

초음파 조사 공침법에 의한 Cu-Ni Ferrite 나노분말의 합성 및 특성

인하대학교 세라믹공학과
명지대학교 세라믹공학과

도상길*, 오재희
김은배, 이병하

Characteristics and Synthesis of Cu-Ni Ferrite Nanopowders by Coprecipitation Method with Ultrasound Irradiation

Department of Ceramic Engineering, Inha University S. G. Doh*, J. H. Oh
Department of Ceramic Engineering, Myongji University E. B. Kim, B. H. Lee

1. 서론

공침과 동시에 초음파를 조사하는 공정은 다성분계 페라이트 분말 및 박막을 제조하는데 있어 효과적이라고 보고되어 있다.[1][2] 공침중에 조사되는 초음파는 cavitation에 의해 국부적인 강한 에너지와 micro-jet을 발생시켜, 분말합성중의 물리·화학적 반응을 촉진시킨다고 알려져 있다.[3]

본 연구에서는 초음파 조사 공침법으로 Cu-Ni Ferrite ($\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$) 나노분말을 저온에서 합성하고, 그 자기적 성질과 마이크로파 대역에서의 전파흡수특성에 대해 검토하였다. 한편, 초음파 조사 공침법에 의하여 합성한 분말 특성과 동일 조건하에서 초음파를 조사하지 않고 합성한 분말의 특성을 비교 검토하였다.

2. 실험방법

$\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x=0, 0.25, 0.5, 0.75, 1$)를 제조하기 위해 출발원료로 고순도 시약급인 $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 를 사용하였고, NH_4OH 를 침전제로 사용하였다. 각각의 조성에 맞게 칭량한 금속염들을 용존 산소를 제거한 증류수에 용해시켜 금속혼합용액을 제조하였다. pH 12.5인 침전제 (NH_4OH)에 정량펌프를 이용하여 금속혼합용액을 일정속도로 주입하면서, 동시에 초음파(20 KHz, 750 W: VCX750)를 6시간동안 조사하여 $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$ 나노분말을 제조하였다. 또한 반응이 완결될 때까지 pH는 12.5로 유지시켰다. 반응이 완결된 후 침전물을 증류수와 에탄올로 수회 세척·여과를 반복한 후, 120°C 에서 12시간동안 건조하였다. 제조된 $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$ 나노분말의 미세구조 및 자기적 성질은 XRD, TEM, VSM을 통해 조사하였고, 분말의 비표면적은 BET로 관찰하였다. 전파흡수특성은 HP8722D network analyzer로 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

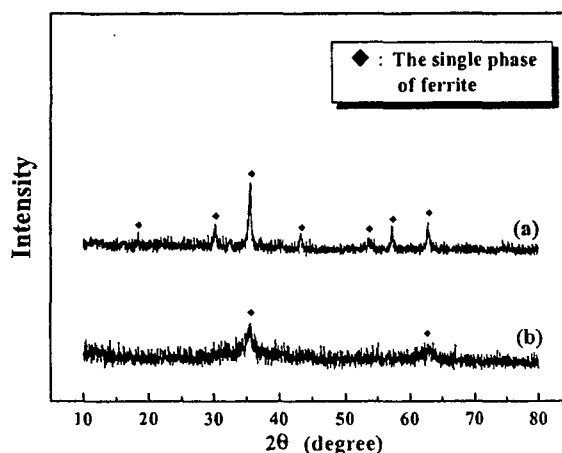


Fig. 1. XRD patterns of $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($x=0.5$) nanopowders ; (a) with ultrasound irradiation, (b) without ultrasound irradiation.

공침 과정에서 침전제로 사용되는 과량의 NH_4OH 는 Cu^{2+} 와 착물 $(\text{Cu}(\text{NH}_3)_4)^{2+}$ 를 생성하여 페라이트 단일상 합성을 방해한다는 사실을 확인하였다. 따라서 본 연구자는 착물을 생성하지 않는 조건을 확립하여 본 실험을 수행하였다.

Fig. 1은 $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ 나노분말의 X-선 회절 패턴을 보여준다. 초음파조사 공침으로 제조된 $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ 나노분말은 스피넬 단일상임을 확인하였다. 제조된 분말의 입자크기 및 모양은 20~30 nm의 구형 입자였고, 입자의 비표면적은 조성에 따라 290~335 m^2/g 을 나타내었다. 한편, 초음파를 조사하지 않고 공침한 분말은 스피넬 단일상을 형성하지 않았고, 침상입자였으며 자기적 특성도 초음파조사 공침에

비해 현저히 낮은 값을 나타내었다. VSM측정결과, 포화자화값은 $\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ 나노분말이 73.5 emu/g으로 가장 큰 값을 나타내었다. Fig. 2와 Fig. 3은 분말의 TEM사진과 자화곡선을 나타낸다.

