

코발트계 극박형 비정질합금의 형성과 자기적 성질

노 태 환

안동대학교 공과대학 금속공학과
경북 안동시 송천동 388, 760-749

(1998년 8월 24일 받음, 1998년 10월 23일 최종수정본 받음)

두께 10 μm 이하의 코발트계 극박형 비정질합금의 진공중 용탕급냉방법에 의한 제조조건과 자기적 특성에 대해 연구되었다. 구리 냉각물의 회전 선속도를 55 m/s로 하였을 때, 0.05 kgf/cm^2 이하의 용탕분사압 조건에서 극박형 리본이 얻어졌다. 합금 두께는 용탕분사 가스압력의 감소에 비례하여 직선적으로 감소하였으며, 이와 동시에 폭의 감소도 함께 일어났다. 이는 극박형 합금을 만들기 위해 용탕분사압을 극단적으로 감소시키면 노즐구의 양단부에서 용융금속과 노즐 사이의 마찰효과가 크게 나타나 유효분사압이 현저히 감소하는 데에 기인하는 것으로 해석되었다. 저주파(1 kHz) 실효투자율은 대략 2차 함수의 관계로 리본 두께의 감소에 따라 저하되었다. 반면 보자력은 두께의 감소에 반비례하여 증가하였는데, 이들 현상은 거의 전적으로 표면효과의 증대에 의한 자벽이동의 억제에 그 원인이 있는 것으로 판단되었다. 그러나 고주파(1 MHz) 실효투자율은 두께의 감소에 따라 증가하였는데 이는 와전류 발생이 억제되어 자기장 방향으로의 자화회전이 보다 용이해지기 때문으로 생각되었으며, 결과적으로 극박화에 의해 MHz 대역에서 우수한 저손실 성질을 나타내는 자심 특성의 실현이 가능하였다.

I. 서 론

각종 전자기기에서 각 구성부품에 일정한 구동직류 전압을 공급하는 데는 일반적으로 반도체의 고속 ON-OFF 스위칭 기능을 이용하는 펄스폭 변조방식의 스위칭전원이 많이 사용된다. 그런데 이러한 스위칭전원의 보다 고도의 소형경량화, 고효율화 및 고신뢰성의 확보를 위해서 현재 전세계적으로 회로 시스템, 부품 재료 등 다방면에서 연구개발이 이루어지고 있으며, 그 중에서도 특히 전력제어, 출력전류의 평활화 및 스위칭 노이즈 억제 등의 목적을 위해 사용되는 연자성체의 고기능화는 중요한 연구 테마중의 하나가 되고 있다[1, 2].

종래 주로 사용되던 스위칭 전원용 코어재료로 규소강, 페라이트 및 퍼멀로이 등이 있으나, 최근에는 전원의 구동주파수의 증가와 함께 고주파 특성이 우수한 비정질 연자성 합금이 가포화리액터(saturable reactor), 노이즈 억제소자 등으로 다량 사용되기에 이르렀다[3-5]. 이 때 이들 비정질합금은 단롤법 등의 급속응고방식을 사용하여 제조되며 통상 15~25 μm 의 두께를 가지는 리본 형상을 하고 있다.

일반적으로 자심재료는 구동주파수가 증가하면 자심손실이 급격히 증가하는데, 고주파대역에서의 이런

자심손실의 억제는 자기부품의 소형화, 기기의 신뢰성 확보 그리고 소비에너지의 절감을 위해 대단히 중요한 관건이 된다. 현재 상용화되어 있는 비정질합금의 경우, 자심손실의 감소를 위한 합금 조성 및 열처리법에 관한 연구는 이미 충분히 진행되어 왔으며 따라서 더 이상의 특성향상을 기대하기 어려운 실정이다. 이와 같은 상황에서 Yagi 등[6-8]은 최근 코발트계 비정질합금의 자심손실을 더욱 줄여 MHz 대역의 주파수에 적용하기 위해 진공중 용탕급냉법으로 우수한 초고주파 특성을 지니는 두께 수 μm 대의 극박형 리본 합금을 제조하는 기술을 개발하였다. 여기서 진공중 급냉방법을 택한 이유는 종래의 대기중 급속응고법으로는 시료의 두께를 줄여도 표면효과의 증대 등으로 연자성의 고도화 및 자심손실의 저하를 기대할 수 없었기 때문이었다.

