

## 소결온도에 따른 YIG 페라이트의 자기적 특성

양승진 · 윤종남\* · 최우석\*\* · 김정식<sup>†</sup>

서울시립대 신소재공학과, \*전자부품연구원, \*\*오토전자(주)

## Magnetic Characteristics of YIG ferrites with Sintering Temperature

Seung-Jin Yang, Jong-Nam Yoon\*, Woo-Seok Choi\*\*, and Jung-Sik Kim<sup>†</sup>

Department of Materials Science & Engineering, The University of Seoul, Seoul 130-743

\*Korea Electronic Technology Institute, Pyungtaek 451-865, Korea

\*\*Auto Electronic Corp.

**초 록:** 소결온도에 따른 아이솔레이터/서큘레이터용 (Y, Ca)-(Fe, V, In, Al)-O 계 YIG 페라이트의 미세구조와 전자기적 특성을 고찰하였다.  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$  조성의 시편들을 일반적인 세라믹 제조 공정에 따라 1300°C, 1330°C, 1350°C, 1370°C에서 각각 소결하였다. 소결체는 XRD를 이용하여 상 분석을 실시하였고, SEM을 이용하여 미세구조를 관찰하였다. VSM을 이용하여 포화자화값( $4\pi M_s$ )을 측정하였으며, FMR(Ferromagnetic Resonance)실험으로 자기공명반치폭( $\Delta H$ )을 측정하였다. YIG 페라이트의 마이크로파 특성은 Network Analyzer를 이용하여 측정하였다.  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$  조성의 YIG 페라이트는 1350°C에서 소결시 가장 높은 밀도값과 포화 자화( $4\pi M_s$ ) 값을 나타내었고, 가장 낮은 자기 공명 반치폭( $\Delta H$ ) 값을 나타내었다.

**Abstract:** Microstructural and electromagnetic properties of YIG ferrites, (Y, Ca)-(Fe, V, In, Al)-O for Isolator/Circulator were investigated with the sintering temperature. YIG ferrites of  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$  were fabricated by sintering at 1300°C, 1330°C, 1350°C, and 1370°C. Crystallographic and microstructural properties were measured using XRD and SEM. Saturation magnetization( $4\pi M_s$ ) were measured using VSM, and FMR(Ferromagnetic Resonance) experiment was conducted to measure ferromagnetic resonance line width( $\Delta H$ ). Microwave characteristics of YIG ferrites were measured using a Network Analyzer. The YIG ferrite of  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$ , sintered at 1350°C, showed higher density, saturation magnetization and lower ferromagnetic resonance line width than those sintered at any other temperature.

**Key words:** YIG ferrites, Isolator, Ferromagnetic resonance.

### 1. 서 론

이트륨계 가네트(garnet)형인 YIG( $Y_3Fe_5O_{12}$ )는 현재 알려져 있는 마이크로파용 자성재료 중에서도 가장 손실이 적은 재료이며, 상대적으로 낮은 포화자화 값을 갖기 때문에 이론적으로 저주파에서 마이크로파에 이르기까지 비가역적 소자로서의 한계를 극복할 수 있다.<sup>1)</sup> 또한 마이크로파 영역에서 우수한 자기적 성질을 가지므로 이동통신

용 부품, 위성방송용 부품, 비가역소자, 레이더 등의 핵심소재로서 널리 이용되고 있다.<sup>2-4)</sup> 가네트 페라이트의 결정구조는  $R_3Fe_5O_{12}$ 의 화학식으로 표시되며, R은 Y 또는 Gd 등의 희토류 원소이다. 가네트 페라이트는 1952년 C.L.Hogan<sup>5)</sup>이 10 GHz 대에서의 자이로 자기공명을 발표하고, 1956년 Bertaut와 Forrat<sup>6)</sup>에 의해 가네트 자성재료가 발견된 이래 마이크로파 부품에 적용시키고자 많은 연구개발이 진행되었다. YIG는 마이크로파용 자성

