

FeCuNbSiB 나노결정립 합금 분말코아의 자기적 특성에 미치는 절연체의 영향

노태환* · 최혁열

안동대학교 공과대학 신소재공학부, 경북 안동시 송천동 388, 760-749

(2004년 8월 24일 받음, 2004년 10월 13일 최종수정본 받음)

250~850 μm 크기의 FeCuNbSiB 나노결정립 합금분말에 3 wt%의 전기절연체(glass frits, 활석 또는 폴리아미드 분말)를 혼합한 뒤 압축성형하여 분말코아를 만들었을 때, 절연물질의 종류에 따른 자기적 특성의 변화를 조사하고 그 결과를 비교하였다. 세라믹 물질인 glass frits와 활석은 폴리아미드에 비해 수백 kHz 이하의 주파수 범위에서 높은 투자율을 나타내나 1 MHz 이상의 주파수에서는 투자율이 빠르게 낮아지는 거동을 보였다. 자심손실은 glass frits와 활석을 첨가한 자심 쪽이 더 크며, 품질계수는 폴리아미드를 첨가한 자심보다 더 낮은 주파수에서 피크를 나타내고 그 값도 더 작았다. 반면 폴리아미드로 절연처리한 자심의 경우 수 MHz에 이르기까지 투자율의 저하가 거의 나타나지 않았으며, 더 우수한 자심손실 및 품질계수 특성을 보여 주었다. 그리고 직류중첩특성 또한 폴리아미드를 첨가한 자심이 100 Oe 이상의 큰 자장에 이르기까지 더 우수하였다. 폴리아미드를 절연체로 사용한 경우 그 밀도가 낮음으로 인해 결국 더 많은 제적비로 혼합되므로 자성 입자 사이의 전기적 절연을 보다 더 충분히 해주고 있는 것으로 판단되었으며, 세라믹 물질을 절연체로 사용했을 때와의 이상과 같은 자기적 특성의 차이는 이 사실에 주로 의존하고 있는 것으로 평가되었다.

주제어 : 나노결정립 합금, 분말코아, 절연체, 자기적 특성, 직류 바이어스 특성

I. 서 론

과거 전화통신선에 인덕턴스를 보충해 줌으로써 신호주파수의 변화를 방지하는 통신용 장하코일(loading coil)로서 개발된 분말코아(compressed powder cores)는, 최근 반도체 소자의 발전과 함께 전자기기의 소형화 고성능화를 실현시키는데 소요되는 고기능성 자심, 즉 스위칭 전원의 노이즈 필터, 평활용 쇼크 코일, 인버터 방식의 가전제품에 있는 PFC(power factor correction) 회로부의 리액터 등으로 많이 사용되고 있다.

통상 연자성 금속재료 분말에 전기절연체를 혼합한 다음 압축·성형하여 제조되는 분말코아는 기본적으로 자화곡선의 선형성(직선성)이 높고, 넓은 범위에 걸쳐 다양한 크기의 외부 바이어스 자장을 인가하여도 일정한 투자율을 보여주며, 자성입자가 전기적으로 상호 절연되어 고주파 영역에서 낮은 와전류손실이 얻어지는 특징을 나타내는 바, 이들 분말코아의 소재에 필요한 주요 특성으로는 실효투자율이 높고 고주파손실이 적으면서 포화자속밀도가 크고(이는 임의의 직류 바이어스 자장에 대해 큰 불포화 영역을 제공함) 동작신호 자장에 대해 증분투자율이 커야 한다는 것 등이 있다.