여러 문헌을 통하여 Yagi 등[6-9]은 극박형 비정질합금에 대한 대략적인 제조조건 및 자심손실의 두께 의존성 및 자장열처리 효과 등을 발표한 바 있으나 아직 이 합금의 형성 및 제반 자기적 성질에 대한 중요 사항들이 그리 많이 알려져 있지는 않은 상태에 있다. 본 논문에서는 코발트계 비정질합금의 가장 중요한 제조조건중의 하나인 용탕 분사압력과 시료 두께간의 상관성을 밝히고, 또 두께에 따른 여러 가지 연자기 특성의

변화를 조사하여 극박형 비정질 연자성 합금의 자기적 성질을 이해하고, 향후 우수한 초고주파용 실용 자심 재료를 얻을 수 있는 기초자료를 확보하고자 하였다.

II. 실험방법

극박형 비정질합금을 제조하는 장치는 종래의 일반적인 용탕급냉장치와 동일하나, 단지 리본 표면의 평활성을 확보하기 위해 용탕분사시 10^{-6} Torr 대의 진공 상태를 유지하는 것이 다르다.

비정질합금의 제조에 필요한 모합금은 진공 아크용해로에서 만들었으며, 사용한 모든 원료 금속의 순도는 99.5% 이상이었다. 극박형 $Co_{70}Fe_5Si_{15}B_{10}$ 비정질합금 시료는 단롤형 급속응고장치(Makabe RQM-T-50)를 사용하여 제조하였다. 냉각률은 구리로 제작하였으며, 롤 회전 선속도는 55 m/s로 설정하였고 용탕분사압은 $0.01\sim 0.1 \text{ kgf/cm}^2$ 의 범위내에서 변화시켰다. 또 용탕온도는 모든 시료가 1200°C 정도 되도록 거의 일정하게 조절하였으며, 용탕분사용 석영 노즐은 하부 출구가 장방형으로서 폭 0.2 mm×길이 4 mm의 크기로 레이저 가공되었다.

제조된 비정질합금은 토로이드 형태로 감은 뒤 석영관에 넣어 10^{-3} Torr의 진공중에서 20분간 $300\sim 500^\circ\text{C}$ 의 온도범위에서 열처리한 후 수냉하였으며, 본 논문에서는 그 중 최적온도에서의 열처리 결과를 제시하였다.

열처리한 시료는 DC recording fluxmeter(Toei TRF-5 AH 1)를 사용하여 포화자속밀도 및 잔류자속밀도 그리고 보자력을 측정하였으며, 임피던스 분석기(Hewlett Packard 4192 A)로 인덕턴스를 측정한 후 교류실효투자율을 구하였다. 자심손실은 B-H analyzer(Iwatsu SY-8216)를 사용하여 측정하였다.

III. 실험결과 및 고찰

3.1 극박형 합금의 형성

Fig. 1은 냉각롤 회전 선속도가 55 m/s 일 때, 용탕 분사압의 변화에 따른 리본 두께의 변화를 나타내고 있는데, 용탕 분사압력이 감소함에 따라 두께는 거의 직선적으로 감소하고 있다.

