동 현상이므로 Ti⁴⁺ ion 첨가로 인해 생성된 cation vacancy는 치밀화를 촉진하는 고체확산에 기여하게 될 것이다.

Table 1에는 TiO₂ 첨가량을 변화시킨 시편들을 1250°C에서 소결한 후 100 kHz와 500 kHz에서 측정된 AC 비저항을 나타내었다. 두 경우 모두 TiO₂의 첨가량이 증가함에 따라 전기비저항이 증가하는 것으로 나타났다. Mn-Zn ferrites의 전기 저항은 입내 저항과 입계 저항으로 나누어 볼 수 있다. 그 중에서 TiO₂의 첨가량이 증가할수록 전기비저항이 증가하는 것은 TiO₂가 Mn-Zn ferrites에 첨가되어 입내 저항을 증가시키기 때문인 것으로 알려져 있다.⁵⁾ Ti⁴⁺ 이온이 B격자(octahedral site)에 치환되어 Fe²⁺ 이온과 결합(associate)되어 있어 주전하 운반자인 Fe²⁺ 이온의 활성을 억제함으로써 전자홀의 이동을 감소시키기 때문이다.

TiO₂ 첨가량에 따른 초기투자율의 온도의존성을 Fig. 2에 나타내었다. TiO₂의 첨가량이 증가할수록 투자율의 제 2 최대치(second peak maximum)를 나타내는 온도인 T_{spm}이 낮은 온도로 이동하였다. 일반적으로 초기투자율의 제 2 최대치가 나타나는 온도(T_{spm})에서 전력손실의 최소가 나타나고, 자기이방성상수(K₁)는 0이 된다.⁸⁾ 그리고 Fe²⁺ 이온 농도와 T_{spm}은 밀접한 관계를 갖고 있으며 Fe²⁺ 이온의 농도가 증가함에 따라 T_{spm}은 낮아진다고 알려져 있다.⁹⁾ 따라서 그림

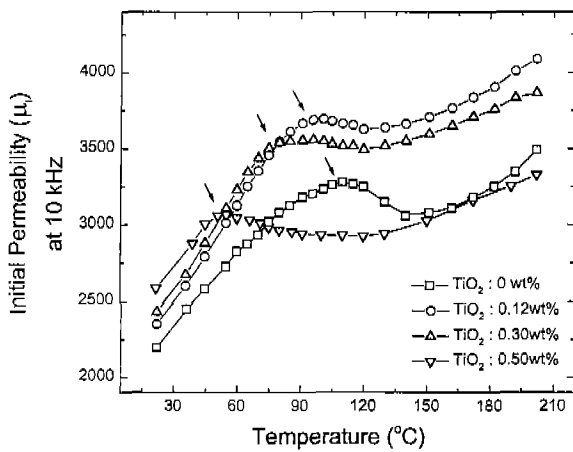


Fig. 2. Initial permeabilities at 10 kHz as a function of temperature for various TiO₂ contents. Arrows indicate the second maximum peaks. (1250°C sintering).

에 나타난 T_{spm}의 이동은 TiO₂의 첨가량이 증가할수록 식 (2)와 같이 Fe²⁺ 이온이 증가했기 때문으로 사료된다. TiO₂를 첨가한 시편의 경우 TiO₂를 첨가하지 않은 시편에 비해 전반적으로 큰 투자율의 증가가 관찰되었다. 이러한 현상은 TiO₂를 첨가하였을 경우 밀도 증가에 의해 투자율이 증가된 것으로 사료된다. 그리고 TiO₂의 첨가량이 0.12 wt% 이상에서는 따라 전반적인 투자율의 감소가 관찰되었는데, 이러한 현상은 Ti 이온이 비자성 원소이므로 pore나 기타 불순물과 마찬가지로 자화시 domain wall의 움직임을 방해하기 때문으로 판단된다. 그러나 상온에서의 초기투자율은 T_{spm}의 이동으로 인해 오히려 TiO₂의 첨가량이 증가할수록 초기 투자율은 증가하였다.