현재 널리 사용되고 있는 분말코아용 재료로는 카보닐 철분, Ni-Fe계 퍼멀로이 합금 그리고 Fe-Si-Al계 센더스트 합금 등이 있는데, 그 중 카보닐 철분은 투자율이 낮고 자심손실

이 크며, Mo이 첨가된 퍼멀로이 합금 분말(molybdenum permalloy powder(MPP), 대개 81%Ni-17%Fe-2%Mo)의 경우 자심손실은 적으나 상대적으로 포화자속밀도가 작아 직류 바이어스 안정성이 충분하지 못하다. 또 센더스트 합금은 비교적 큰 포화자속밀도를 가져 직류 바이어스 특성은 괜찮으나 자심손실이 퍼멀로이보다 크고 투자율이 좀 낮은 특징을 지닌다.

그런데 최근 이들 소재로 만든 분말코아보다 더 기능성이 우수한 것을 개발하기 위해 다양한 신소재의 사용 가능성이 모색되고 있으며, 그 중 대표적인 것으로 철계 나노결정립 합금을 들 수 있다[1, 2].

이 철계 나노결정립 합금은 일반적으로 급속응고법을 사용하여 제조한 FeCuNbSiB계 비정질 합금 리본을 열처리하여 만들며, 미세조직적으로는 10 nm 정도의 크기를 가진 α -Fe(Si)상의 결정립과 Nb, B 등이 농축된 비정질 입계상으로 구성되어 있다. 이 합금은 대단히 작은 결정립 때문에 실효적인 결정자기방성이 극소화되어 있고 자기변형도 0에 가까운 값을 보이며, 전기저항이 큰 입계 영역이 높은 부피분율로 존재하여 비정질 합금과 유사한 고 전기비저항 특성을 가진다. 따라서 이 합금은 상당히 큰 포화자속밀도를 비롯하여 고 투자율과 저 보자력의 우수한 연자성 뿐만 아니라 아주 낮은 고주파 자심손실을 나타낸다[3, 4].

저자 등은 최근 이와 같은 특성의 철계 나노결정립 합금을 이용하여 분말코아(압분자심)를 제조하고 그 특성을 평가하는

*Tel: (054) 820-5753, E-mail: thnoh@andong.ac.kr

연구를 체계적으로 수행하고 있으며, 그 결과 자성 분말의 열처리 조건, 제조공정, 합금조성 등과 자기적 특성의 상관관계가 각각도로 파악되어 왔다[5-8].

본 논문은 이와 같은 연구의 연장선상에서 자성분말의 압축성형시 입자간 전기적 절연을 위해 첨가되는 절연체의 종류를 달리할 때 자기적 특성이 어떻게 변화하는가에 대하여 조사한 결과를 제시하고 있다. 지금까지 분말코어를 제조할 때 혼합되는 절연체의 종류에는 다양한 세라믹 물질과 고분자 물질 등이 존재하는 것으로 보고되어 있으나[9-11], 대개 이와 관련된 연구결과는 노하우의 영역으로 포함되어 구체적으로 그 데이터가 공표되지 않는 것이 일반적이었으며 따라서 그에 관한 학술적인 분석 및 평가의 예도 별로 눈에 띄지 않고 있는 실정이다.

본 연구에서는 FeCuNbSiB 나노결정립 합금 분말에 그 물리적, 화학적 성질이 다른 복합 유리원료 물질(glass frits)과 활석(talc) 그리고 폴리아미드(polyamide) 분말을 각각 첨가 혼합하여 분말코어를 만든 다음 그들의 자기적 특성 및 미세구조를 조사하여 자성특성에 미치는 절연물질의 영향에 대하여 비교·검토하였다.

III. 실험방법

두께 약 20 μm의 Fe_{73.5}Cu₁Nb₃Si_{15.5}B₇(at%) 비정질 합금(VITROPERM[®])을 석영판 내에 장입하고 550°C에서 1 시간 동안 진공 열처리하여 결정화시킨 다음, 상온의 질소 가스를 주입한 후 물속에서 냉각시켰다. 열처리된 합금은 유성형 볼 밀(Fritsch P-6)을 사용하여 Ar 가스 분위기에서 5분간 150 rpm의 회전속도로 분쇄하였으며, 밀링이 완료된 분말은 체(sieve)를 사용하여 여러 입도별로 분급하였다. 이 때 분쇄시 볼/시료의 중량비는 12:1로 하였다.

