

초미세 자성분말 합성을 위한 열처리 온도에 관한 연구

건국대학교 이재광*, 채광표
국민대학교 김영완, 김철성

Determination of annealing temperature for ultra-fine ferrite powders

Konkuk University Jae-Gwang Lee, Kwang Pyo Chae
Kookmin University Young Wan Kim, Chul Sung Kim

1. 서론

최근 들어서 초미세 분말의 합성에 관한 연구가 활발히 진행되고 있으며, 이러한 연구는 미세 분말의 자기적 성질이 거대 분말의 다른 자기적 특성을 지니므로 초미세 자성분말의 자기적 성질 연구와 산업적 응용에 중점을 두고 있다.^{1,2} 초미세 분말의 합성을 위하여 주로 습식분말 제조방법이 사용되고 있으며, 또한 자성분말의 입자성장은 열처리 온도 및 열처리 시간에 의하여 입자크기가 결정되므로 세라믹스 분말합성을 위한 정확한 열처리 온도의 결정이 매우 중요한 역할을 한다.^{1,3} 그러나, 자성분말의 경우, 열처리 온도가 너무 낮은 경우는 합성되는 입자의 크기가 작아서 자성체의 자기적 성질보다는 상자성체의 자기적 성질을 나타내므로, 원하는 자기적 특성을 얻을 수 없게 된다. 상대적으로 이들 합성분말이 자기적으로 균일한 성질을 얻기 위한 열처리 온도에 관한 연구가 이루어지지 않고 있다.^{4,5}

본 연구를 통하여 연자성 물질의 구조적 및 자기적으로 균일한 입자의 합성에 위한 저온 열처리에 관하여 연구를 하려 한다. 본 연구를 위하여 X-선 회절기 (XRD)와 투과전자현미경 (TEM)을 이용하여 열처리 온도에 따른 연자성 물질입자의 결정상태 및 분말의 크기에 관하여 연구하려하며, 또한 Mossbauer 분광기를 이용하여 열처리 온도에 따른 합성 분말의 자기적 상태 변화에 관하여 연구하려 한다.

2. 실험방법

Sol-gel 법을 이용한 $Ni_{63}Zn_{17}Cu_2Fe_2O_4$ 페라이트 분말의 합성에 관한 시료의 제작방법을 사용하여 제작하였으며, 분말을 여러 온도 ($200^{\circ}C$ - $850^{\circ}C$)에서 열처리한 후, 열처리 온도에 따른 XRD, 투과전자현미경 (TEM) 및 Mössbauer 분광기를 이용하여 성장 입자의 결정상태, 크기 및 자기적 상태에 관한 연구를 실시하였다.

3. 결과

$200^{\circ}C$ 에서 열처리한 $Ni_{63}Zn_{17}Cu_2Fe_2O_4$ 분말의 XRD 실험결과에 의하면, (222) 면의 peak을 제외한 모든 면에 의한 peak이 관측되고 있다. 이것은 $200^{\circ}C$ 전후의 열처리로 미세 $Ni_{63}Zn_{17}Cu_2Fe_2O_4$ 분말의 형성에 충분한 온도임을 나타내며, 상대적으로 넓은 주 peak의 폭으로부터 합성 분말의 입자크기가 매우 작음을 예측할 수 있다. $350^{\circ}C$ 이상에서 열처리한 분말의 XRD는 산화물을 이용하여 제작한 spinel 페라이트 분말의 XRD 모양과 일치함을 알 수 있다. 열처리 온도가 증가하므로 주 peak 들의 폭이 좁아지는 것이 관측되고 있으며, 이러한 실험결과는 열처리 온도의 증가함에 따라 페라이트 분말의 입자크기가 커짐에 인한 결과이다. 이상의 실험결과로부터 습식 제조방법과 $200^{\circ}C$ 이상의 열처리로 연자성 분말인 초미세 $Ni_{63}Zn_{17}Cu_2Fe_2O_4$ 페라이트 분말이 성장함을 확인할 수 있었다.

TEM을 이용하여 관측한 결과에 의하면 작은 페라이트 분말이 응결된 형태를 이르고 있음을

알 수 있다. 350 °C의 열처리한 입자의 크기는 8-30 nm의 광범위한 분포를 보이고 있으며, 평균 입자의 크기는 12 nm 전후임을 알 수 있었다. 전자현미경 사진으로부터 spinel 페라이트 입자 성장과 입자의 크기를 확인할 수 있었으며, XRD의 실험결과로 예측된 작은 페라이트 입자의 성장을 확인할 수 있었다.