Fig. 3 (a)는 1250°C 소결한 시편을 100 kHz, 200 mT 조건에서, (b)는 같은 시편을 500 kHz, 50 mT에서 각 온

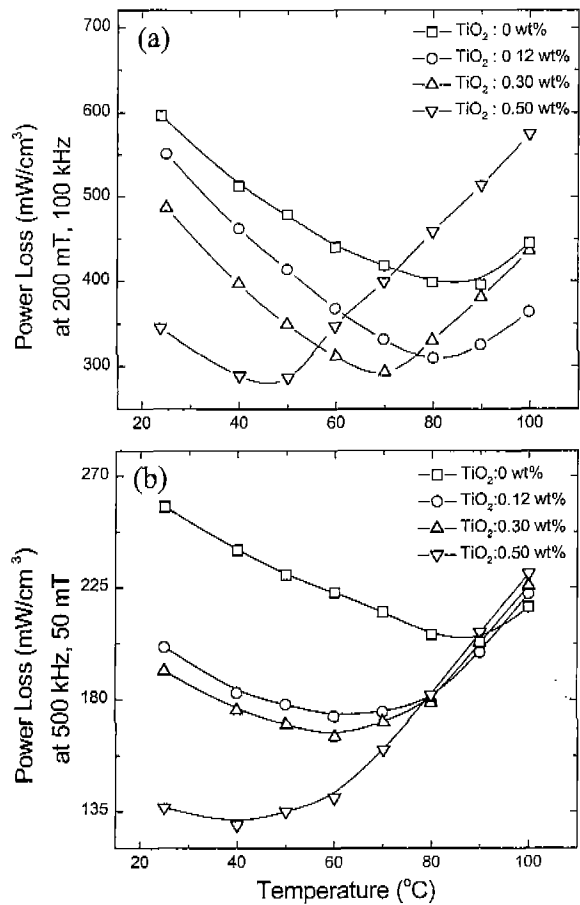


Fig. 3. Effects of TiO₂ contents on the power loss. (1250°C sintering); (a) 100 kHz, 200 mT and (b) 500 kHz, 50 mT.

Table 1. AC Resistivities of Samples for Various TiO₂ Contents at 25°C (1250°C Sintering)

frequency \ TiO ₂	0 wt%	0.12 wt%	0.30 wt%	0.50 wt%
100 kHz	73.37 Ω · cm	81.15 Ω · cm	82.69 Ω · cm	94.89 Ω · cm
500 kHz	12.40 Ω · cm	15.46 Ω · cm	15.53 Ω · cm	16.01 Ω · cm

도별로 측정된 전력손실 결과이다. TiO_2 의 첨가량이 증가할수록 전력손실의 최소값이 나타나는 온도가 감소하는 것이 관찰되었다. 보통 전력손실의 최소값이 나타나는 온도는 T_{spm} 에서 나타난다고 알려져 있다.⁸⁾ 따라서 Fig. 2에 나타난 것처럼 TiO_2 의 첨가량이 증가함에 따라 T_{spm} 이 낮아져 전력손실의 최소가 나타나는 온도가 낮아지는 것으로 사료된다. 100 kHz, 200 mT의 경우 TiO_2 의 첨가량에 따라 전력손실의 최소값은 별로 차이가 없는 반면, 500 kHz, 50 mT의 경우에는 TiO_2 의 첨가량에 따라 큰 차이를 보였다. 비교적 낮은 주파수 영역인 100 kHz는 hysteresis loss가 주도적인 영역이고, 500 kHz는 eddy current loss가 주도적인 영역으로 알려져 있다. 따라서 100 kHz보다 500 kHz에서의 전력손실의 최소값이 TiO_2 의 함량에 더 민감한 것은 TiO_2 의 첨가로 인한 전기비저항의 증가가 eddy current loss를 효과적으로 줄였기 때문인 것으로 보인다. 또한 온도가 증가함에 따라 electron hopping에 의한 비저항이 감소하게 되고 eddy current loss의 기여도가 더욱 커져서 전력손실의 최소값이 증가하는 효과가 나타났다고 사료된다.