분급된 분말 중 250~850 μm의 크기를 가지는 합금에 각각 glass frits(GF; SiO₂·B₂O₃·PbO), 활석, 폴리아미드 등의 전기 절연 분말 물질을 3 wt% 혼합·첨가하고 15 ton/cm²의 압력으로 냉간 성형하여 외경 12.6 mm, 내경 7.2 mm, 높이 약 3.5 mm의 토로이드형 자심을 제작하였다. 그 후 이 시료들을 무유도 권선로에 장입한 후 고순도 질소분위기에서 400°C로 1 시간 동안 열처리하였다.

제조된 분말코어의 실효투자율과 품질계수 및 직류 바이어스 특성 등은 LCR 미터(Hioki 3531 Z Hitester, HP 4284A)로 측정하였으며, B-H analyzer(Iwatsu SY-8216)를 사용하여 자심손실 특성을 평가하였다. 이 때 투자율은 10 mOe의 자장을 인가하였고 자심손실 특성은 0.1 T의 자기유도 조건에서 측정하였다. 또 주사전자현미경(Jeol JSM-6300)을 사용하여 분말코어의 미세 단면구조를 관찰하였다.

III. 실험 결과 및 고찰

Fig. 1은 각 분말코어의 주파수에 따른 실효투자율의 변화를 보여주고 있다. 이 그림에서, 세라믹 물질인 GF와 활석의 경우 각각 100 kHz에서 120 전후의 상대적으로 큰 투자율을 나타내는 반면 폴리아미드는 100 이하의 낮은 값을 보여주고 있다. 또 GF와 활석의 경우 서로 비슷한 주파수 의존성을 나타내어 300-400 kHz 이상의 주파수에서 투자율이 현저히 감소해 가는 모습을 보여주나 유기물질인 폴리아미드의 경우는 MHz 영역에 이르기까지 투자율의 저하가 매우 적은 현상을 나타내고 있다.

GF나 활석의 경우와 비교하여 폴리아미드를 첨가한 경우 이와 같이 투자율이 낮은 것은, 폴리아미드가 세라믹 물질에 비하여 비중이 상당히 낮으므로 동일한 무게비의 양을 첨가 하더라도 체적비율로 보면 폴리아미드가 더 많은 양이 첨가 되는 것이므로 분말코어 내 자성물질의 분율이 낮아지는 것에 그 주된 원인이 있는 것으로 생각된다. 즉 활석 등 세라믹 물질의 경우 비중이 대개 2.6~2.8 정도인데 반하여[12] 폴리아미드의 경우는 밀도가 1.1~1.2 정도에 지나지 않으므로[13], 같은 무게 비율로 첨가된다면 부피에 있어서는 결국 후자 쪽이 두 배 이상 들어가는 것이 된다.

Fig. 1에서 나타난 폴리아미드 첨가 자심의 투자율 거동이 주로 폴리아미드의 높은 혼합 체적분율에 기인한다는 이상의 설명을 뒷받침하기 위해 폴리아미드의 혼합비율을 감소시켜 1 wt%가 첨가된 분말코어의 투자율 변화를 조사하였으며 이를 Fig. 2에 나타내었다. 이 그림에서 투자율의 주파수 의존성은 Fig. 1의 GF나 활석이 첨가된 자심의 투자율 곡선과 모양이 거의 일치하였으며 투자율의 값도 상당히 비슷해짐을