재료중 손실이 가장 작은 재료로 YIG 단결정의 경우  $\Delta H$ 는 40 A/m ( $\approx 0.5$  Oe)이다. 이처럼 자기 손실이 낮은 이유는 가네트 구조를 구성하는 모든 부력자점들이 양이온으로 채워져 있고, 이온의 배치가 공간적으로 비교적 균일하기 때문에 결정 자기 이방성이 작아져 자기모멘트가 이방성 에너지에 구속되지 않고 세차운동을 하기 때문에 자기손실이 작아지게 된다. 작은 선 폭과 낮은 포화자화값 때문에 다결정 가네트는 마이크로파 범위에서 페라이트가 갖는 작동 주파수의 한계를 넓힐 수 있으며, 그로 인하여 가네트는 비선형적이고 손실이 적어 마이크로파 장비 또는 마이크로파 필터에 매우 유용하게 사용된다.

본 연구에서는 Ca, V, In, Al을 치환 원소로 사용한 YIG 페라이트 분말을 분무건조기에 의해 준구형 과립으로 만들어 일반적인 세라믹 제조공정에 따라 제조하였으며, 소결온도에 따른 YIG 페라이트의 미세구조와 전자기적 특성 변화를 조사하였다.

## 2. 실험방법

$Y_2O_3$ (99.9%),  $Fe_2O_3$ (99.95%),  $CaCO_3$ (99%),  $V_2O_5$ (99.8%),  $In_2O_3$ (99.9%),  $Al_2O_3$ (99%)를 원료로 사용하여 일반적인 세라믹 공정에 따라 YIG 페라이트 시편을 제조하였다. 원료를  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$  조성비에 맞게 각각 칭량한 후, 에탄올과 혼합하여 24시간 동안 볼밀링 하였고, 1170°C에서 10시간 동안 하소시켰다. 하소된 YIG 분말을 준구형의 과립으로 만들기 위하여 결합제(PVA+PEG)와 함께 증류수에 혼합하여 spray dry용 slurry를 만들었고, nozzle atomizer type의 spray dryer(Buchi사 Mini Spray Dryer B-190)를 사용하여 약 5~20  $\mu m$  정도 크기의 준구형 과립 분말을 얻었다. 준구형 과립 분말을 원통형 몰드에 넣고 약 40 MPa의 압력을 가하여 성형한 후 1300°C, 1330°C, 1350°C, 1370°C에서 6시간 동안 소결하였다. 소결시편은 아르키메데스법을 이용하여 부피 밀도를 구하였고, X-선 회절분석기를 사용하여 결정상을 조사하였으며, 주사전자현미경을 사용하여 YIG 페라이트의 미세구조를 관찰하였다. VSM을 이용하여 포화자화( $4\pi M_s$ )값을 측정하였고, FMR(Ferromagnetic Resonance)실험을 통해 자기공명반치폭( $\Delta H$ ) 측정

하였다. FMR 실험을 위해 직경 0.5 mm 이하 구형으로 가공하였다. YIG 페라이트의 마이크로파 특성은 Network Analyzer를 이용하여 측정하였다.

## 3. 결과 및 고찰

소결온도에 따른  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$  소결체의 밀도를 Fig. 1에 나타내었다. 각 소결온도에 대해 4.75~4.81  $g/cm^3$  범위의 소결밀도를 나타내어 소결온도에 따른 소결밀도의 큰 변화는 없었으나, 1350°C에서 소결시 가장 높은 소결밀도를 나타냈다. 1300~1370°C 범위의 소결온도 범위에서  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$  조성의 이론밀도(4.97  $g/cm^3$ )의 95% 이상의 소결밀도를 나타내었다.

Fig. 2에서는 1350°C에서 소결된  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$  시편의 1350°C에서의 X-선 회절

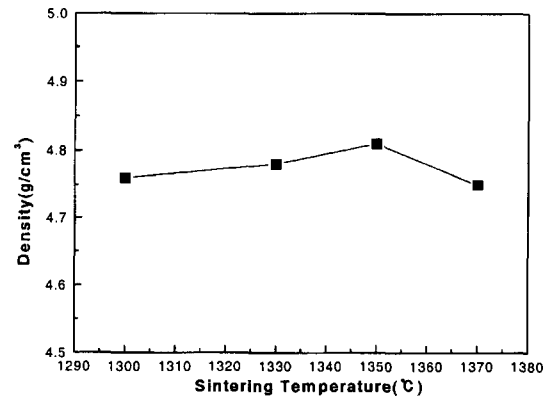


Fig. 1. Densities of YIG ferrites,  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$  sintered at various temperature.