3.2. 소결 온도 변화와 TiO_2 첨가 효과

Fig. 4는 소결온도를 1130°C에서 1250°C까지 증가시키면서 소결한 소결체의 미세조직 사진이다. 소결온도가 증가함에 따라 grain size가 균일하게 증가하는 것을 관찰할 수 있었다. 그러나 1270°C 소결한 경우 다량의 과대입성장이 된 것을 관찰할 수 있었다. Fig. 5는 1270°C 소결한 시편에서 1500배 확대한 정상입자와 500배 확대한 과대입성장된

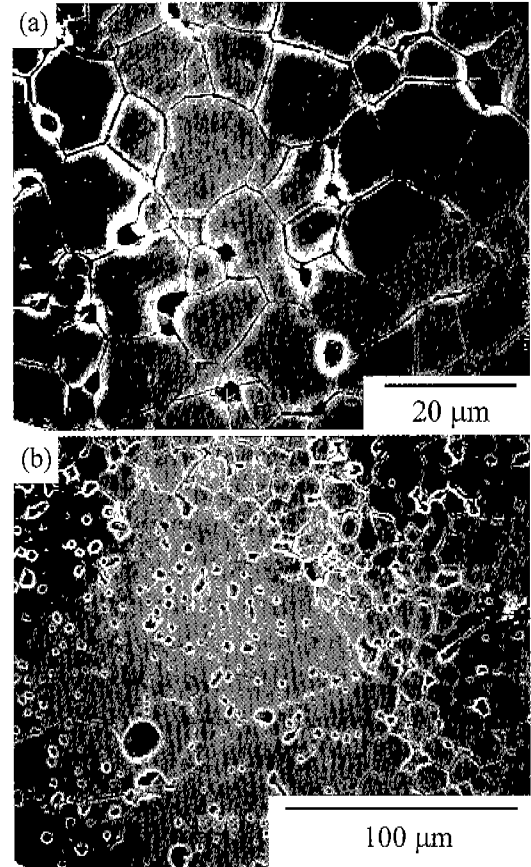


Fig. 5. Microstructure of exaggerated grain growth at 1270°C sintering. (TiO_2 content 0.12 wt%); (a) normal grains ($\times 1500$) and (b) exaggerated grains ($\times 500$).

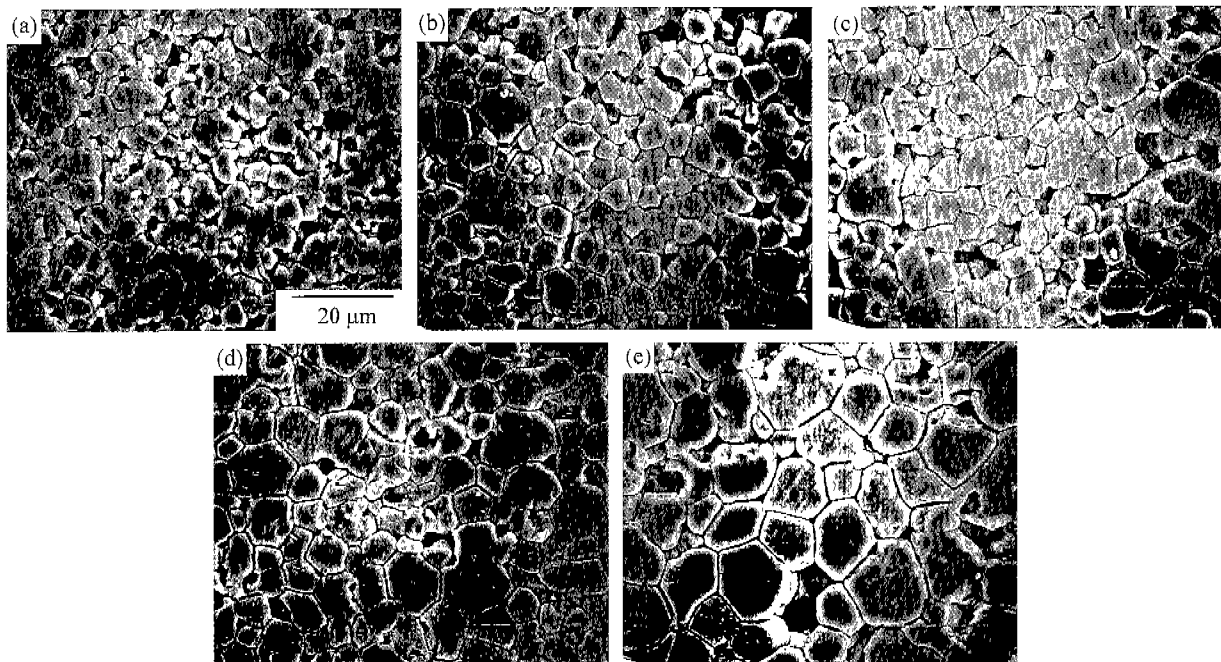


Fig. 4. Microstructures of samples at various sintering temperatures. (TiO_2 content 0.12 wt%); (a) 1130°C, (b) 1150°C, (c) 1170°C, (d) 1220°C and (e) 1250°C.