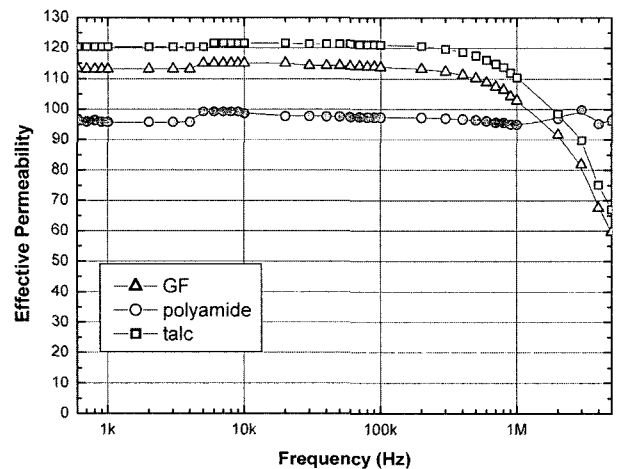


Fig. 1. Frequency dependence of effective permeability for nanocrystalline Fe_{73.5}Cu₁Nb₃Si_{15.5}B₇ alloy powder cores with 3 wt% glass frits, talc and polyamide.

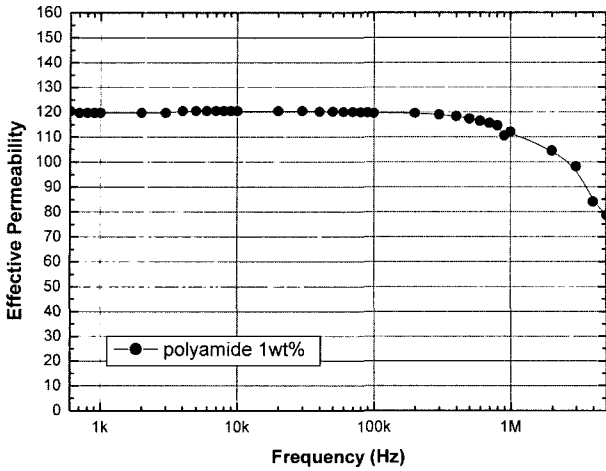


Fig. 2. Frequency dependence of effective permeability for nanocrystalline $Fe_{73.5}Cu_1Nb_3Si_{15.5}B_7$ alloy powder cores with 1 wt% polyamide.

볼 수 있어, 이러한 설명에 타당성이 있음을 확인시켜 주고 있다.

그리고 Fig. 1에서 폴리아미드로 절연처리한 경우 수 MHz 영역에서 공명현상이 일어날 때까지 투자율의 저하가 거의 없는 것은 자성입자간 전기적 절연이 잘 이루어져 있기 때문으로서 이는 폴리아미드의 높은 부피분율에 주로 기인하는 것으로 믿어지지만, 그 외 폴리아미드는 용점이 낮아(폴리아미드의 용융온도는 종류에 따라 다르나 220~260°C 정도임) 압축성형 후 400°C에서 열처리할 때 이것이 용해되어 자성분말 사이의 공간으로 보다 미세하게 침투하면서 절연성이 향상되는 효과도 있을 수 있을 것으로 생각된다.

Fig. 3은 절연물질이 다른 세 가지 분말코어의 주파수에 따른 자심손실의 변화를 보여주고 있다. 이 그림에서 세라믹 절연체를 사용하여 제조된 두 종류의 분말코어는 서로 비슷한 크기의 자심손실을 가지면서 상대적으로 폴리아미드에 비하여 큰 손실값을 나타내었다. 즉 폴리아미드를 혼합한 자심의 에너지손실은 전 주파수 범위에서 GF나 활석을 사용한 자심보다 낮으며, 50 kHz에서 약 270 mW/cm³의 작은 값을 가지고 있으나, GF 및 활석을 사용한 자심은 370 mW/cm³를 넘는 비교적 큰 자심손실을 보여주고 있다.

이와 같이 폴리아미드를 절연물질로 사용한 분말코어가 보다 낮은 자심손실을 나타내는 이유는 Fig. 1에서 설명한 바와 같이 GF나 활석의 경우에 비해 상당히 높은 체적비의 절연체량이 자심 속에 존재하고 있으므로 자성입자간 전기적 절연이 더 충분히 되어 있을 것으로 믿어지고 이에 따라 더 적은 와전류손실이 발생되기 때문으로 생각된다.