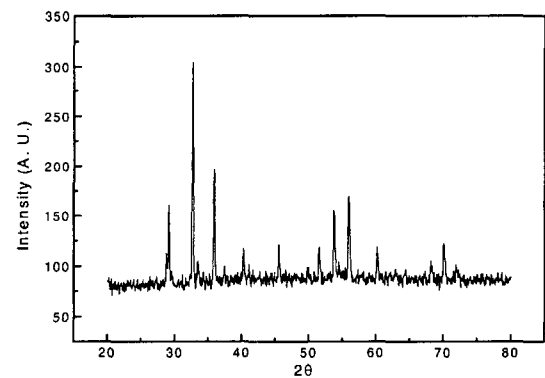


Fig. 2. X-ray diffraction patterns of YIG ferrites,  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$  sintered at 1350°C.

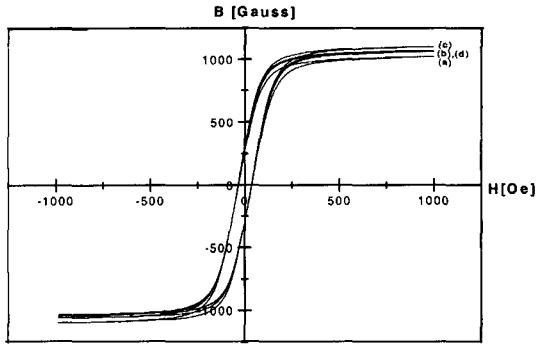


Fig. 3. Hysteresis loop of  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$  sintered at.; (a)1300°C, (b)1330°C, (c)1350°C, and (d)1370°C.

패턴 결과를 나타내었으며 전형적인 YIG의 X-선 회절 패턴과 일치함을 알 수 있었다. Fig. 3은 소결 온도에 따른  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$  시편의 B-H 특성을 나타낸 이력곡선이다. 또한 소결 온도에 따른 포화자화의 변화를 Fig. 4에 나타내었다. 밀도 측정값에서 볼 수 있듯이 소결밀도가 높아짐에 따라 치밀화가 진행되어 자구 벽 이동을 방해하고 내부 자기소거효과를 일으키는 기공 등의 감소로 높은 자기적 특성을 나타내었다<sup>7)</sup>. Fig. 4에서 보는 바와 같이 1350°C에서 소결한 ferrites가 가장 높은 포화자화 값( $4\pi M_s=1097$  gauss)을 나타내었다.

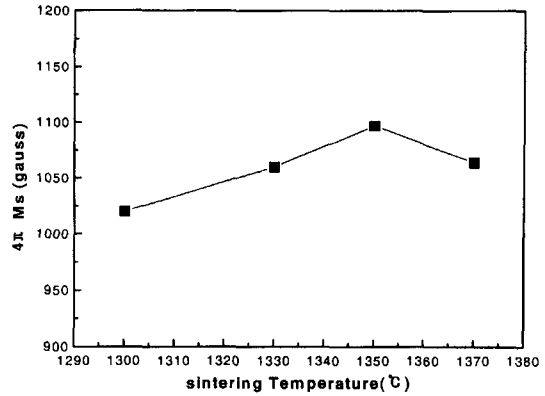


Fig. 4. Saturation magnetization of  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$  with sintering temperature.