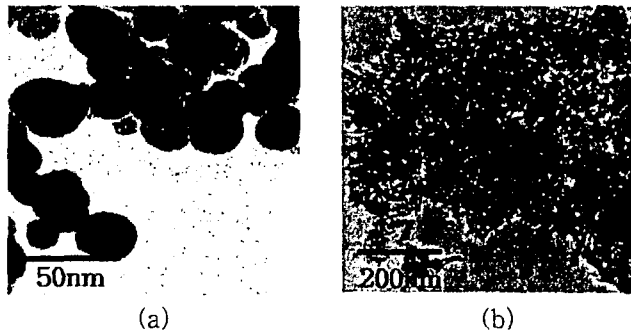


Fig. 2. TEM micrographs of $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$ nanopowders; (a) with ultrasound irradiation, (b) without ultrasound irradiation.

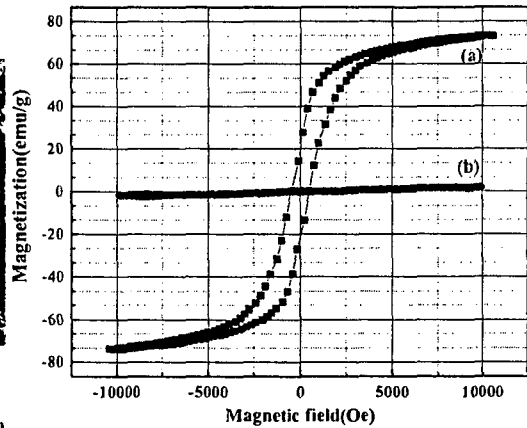


Fig. 3. The magnetization curve of $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$ nanopowders; (a) with ultrasound irradiation, (b) without ultrasound irradiation.

$\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$ 나노분말의 정합 주파수와 정합 두께는 Table 1.에 나타내었고, 주파수에 따른 반사손실은 Fig. 5에 나타내었다. Ni함량(x)이 증가함에 따라 정합 주파수는 감소하였으며, 정합두께는 증가하였다. -10 dB이상의 반사손실은 2.5~5.5 GHz의 마이크로파 영역에서 관찰되었고, 최대손실은 -25 dB로 x=0.5에서 나타났다.

Table 1. The matching frequency and thickness of $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$ nanopowders with the composition of x

substitutional content (mol%)	Matching thickness [mm]	Matching frequency [GHz]
CuFe_2O_4 (X=0)	6.44	5.05
$\text{Cu}_{0.75}\text{Ni}_{0.25}\text{Fe}_2\text{O}_4$ (X=0.25)	7.68	4.32
$\text{Cu}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ (X=0.5)	7.50	4.37
$\text{Cu}_{0.25}\text{Ni}_{0.75}\text{Fe}_2\text{O}_4$ (X=0.75)	7.66	4.00
NiFe_2O_4 (X=1)	7.90	4.00

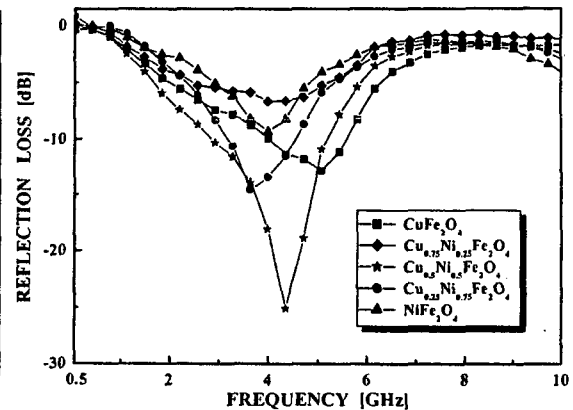


Fig. 5. Reflection loss of $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$ nanopowder prepared by ultrasound irradiation.

4. 결론

- 1) 착물을 형성하지 않는 조건하에서 초음파 조사 공침법에 의해 단일상의 $\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$ 나노분말을 합성하였고, 이 분말은 290~335 m²/g의 비표면적을 가진 20~30 nm크기의 구형 입자였다.
- 2) 포화자화값은 x=0.5의 조성에서 73.5 emu/g으로 최대값을 나타내었다.
- 3) 정합 주파수는 Ni의 함량이 증가함에 따라 감소하는 경향을 보이고, 정합 두께는 Ni의 함량이 증가함에 따라 증가하는 경향을 보였다. 최대 반사손실은 x=0.5의 조성에서 -25 dB로 마이크로파대역의 흡수재료로의 응용 가능성이 확인되었다.

5. 참고문헌

- [1] C. Y. Oh, J. H. Oh, T. K, IEEE Transaction on Magnetics, 38(5), pp.3018-3020(2002)
- [2] 신현창, 오재희, 이재춘, 최승철, J. of Kor. Ceramic Society, 37(2), pp.181-184(2000).
- [3] Timothy J. Mason, Advances in Sonochemistry, Jai press ltd., Greenwich(1991) pp.187-210.