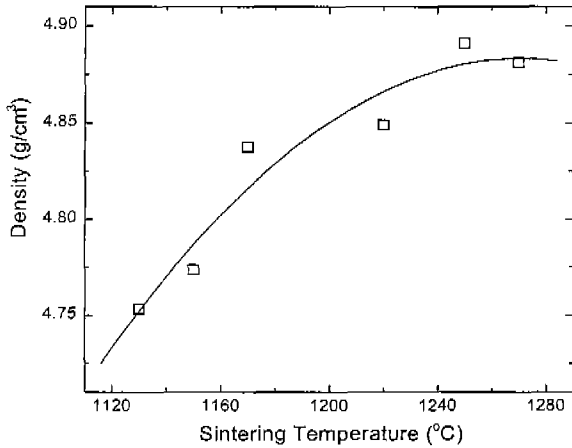


Fig. 6. Effects of sintering temperatures on the density (TiO₂ content 0.12 wt%).

입자를 관찰한 미세조직사진이다. 0.12 wt% TiO₂를 첨가한 시편의 경우 1270°C의 소결 온도에서 100 μm 이상의 과대입성장이 발생한 것을 관찰할 수 있다. Fig. 6은 소결 온도를 달리한 시편의 밀도변화를 나타낸 결과이다. 1250°C까지 소결온도가 증가함에 따라 치밀화가 급격히 증가하였고, 그 이상의 온도에서는 밀도가 감소하였다. 일반적으로 소결 온도의 증가는 밀도 증가를 가져오지만, 1270°C 소결한 경우 미세구조에서 살펴본 바와 같이 수백 μm 이상의 과대입성장이 발생하여 grain 내부에 closed pore를 남기게 되어 밀도 증가를 어렵게 한 것으로 생각된다. 실제로 Fig. 5에 과대입성장된 grain을 보면 내부에 존재하는 pore들이 잘 나타나 있다.

Fig. 7에는 TiO₂가 0.12 wt% 첨가된 경우 소결 온도 변화에 따른 상온에서 100 kHz와 500 kHz의 조건으로 측정된 전기비저항을 도시하였다. 소결 온도가 증가함에 따라 100 kHz와 500 kHz의 경우 모두 전기비저항이 감소되는 것을 알 수 있다. 이는 소결온도가 증가함에 따라 grain

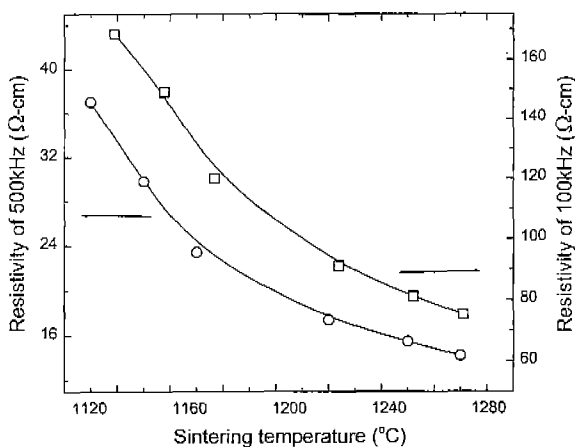


Fig. 7. AC resistivities at various sintering temperatures at 25°C (TiO₂ content 0.12 wt%).

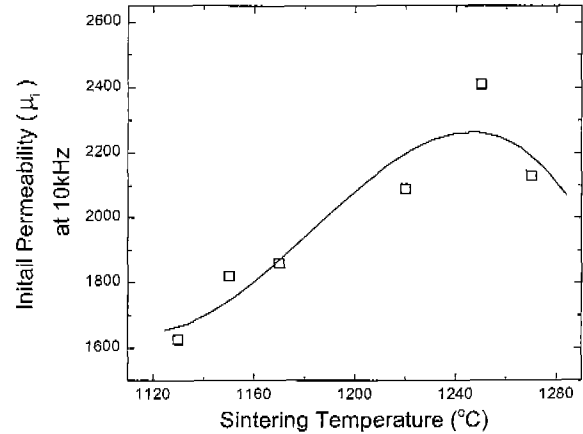


Fig. 8. Initial permeabilities at various sintering temperatures at 25°C, 10 kHz (TiO₂ content 0.12 wt%).