소결 온도에 따른 미세구조를 SEM으로 관찰한 결과를 Fig. 5에 나타내었다. 소결 온도가 1300°C 인 소결체의 경우 입자 크기가 매우 작음을 알 수 있었으며, 입자성장이 불안정한 상태로 성장한 단계로서 일부 입계를 따라 기공이 존재하였다. 1330°C에서 소결한 시편의 경우 1300°C에서 소결한 시편에 비해 입자성장이 더 일어났음을 알 수 있다. 1350°C 및 1370°C 소결시편의 경우 입자성장이 더욱 활발히 진행되어 평균입경이 2~4 μm로 균일하였으며 치밀화가 잘 이루어졌음을 알 수 있다.

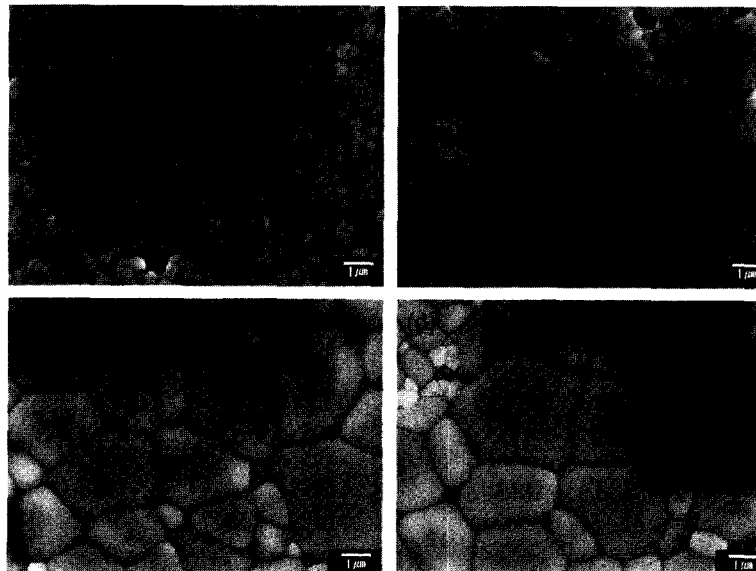


Fig. 5. SEM micrograph of  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$  sintered at.; (a) 1300°C, (b) 1330°C, (c) 1350°C and (d) 1370°C.

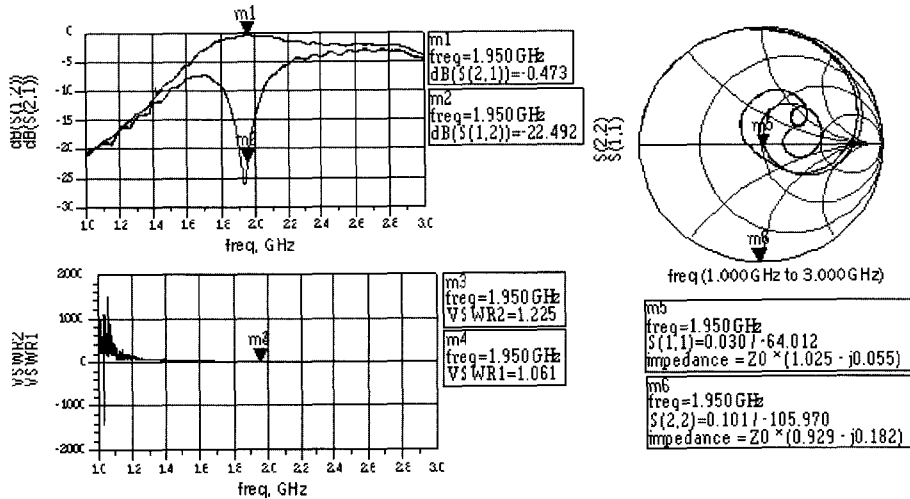


Fig. 6. Microwave Characteristics of YIG ferrites,  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$  sintered at 1350°C.

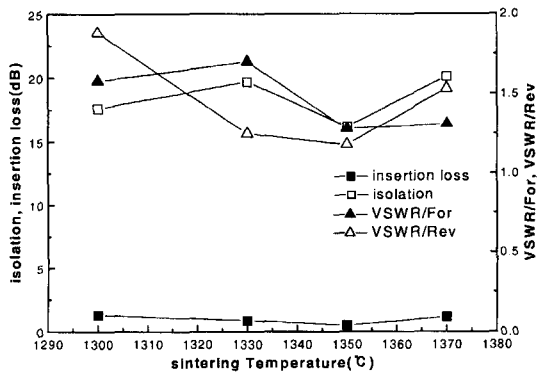


Fig. 7. Microwave characteristic of YIG-ferrites sintered at various temperature.