통상 비정질합금 리본의 분출압력에 따른 두께의 변화는 Bernoulli의 정리를 이용하여 이론적으로 예측 가능한데, 시료 형성시

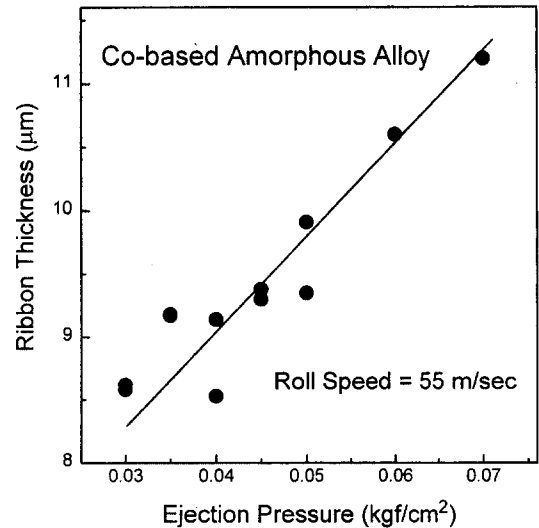


Fig. 1. Ribbon thickness as a function of ejection pressure in Co-based amorphous alloy at the roll speed of 55 m/s.

$$v_0 A_0 \rho_l = v_s W_s t \rho_s$$

의 질량보존관계가 유지되는 조건을 이용하면, 두께 t 는 다음과 같은 식으로 나타내어진다[10].

$$t = \frac{1}{v_s} \frac{\rho_l}{\rho_s} \frac{A_0}{W_s} \left[\frac{2(P_E - P_0)}{\rho_l} + 2gH \right]^{1/2}$$

여기서 v_0 는 노즐구에서의 용탕유속을 그리고 v_s 는 롤 회전 선속도를 가리키며, A_0 와 W_s 는 각각 노즐구의 단면적과 제조된 시료의 폭이다. 그리고 ρ_l 과 ρ_s 는 각각 용탕과 응고금속 시료의 밀도이며, P_0 와 P_E 는 노즐구에서의 측방향으로의 용탕압력과 용탕에 가해지는 가스압력이고, H 와 g 는 각각 용탕의 높이와 중력가속도를 가리킨다.

이 식에 의하면, 단롤법에 의해 제조되는 리본의 두께는 롤회전 선속도 등 다른 조건이 변하지 않을 경우 대략 용탕 분사압 P_E 의 제곱근에 비례하게 된다. 그러나 지금 Fig. 1의 결과는 이와 같은 이론적 예측과 일치하지 않고, 거의 직선적 비례관계를 보인다.

Fig. 2에는 용탕 분사압에 따른 시료의 폭의 변화를 나타내고 있다. 노즐구의 길이가 4 mm이므로 충분한 분사압력이 가해진다면 이 길이에 거의 상당하는 리본 폭이 얻어져야 되나, 실제 두께 8~9 μm의 극박형 리본이 얻어지는 0.04 kgf/cm^2 이하의 압력 조건에서는 시료 폭이 3.0~3.2 mm 정도까지 크게 감소해 버린다.

현재 이와 같이 용탕의 분사압이 아주 낮아질 경우 시료 폭이 급격히 감소하는 이유를 명확히 논할 수는 없으나, 노즐구에서의 노즐벽과 분출용탕과의 마찰이 노즐구의 위치에 따라 불균일한 것이 그 주된 이유가 아닌가 생각된다. 즉 장방형의 노즐구에서 양단부가 중심부보다 용탕에 작용하는 마찰이 클 것으로 보이며, 용탕을 노즐구로부터 밀어내는 가스 분사압력이 클 경우에는 이러한 미소한 마찰력의 불균일이 나타나지 않고 노즐구 전체에 걸쳐 거의 균일하게 용탕이 유출된다. 그러나 극박형 시료를 만들기 위해 극단적으로 가압력을 낮추면 노즐구 양 끝부분에서 이러한 마찰력의 효과가 현저해져서 유효분사압의 저하정도가 상대적으로 커짐에 따라 시료폭의 감소가 일어나고, 결국은 이런 유효분사압의 변화로 인해 Fig. 1에서와 같이 시료두께 t 가 $P_e^{1/2}$ 에 비례하지 않는 결과가 얻어진 것으로 믿어진다. 한편 노즐내 위치에 따른 온도변화에 의해 용탕의 점성변화가 생겨나는 효과도 무시할 수 없을 것으로 사료된다.