실온에서 Mössbauer 분광기를 이용하여 열처리 온도에 따른 페라이트 분말의 Mössbauer 흡수 spectrum을 측정된 결과에 의하면, 200 °C에서 열처리한 $Ni_{63}Zn_{17}Cu_2Fe_2O_4$ 페라이트 분말의 Mössbauer 흡수 spectrum으로 중앙에 위치한 두 peak의 공명 흡수선만으로 구성되어 있다. 그러나, 250 °C에서 열처리한 연자성 페라이트 분말의 실험결과로써, 미량의 A와 B site에 의한 공명 흡수선과 중앙에 위치한 두 peak의 흡수선으로 구성되어 있음을 보이고 있다. 이것은 250 °C에서 열처리한 분말의 대부분이 상자성체와 같은 자기적 성질을 가지며, 일부만이 연자성체와 같은 자기적 특성을 보이고 있기 때문이다. 이러한 경향은 열처리 온도를 450 °C까지 증가하는 경우, 열처리한 자성 분말에서는 상자성에 의한 흡수선의 관측이 전혀 이루어지지 않고 있다. 자기적 성질의 변화는 열처리 온도에 따른 입자의 크기 변화에 따른 것으로 Mössbauer 분광 실험결과로 관측할 수 있었다. 또한, 550 °C 이상에서 열처리한 페라이트 분말의 Mössbauer 분광 실험결과는 전형적인 spinel 페라이트의 공명 흡수선과 같은 경향을 보이고 있다. 이상의 Mössbauer 분광 실험결과에 의하면 자기적으로 균일한 성질의 페라이트 분말의 합성을 위하여서는 450 °C 이상의 열처리 온도가 필요함을 알 수 있었다. 이것은 $Ni_{63}Zn_{17}Cu_2Fe_2O_4$ 페라이트 분말이 연자성체의 자기적 성질을 가지므로 자성체의 특성을 위하여서는 상대적으로 큰 체적이 요구되기 때문이다.

4. 결론

본 연구를 통하여 초미세 $Ni_{63}Zn_{17}Cu_2Fe_2O_4$ 페라이트 분말의 합성에 필요한 열처리 온도에 관하여 XRD, TEM 및 Mössbauer 분광기를 사용하여 연구하였다. XRD와 TEM의 실험결과에 의하면, 200 °C 혹은 250 °C의 열처리 온도로 연자성 분말의 합성을 위한 충분한 온도임을 알 수 있었다. 또한, TEM을 이용한 실험결과로부터 350°C의 열처리로 10 nm 이상의 분말이 형성됨을 알 수 있었다. 그러나, Mössbauer 분광기를 이용한 실험을 통하여 NiZnCu 페라이트가 자기적으로 균일한 특성을 위하여서는 상대적으로 큰 체적이 필요함을 알 수 있었다. 또한, Mössbauer 분광 실험결과로부터 열처리 온도가 증가함에 따라 페라이트 분말의 상자성 물질에 의한 자기적 특성이 감소함과 동시에 spinel 페라이트에 의한 연자성 특성이 증가하는 경향을 보인다. 이러한 자기적 성질의 변화는 열처리 온도가 높아감에 따른 합성입자의 크기가 증가하므로 페라이트 분말의 자기적 성질이 상자성체에서 연자성체로의 자기적 상변이가 일어남을 의미한다.

참고서적

1. R. Vanenzuela, *Magnetic ceramics*, (Cambridge Univ. Press, New York, 1994).
2. T. Kodama, Y. Kitayama, M. Tsuji and Y. Tamaura, *J. Magn. Soc. Jpn* 20, 305(1996).
3. 이재광, 박승일, 김철성, 서정철, 오영제, 응용물리, 10, 247(1997).
4. V. Blaskov, V. Petkov, V. Rusanov, Ll.M. Marinez, B. Marinez, J.S. Munoz and M. Mikhov, *J. Magn. Magn. Mater.* 162, 331(1996).
5. S. Morup, *Science and Technology of Nanostructured Magnetic Materials*, Ed. by G.C. Hadjipanayis and G.A. Prinz, (Plenum Press, New York, 1991), pp. 545~550.