Fig. 6은 실제로 사용되고 있는 아이솔레이터와 동일한 조건으로 작동되도록 설계 제작된 테스트 지그와 Network Analyzer를 이용하여 마이크로파 특성을 측정 한 결과로서 1350°C로 소결한  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$  시편에 대한 측정 결과를 보여주고 있다. 또한 Fig. 7에는 Fig. 6와 같이 측정 한 결과로부터 소결온도에 따른 YIG 시편의 삽입손실, isolation, VSWR/For, VSWR/Rev 값을 나타내었다. 중심 주파수를 1950 MHz로 테스트한 결과 소결온도가 1350°C일 때 삽입손실과 isolation이 가장 낮은 값을 갖는 것을 알 수 있다.

Fig. 8에 FMR 실험을 통하여 얻은 자기 공명 반치폭( $\Delta H$ ) 측정 결과를 나타내었다. 1300°C 소결 시편의 경우 가장 높은 자기 공명 반치폭의 값

( $\Delta H=71$  Oe)을 나타내었고, 소결 밀도값이 가장 높게 나타난 1350°C 시편의 경우 가장 낮은 값( $\Delta H=64$  Oe)을 나타내었다. YIG 페라이트의 자기 공명 반치폭의 값은 소결 밀도값과 기공률 등에 영향을 받을 수 있었으며, 이는 이미 보고된 문헌 자료와 유사한 결과이다<sup>8,9)</sup>.

#### 4. 결 론

Ca, V, In, Al을 치환 원소로 하는  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$  조성의 YIG 페라이트를 소결온도에 따른 미세구조와 전자기적 특성을 측정 한 결과 다음과 같은 결과를 얻었다.

1.  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$  조성의 YIG 페라이트를 소결온도를 달리하여 제조한 결과, 1350°C에서 소결된 YIG 페라이트가 이론 밀도의 96.7%에 해당하는 가장 높은 밀도값과 1097 gauss의 포화자화( $4\pi M_s$ ) 값을 나타내었고, 64 Oe의 가장 낮은 자기공명반치폭( $\Delta H$ ) 값을 나타내었다.
2.  $Y_{2.1}Ca_{0.9}Fe_{4.4}V_{0.5}In_{0.05}Al_{0.05}O_{12}$  조성의 YIG 페라이트 소결시편에 대하여 고주파 특성을 Network Analyzer를 이용하여 측정 한 결과, 소결온도가 1350°C일 때 삽입손실은 0.5 dB을 나타내었으며, isolation은 16.17 dB을 나타내어 가장 우수한 마이크로파 특성을 나타내었다.