통상의 두께를 가지는 코발트계 비정질합금 리본을 제조하는데 대략 0.2~0.3 kgf/cm² 정도의 분사압이 필요한 사실을 생각하면, Fig. 1에서 8~9 μm 정도되는 두께의 합금을 얻기 위해서는 0.03 kgf/cm² 가량의 분사압이 가해져야 함을 나타내고 있어 극박형 합금을 제조하는데 상대적으로 대단히 낮은 분사압이 필요함을 알 수 있다.

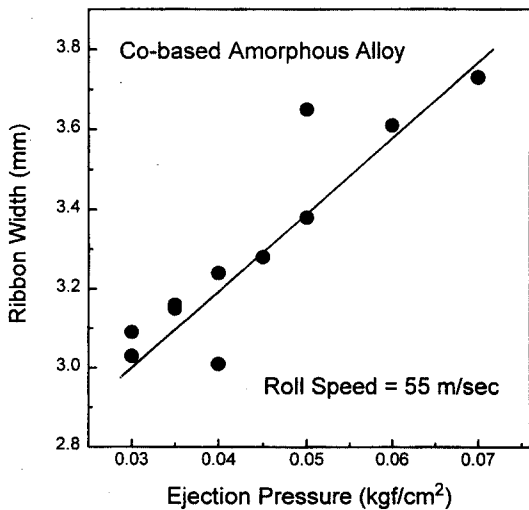


Fig. 2. Ribbon width as a function of ejection pressure in Co-based amorphous alloy at the roll speed of 55 m/s.

3.2 극박형 합금의 자기적 성질

Fig. 3은 저주파(1 kHz)에서 측정된 실효투자율의 리본 두께 의존성을 나타내고 있는데, 시료두께가 감소함에 따라 실효투자율이 크게 감소하고 있음을 보여주고 있으며 그 곡선의 모양은 대략 두께의 이차함수의 곡선을 그린다. 일반적으로 저주파영역에서의 금속 연자성체의 투자율은 자벽이동의 용이성에 크게 의존하는 바, 자성체의 두께가 감소하면 연자성에 대한 표면효과가 증대하여 결국 자벽이동이 어렵게 되고 투자율은 저하된다.

만약 연자성 리본 합금이 충분히 낮은 주파수에서 와전류가 무시된다고 가정하고 자벽이동에 의해서만 자화될 경우, 그 재료의 자화율(χ)는 다음과 같은 관계식으로 표현된다[11].

$$\chi = \frac{M_0^2 t^2}{18L (AK_u)^{1/2}}$$

여기서 L 은 자벽간 거리, M_0 는 포화자화, t 는 리본 합금의 두께, A 는 자기결합상수 그리고 K_u 는 일축자기이방성상수이다. 이 식에 의하면 자화율(또는 투자율)은 t^2 에 비례하여 커지며 반대로 두께가 감소하면 그 자수에 비례하여 작아질 것이 예상되는 바, Fig. 3의 결과는 이러한 이론식을 대체적으로 잘 따르고 있는 것으로 보인다.