size의 증가에 의해 고저항층인 boundary 면적이 감소하는 것과 소결 온도가 낮을 경우 밀도가 낮아 많은 pore가 존재하게 되어 전체 bulk의 절연저항이 증가한 것으로 두 가지가 복합되어 나타난 현상으로 사료된다. Fig. 8은 상온에서 측정된 초기투자율을 소결온도의 함수로 도시한 것이다. 소결 온도가 높아짐에 따라 grain size의 증가와 grain boundary 면적의 감소로 인해 초기 투자율이 증가하였다. 그러나 1270°C 소결한 경우에는 초기 투자율이 감소하였는데 이는 Fig. 5에 나타난 바와 같이 과대입성장을 이룬 grain 내부에 고립된 pore가 비자화 영역(demagnetization area)을 증가시키며 동시에 자구의 이동을 방해했기 때문인 것으로 판단된다.

Fig. 9는 소결온도 변화가 Mn-Zn ferrites 코어의 전력손실에 미치는 영향을 실제 사용온도인 80°C에서 각각 100 kHz, 200 mT와 500 kHz, 50 mT 조건에서 측정된 결과이다. 100 kHz, 200 mT에서는 소결 온도가 증가함에 따라 전력손실이 감소하였다. 500 kHz, 50 mT의 조건에서는 이와는 반대로 소결 온도가 증가함에 따라 전력손실값이 점차 증가하고 있음을 관찰할 수 있다. 500 kHz 이하의 사용 주파수에서의 전력손실은 hysteresis loss와 eddy current loss의 합으로 나타날 수 있고, 각각은 주파수와 주파수의 제곱에 비례하며 증가하게 된다. 따라서 작동 주파수가 증가하면 hysteresis loss 보다는 eddy current loss가 전력손실의 주된 기구로 작용하게 된다. Fig. 9(a)와 (b)에 나타난 소결 온도에 따른 전력손실의 변화가 서로 상반되는 결과를 볼 때 측정 주파수에 따라 전력손실 기구가 서로 다르다는 것을 이해할 수 있다. 즉 100 kHz, 200 mT 조건에서 소결 온도가 증가함에 따라 전력손실이 감소하는 것은 grain size와 밀도의 증가로 인해 포화자화 값이 증가하여 hysteresis loss를 감소시키기 때문이다. 반면에 500 kHz, 50 mT의 경우 소결온도가 증가함에 따라 전력손실이 증가하는 것은 grain size의 증가와 전기비저항의 감소 등으로 인해 eddy

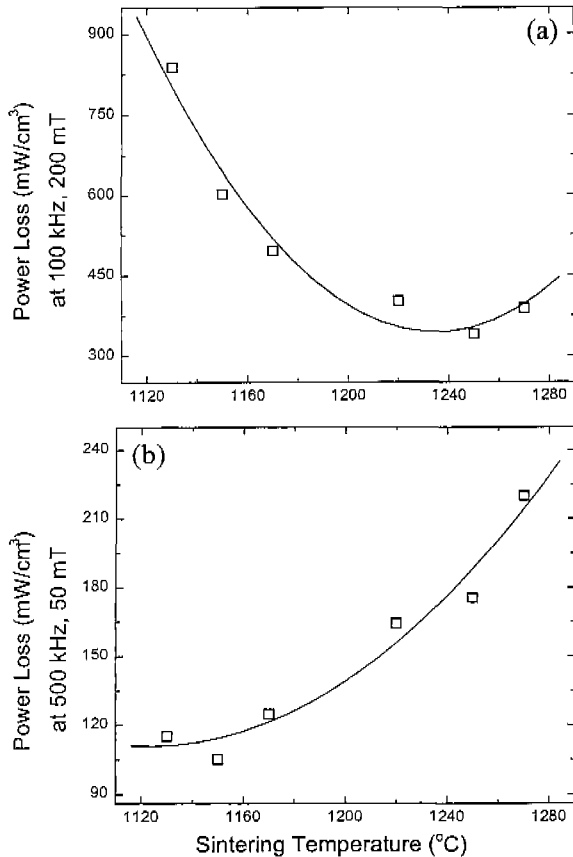


Fig. 9. Effects of sintering temperatures on the power loss. (TiO_2 content 0.12 wt%); (a) 100 kHz, 200 mT, 80°C and (b) 500 kHz, 50 mT, 80°C .

current loss가 증가되었기 때문으로 사료된다. 따라서 100 kHz 영역에서 hysteresis loss가 주된 손실기구이며 500 kHz에서는 eddy current loss가 주된 손실기구임을 확인할 수 있었다.