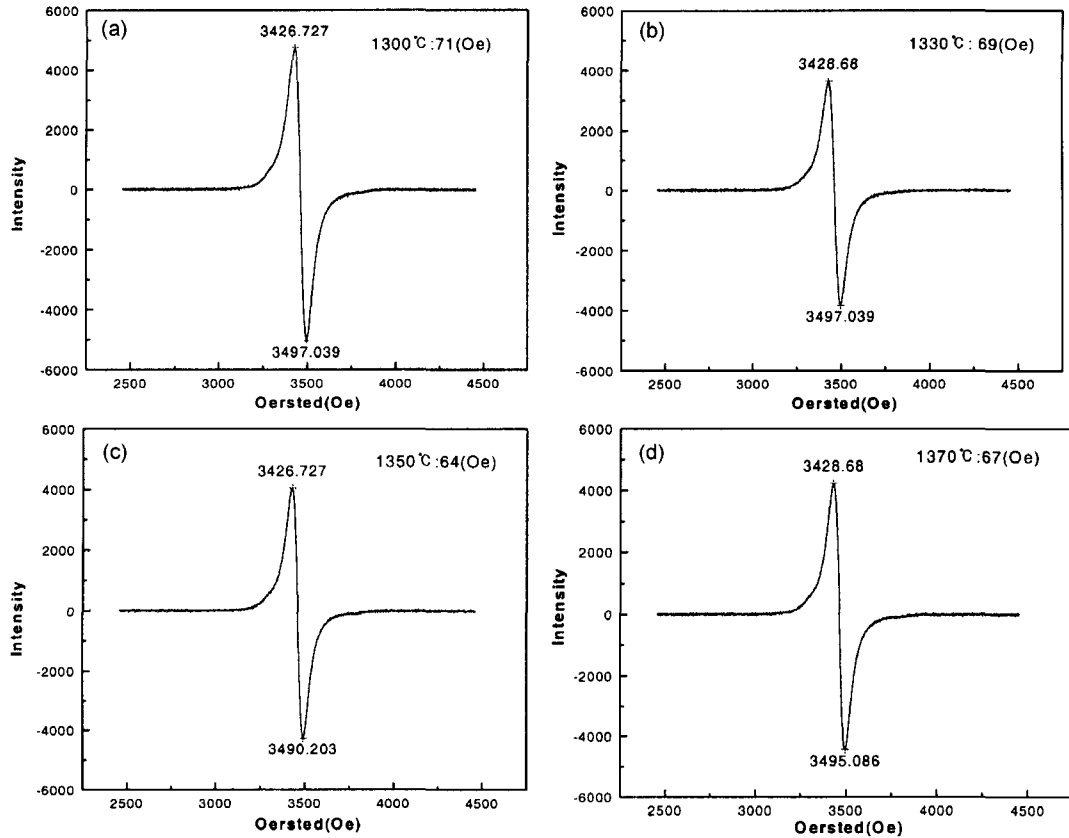


Fig. 8. Ferromagnetic resonance line widths of YIG ferrites sintered at various temperature; (a) 1300°C, (b) 1330°C, (c) 1350°C and (d) 1370°C.

### 감사의 글

본 연구는 전자부품연구원의 2001년도 전자부품기반기술개발사업 지원으로 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

### 참고문헌

1. C. J. Yang and S. W. Kim, "Magnetic properties of heteroepitaxial  $Y_3Fe_5O_{12}$  films grown by a pulsed laser ablation technique", *J. Mag.*, 5(2), 128(1995).
2. R. H Knerr, "An Annotated bibliography of microwave circulators and isolators", *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.*, 23(10), 818 (1975).
3. D. D Ursu and I.D. Bursuc, "Differential device for the determination of magnetic permeability or electric resistivity inside massive cylindrical samples", *IEEE Trans. Magn.*, 21(2), 1201 (1985).
4. J. Nicolas, "Microwave Ferrites", Chapter 4 of Ferro-

magnetic Materials, edited by E.P. Wohlfarth, 2, 257-280 (1986).

5. C. L. Hogan, "The ferromagnetic Faraday effect at microwave frequencies and its applications". *Bell Syst. Tech. J.*, 31, 1-31 (1952).
6. F. Bertaut, F. Forrat, "Structure des ferrites ferrimagnétiques des terres rares", *Compt. Rend.*, 242, 382 (1956).
7. 허은광, 강영조, 김정식, "초미세 분말합성에 의한 칩 인덕터용 (NiCuZn)-Ferrites의 저온소결 및 전자기적 특성 향상", *마이크로전자 및 패키징학회지*, 9(4), 52, (2002).
8. W. Y. Yoon, S. K. Yoo, S. H. Lee, J. N. Yoon, and J. S. Kim, "The study on the additives and magnetic property of YIG ferrites for circulator/isolator", *J. Kor. Ceram. Soc.*, 38(12), 1157 (2001).
9. M. Nukaga, S. Henmi, and N. Sato, "Relationship between magnetic properties of YIG ferrites and inter-modulation characteristic of microwave isolators", *J. Kor. Ceram. Soc.*, 6(3), 300-303 (2000).