그러나 주자화모드가 자벽이동에서 스핀회전자화로 바뀌는 고주파영역(여기서는 1 MHz)에서는 이러한 경

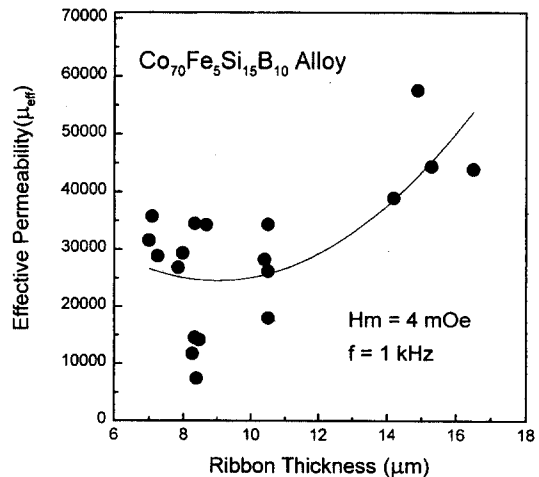


Fig. 3. Effective permeability at 1 kHz as a function of ribbon thickness in Co₇₀Fe₅Si₁₅B₁₀ amorphous alloy annealed at 450 °C (applied magnetic field ; 4 mOe).

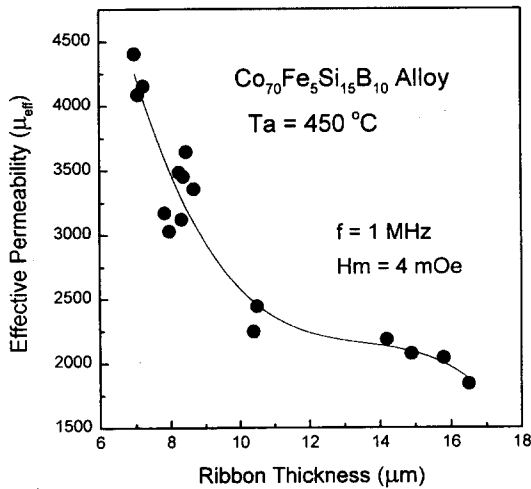


Fig. 4. Effective permeability at 1 MHz as a function of ribbon thickness in $\text{Co}_{70}\text{Fe}_5\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ amorphous alloy annealed at 450°C .

향이 완전히 바뀌어진다. 즉 Fig. 4에 나타낸 바와 같이 실효투자율이 리본 두께가 감소할수록 증가하여 두께 $7\ \mu\text{m}$ 정도가 되면 약 4,500의 큰 투자율을 나타낸다. 이와 같이 두께가 얇아질수록 투자율이 상승하는 이유는 고주파 자기장내에서 와전류의 발생이 억제되어 자기장 방향으로의 자화회전이 용이해지기 때문이다. Fig. 5는 두께가 각각 $16\ \mu\text{m}$ 과 $7\ \mu\text{m}$ 인 $\text{Co}_{70}\text{Fe}_5\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ 비정질 합금의 실효투자율의 주파수의존성을 나타내고 있다. 통상의 두께($16\ \mu\text{m}$)를 가지는 합금에 비해 극

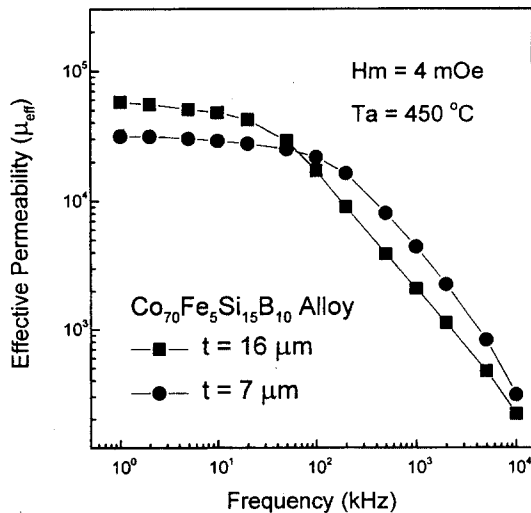


Fig. 5. Frequency dependence of effective permeability for $\text{Co}_{70}\text{Fe}_5\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ amorphous alloys with the thickness of 16 and $7\ \mu\text{m}$.