고주파 손실계수(loss factor) $\tan \delta$ 의 역수로 주어지는 품질계수(quality factor) Q의 주파수 의존성을 조사해 보면, Fig.

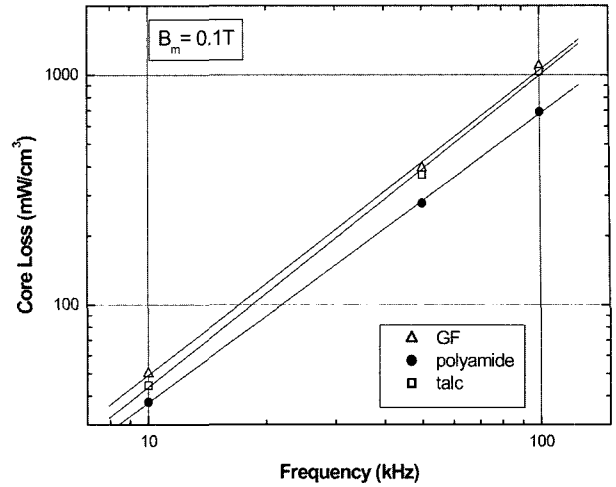


Fig. 3. Frequency dependence of core loss for nanocrystalline $Fe_{73.5}Cu_1Nb_3Si_{15.5}B_7$ alloy powder cores (upon 0.1 T induction) with 3 wt% glass frits, talc and polyamide.

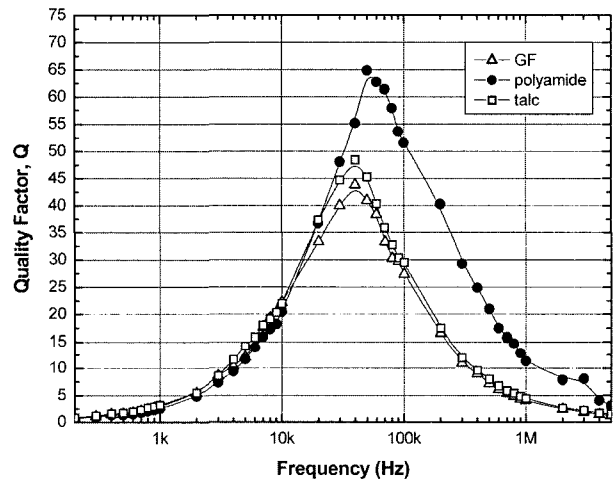


Fig. 4. Frequency dependence of quality factor for nanocrystalline $Fe_{73.5}Cu_1Nb_3Si_{15.5}B_7$ alloy powder cores with 3 wt% glass frits, talc and polyamide.

4에서 보여주고 있는 바와 같이 GF와 활석을 절연체로 사용한 분말코어의 경우 40 kHz에서 최대를 나타내면서 그 크기는 45 정도인데 비하여 폴리아미드를 사용한 자심의 경우는 보다 높은 주파수인 60 kHz에서 피크 값을 보이면서 그 크기가 65에 이르고 있음을 알 수 있다.

이와 같이 폴리아미드를 사용한 경우 우수한 고주파 특성을 나타내는 것은 Fig. 3에서와 같이 높은 주파수에 이르도록 낮은 자심손실이 얻어지는 현상과 동일한 원인을 가진 것으로 믿어진다.