4. 결 론

Mn-Zn ferrites에서 TiO_2 의 첨가량을 0에서 0.5 wt%로 변화시키에 따라 소결체의 밀도와 전기비저항이 증가되었고, 초기투자율의 제 2 최대치를 나타내는 온도인 T_{spm} 이 낮은 온도로 이동하였다. 이러한 현상은 모두 TiO_2 를 첨가한 경우 Ti가 Fe 자리를 차지하면서 생기는 cation vacancy와 Fe^{2+} 의 증가로 이해될 수 있다. TiO_2 가 0.12 wt% 첨가된 시편의 경우, 100 kHz, 200 mT, 80°C 측정 조건에

서는 소결 온도가 증가함에 따라 전력손실이 감소하였고, 1250°C 소결한 시편이 340 mW/cm^3 으로 가장 낮은 값을 보였다. 그 이상의 소결 온도에서는 과대입성장이 발생하여 Mn-Zn ferrites의 전자기적 물성 감소가 관찰되었다. 그러나 500 kHz, 50 mT, 80°C 조건에서는 소결온도가 증가함에 따라 전력손실이 증가하였으며, 1150°C 소결시 105 mW/cm^3 의 값이 관찰되었다. 이런 소결 온도에 따른 전력손실의 변화가 서로 상반하는 결과를 볼 때 측정 주파수에 따라 전력손실 기구가 서로 다르다는 것을 확인할 수 있었다.

REFERENCES

1. E. Otsuki, S. Yamada, T. Otsuka, K. Shoji and T. Sato, "Microstructure and Physical Properties of Mn-Zn Ferrites for High-frequency Power Supplies," *J. Appl. Phys.*, **69**(8), 5942-5944 (1991).
2. T. Mochizuki, "Relations between Microstructure and Core Loss in Mn-Zn Ferrites for Power Applications," Ferrites (ICF-6), pp. 53-58, Edited by T. Yamaguchi, M. Abe, Jpn. Soc. Powder and Power Metallurgy, Japan (1992).
3. E. Ross, "Modern Technology for Modern Ferrites," Advances in Ferrites(ICF-5), 1, 129-136, Ed. by C. M. Srivastava, M. J. Patni, Oxford and IBH publishing, India (1989).
4. D. W. Johnson Jr., P. K. Gallagher, M. F. Yan and H. Schreiber, "Vacancy Contents and Phase Equilibria of Ti-Substituted MnZn Ferrite," *J. of Solid State Chem.*, **30**, 299-310 (1979).
5. T. G. W. Stijntjes, J. Klerk, A. Broese van Groenou, "Permeability and Conductivity of Ti-Substituted MnZn Ferrites," *Philips Res. Rep.*, **25**, 95-107 (1970).
6. R. Morineau and M. Paulus, "Chart of PO_2 versus Temperature and Oxidation Degree for Mn-Zn Ferrites in the Composition Range: $50 < \text{Fe}_2\text{O}_3 < 54$; $20 < \text{MnO} < 35$; $11 < \text{ZnO} < 30$ (mol%)," *IEEE Trans. on Mag.*, **11**(5), 1312-1314 (1975).
7. M. F. Yan and D. W. Johnson Jr., "Sintering of High Density Ferrites," *Mat. Sci. Res.*, **11**, 393-402 (1978).
8. G. W. Stijntjes and J. J. Roelofsma, "Low-loss Power Ferrites for Frequency up to 500 kHz," Advances in Ceramics (ICF-4), pp. 493-500, Ed. by Franklin F. Y. Wang, The Am. Ceram. Soc., Columbus, Ohio (1984).
9. E. Otsuki, "Nanostructure and Magnetic Properties of Mn-Zn Ferrites," Ferrites(ICF-6), pp. 59-64, Ed. by T. Yamaguchi, M. Abe, The Japan Society of Powder and Power Metallurgy, Japan (1992).