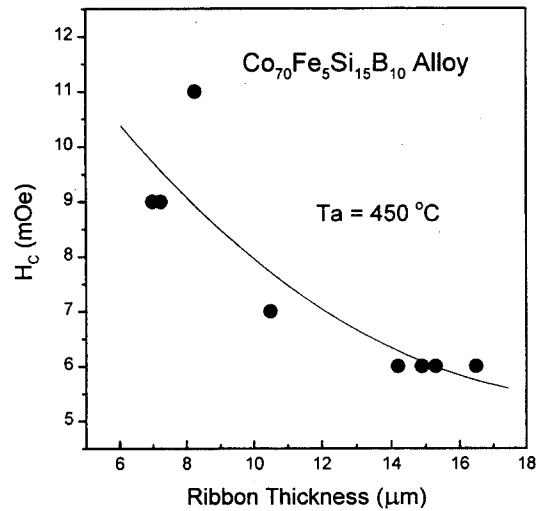


Fig. 6. Coercive force as a function of ribbon thickness in $\text{Co}_{70}\text{Fe}_5\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ amorphous alloy annealed at 450°C .

박형 합금은 고주파 자기장내에서의 와전류 감소로 인해 수십 kHz로부터 MHz 대역의 높은 주파수에 이르기까지 실효투자율이 큰 값을 가짐을 보이고 있다.

Fig. 6은 시료 두께에 따른 보자력의 변화를 나타내고 있다. $16\ \mu\text{m}$ 의 두께에서는 대략 6 mOe 정도의 보자력을 가지나, 두께가 $7\ \mu\text{m}$ 으로 감소하면 약 10 mOe 전후의 크기로 반비례 함수의 형상을 그리며 보자력이 증가한다.

Gyorgy는 잘 열처리된 비정질 연자성체에서 자벽이 표면에서만 고착된다는 가정하에 180° 자벽에 의해 반평행한 자구로 분할되어 있는 경우 보자력의 크기는 다음과 같이 나타내어진다고 하였다[11].

$$H_c = \frac{4(AK_u)^{1/2}S}{M_0 t}$$

여기서 t 는 시료 두께, S 는 시료의 표면요철 정도에 의해 정해지는 상수(1 이하) 그리고 A 는 자기결합상수, K_u 는 일축자기이방성상수, M_0 는 포화자화이다. 이 식에 의하면 보자력은 두께의 크기에 거의 반비례하여 감소하는데, 이는 결국 두께가 얇아지면 전체 단면적에 대한 표면요철의 효과가 커지기 때문인 바, Fig. 6의 결과는 이러한 관계를 나타내고 있는 것으로 생각된다.

그 외 보자력에 영향을 미치는 다른 인자를 보면, 우선 S 는 동일한 냉각률과 노즐을 사용하고 같은 정도의 진공도에서 시료를 제조하므로 거의 같다고 볼 수 있다. 또 일축자기이방성 K_u 의 변화는 자기이력곡선상의

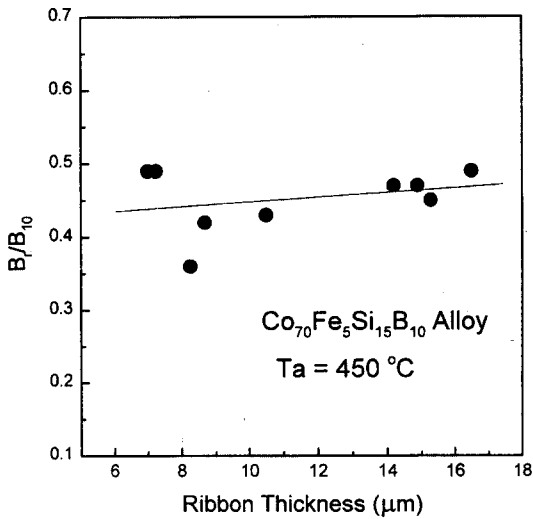


Fig. 7. Remanence ratio as a function of ribbon thickness in $\text{Co}_{70}\text{Fe}_5\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ amorphous alloy annealed at 450°C .