Fig. 5와 6은 이상과 같은 투자율 및 에너지손실 특성을 나타내는 분말코어의 미세구조를 보여주고 있는데, GF를 사용한 자심의 경우 다른 논문에서 제시한 바 있으므로[4] 여기서는 활석과 폴리아미드를 사용한 자심의 미세 단면구조만

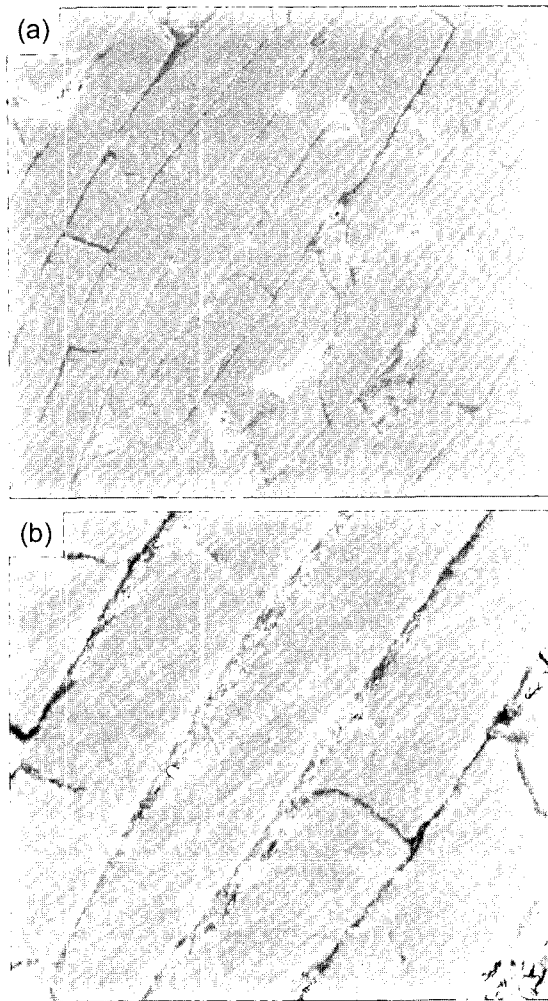


Fig. 5. Scanning electron micrographs of nanocrystalline Fe_{73.5}Cu₁Nb₃Si_{15.5}B₇ alloy powder cores with 3 wt% talc (x500 (a) and x1200 (b)).

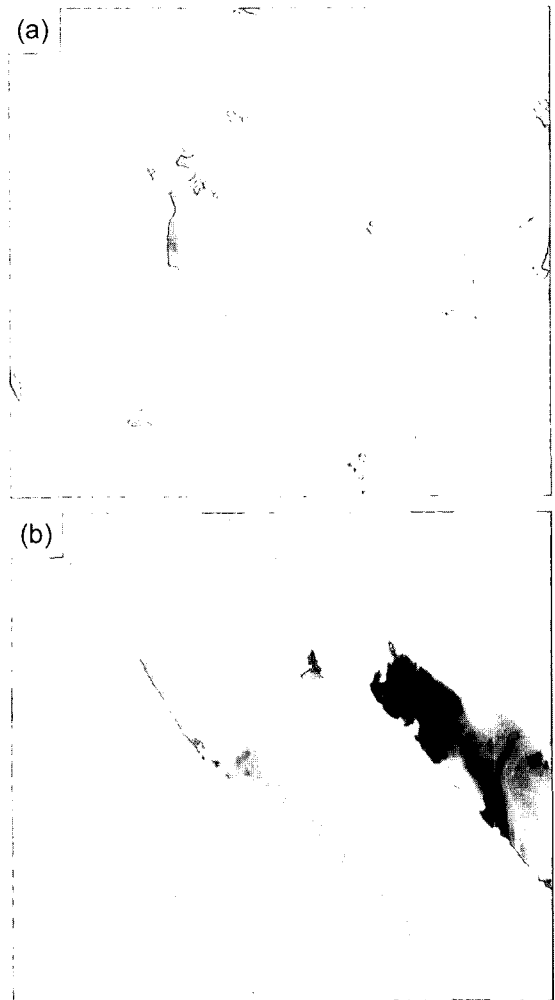


Fig. 6. Scanning electron micrographs of nanocrystalline Fe_{73.5}Cu₁Nb₃Si_{15.5}B₇ alloy powder cores with 3 wt% polyamide (x500 (a) and x1200 (b)).