각형비의 두께의존성을 조사하므로써 대략적인 평가가 가능하므로, 그 값을 조사하여 Fig. 7에 나타내었다. 전반적으로 두께가 감소하면서 약간 각형비가 감소하는 듯한 경향을 보이는는 하나 두께가 $7\mu\text{m}$ 이 되면 다시 통상의 두께를 가진 시료의 각형비로 되돌아가 Fig. 7의 각형비의 두께에 따른 작은 변화는 본질적인 변화가 아닌 것으로 보인다. 그리고 그 값도 0.5 정도로서 비정질 리본 합금의 자기구조가 거의 무방향성일 때의 이론치에 가깝다. 결국 극박형 비정질 리본 합금에서의 보자력의 증가는 상기한 바와 같이 거의 두께감소에 따른 표면효과의 증대에 그 원인이 있는 것으로 생각할 수 있다.

Fig. 8에는 극박형 리본 합금의 자심손실이 주파수에 따라 변화하는 거동을 보여주고 있으며, 비교를 위해 통상의 두께를 가진 리본 합금의 손실값도 함께 나타내었다.

이 그림에 의하면, 100kHz 이상의 고주파 대역에서는 극박형 합금이 현저히 낮은 자심손실을 나타내나, 수십 kHz 이하의 낮은 주파수대역에서는 오히려 극박형 합금이 더 큰 자심손실을 나타내고 있다. Lim 등 [12]은 코발트계 비정질 연자성 합금의 자화특성의 주파수 의존성을 조사한 결과 수백 kHz 대역에서는 자화회전이 그리고 50kHz 이하의 저주파영역에서는 자력이동이 주된 자화기구를 밝힌 바 있다. 즉 저주파대역에서 극박형 합금이 보다 큰 자심손실을 나타내는

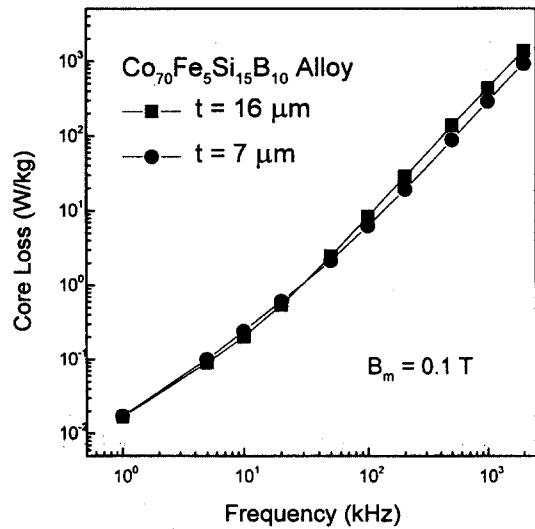


Fig. 8. Frequency dependence of core loss for $\text{Co}_{70}\text{Fe}_5\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$ amorphous alloys with the thickness of $16\mu\text{m}$ and $7\mu\text{m}$ (induced magnetic flux density; 0.1T).

것은, 두께감소에 따라 자력이동이 더 어려워지고 이에 따라 자기이력손실이 증가하기 때문으로 생각되며, Fig. 3 과 6 에서 극박형 합금이 되면 저주파(1kHz)에서의 실효투자율의 감소와 보자력의 증가가 나타나는 현상이 이를 반증하고 있다. 반면 백 kHz 이상의 고주파 대역에서는 Fig. 4와 5 에서 높은 실효투자율이 보여주듯이 스핀회전이 주된 자화기구가 되어 와전류손실이 효과적으로 억제되고 있어 전체 자심손실이 감소한 것으로 판단된다.

IV. 결 론

두께 $10\mu\text{m}$ 이하의 코발트계 극박형 비정질합금의 진공중 용탕급냉방법에 의한 제조와 자기적 특성에 대한 연구 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 냉각률 회전 선속도를 55m/s 로 하였을 때, 0.05kgf/cm^2 이하의 용탕분사압에서 극박형 리본 합금이 얻어졌다. 이 때 분사압력의 감소에 따른 리본 두께의 감소는 거의 직선적 비례관계를 보였으며, Bernoulli의 정리에 기초한 $v \propto P_e^{1/2}$ 의 이론관계를 따르지 않았다. 이는 극박형 합금을 만들기 위해 용탕분사압을 극단적으로 감소시키면 노즐구의 양단부에서 용융금속과 노즐벽 사이에 존재하는 마찰 효과가 보다 크게 나타나 유효분사압이 현저히 감소하는 데에 기인하는 것으로

해석되었다.

2. 저주파(1 kHz) 실효투자율은 거의 2차 함수의 관계로 리본 두께의 감소에 따라 저하되었다. 반면 보자력은 두께의 감소에 반비례하여 증가하였는데, 이들은 거의 전적으로 표면효과와 증대에 의한 자벽이동의 억제에 그 원인이 있는 것으로 판단되었다. 그러나 고주파(1 MHz) 실효투자율은 두께의 감소에 따라 증가하였는바 이는 와전류 발생이 억제되어 자기장 방향으로의 자화회전이 보다 용이해진 것 때문으로 생각되었으며, 결과적으로 극박화에 의해 MHz 대역에서 우수한 저손실 성질을 나타내는 자심 특성의 실현이 가능하였다.

참 고 문 헌

[1] 原田耕介, 日本應用磁氣學會誌 **9**, 341(1985).

[2] K. Harada and H. Sakamoto, *Nikkei Electronics* **480**, 219(1989).

[3] C. H. Smith, *Rapidly Solidified Alloys*, Marcel Dekker, New York (1993) pp. 617-663.

[4] O. Arakawa, Y. Hirose and T. Onodera, *Toshiba Review* **158**, 33(1986).

[5] 竹浪嗣人, *機械設計* **33**, 89(1989).

[6] M. Yagi and T. Sawa, *IEEE Trans. Mag.* **MAG-26**, 1409(1990).

[7] M. Yagi, T. Sato, Y. Sasaki, T. Sawa and K. Inomata, *J. Appl. Phys.* **64**, 6050(1988).

[8] 八木正昭, *日本金屬學會會報* **31**, 991(1992).

[9] 澤孝雄, 八木正昭, *日本國 公開特許公報(A)* 平3-90547(1991).

[10] 高田新司, 大井 澈, *日本金屬學會誌* **44**, 113(1980).

[11] E. M. Gyorgy, *Metallic Glasses*, American Society for Metals, Metals Park (1978) pp. 275-303.

[12] S. H. Lim, Y. S. Choi, T. H. Noh and I. K. Kang, *J. Appl. Phys.* **75**, 6937(1994).

Fabrication and Magnetic Properties of Ultrathin Co-based Amorphous Alloy

Tae-Hwan Noh

Department of Metallurgical Engineering, Andong National University, Andong 760-749, Korea

(Received 24 August 1998, in final form 23 October 1998)

Fabrication condition and magnetic properties of ultrathin Co-based amorphous alloy have been investigated. When the ejection gas pressure was lower than 0.05 kgf/cm² at the roll speed of 55 m/s, ultrathin ribbons with the thickness less than 10 μm were successfully obtained. The ribbon thickness decreased linearly with the decrease in ejection pressure. Moreover the significant decrease in ribbon width was accompanied with the decrease of thickness in the range of ejection pressure to form an ultrathin ribbon. This behavior was attributed to the decrease of effective ejection pressure in the both end-sides of rectangular nozzle due to the larger friction between molten metal and nozzle wall. The effective permeability at low frequency (1 kHz) decreased largely with the decrease in ribbon thickness, while the coercive force increased with the thickness decrease. It was considered that these behaviors were due to the enhancement of surface effect leading to the suppression of wall motion. However effective permeability at high frequency (1 MHz) increased with the decrease in ribbon thickness, and this was ascribed to the easier magnetization rotation owing to the reduction of eddy current.