을 나타내었다. 각각 500배와 1200배로 촬영된 이들 그림을 서로 비교해 보면, 전체적으로 자성입자의 배열 상태는 유사하나 입자 사이에 존재하는 절연물질의 부피비가 활석에 비해 폴리아미드의 경우 더 많음을 쉽게 관찰할 수 있으며 또 더 치밀하게 절연막이 형성되어 있는 것으로 보여져, 결국 이 점이 투자율과 자심손실의 상대적 크기에 주된 영향을 준 것으로 생각된다.

단 폴리아미드가 첨가된 자심을 보여주는 Fig. 6에서 군데 군데 상당히 큰 동공이 발견되는데, 이는 분말코어의 성형후 내부응력을 제거하기 위해 시행하는 열처리시 용점이 낮은 폴리아미드가 부분적으로 용출되어 생긴 것으로 보인다.

Fig. 7은 각 분말코어의 직류중첩 특성(직류 바이어스 특성)을 측정할 것으로, 인가되는 직류 자장의 크기에 따른 투자율의 감소 정도를 나타내는 비율(직류 바이어스 자장이 없을 때를 기준으로 하여 바이어스 자장이 인가될 때 얻어지는 투자

율의 백분비) 즉 퍼센트 투자율(percent permeability)을 보여주고 있다. 이 때 투자율은 100 kHz의 주파수에서 측정된 것이다.

이 그림에서 보는 바와 같이 GF와 활석을 절연물질로 사용한 분말코어의 퍼센트 투자율은 전 인가자장 범위에서 상대적으로 낮아 각각 10, 50, 100 Oe에서 61, 37, 23% 전후의 값을 나타낸다. 반면 폴리아미드를 절연체로 사용한 경우에는 같은 자장 하에서 66, 44, 29%의 값을 보여 대략 5~7% 정도 퍼센트 투자율이 높음을 알 수 있다.

일반적으로 투자율이 낮을 경우 Fig. 1에서 보여주는 바와 같이 투자율의 주파수 안정성이 증가하고 직류 바이어스 자장의 인가시 높은 퍼센트 투자율을 보여주는 바, 폴리아미드를 사용한 자심의 직류중첩 특성도 이와 같은 일반적인 경우에 해당한다고 볼 수 있을 것이다.

한편 Fig. 2에서 폴리아미드의 혼합비를 1 wt%로 감소시키

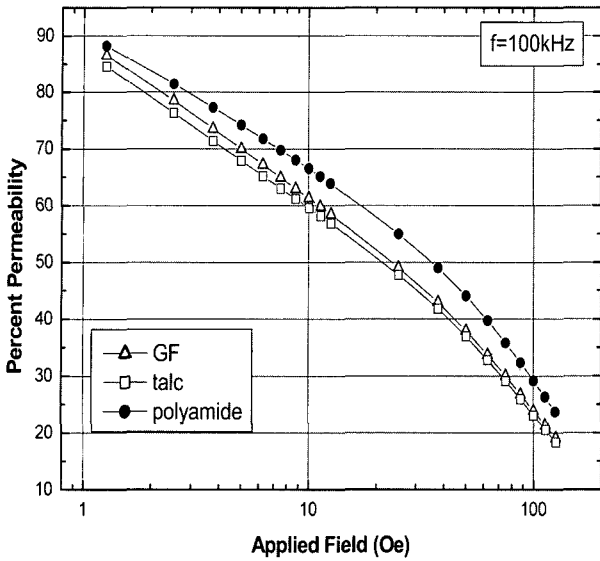


Fig. 7. Variation of percent permeability with applied dc magnetic field for nanocrystalline $Fe_{73.5}Cu_1Nb_3Si_{15.5}B_7$ alloy powder cores including 3 wt% glass frits, talc and polyamide.

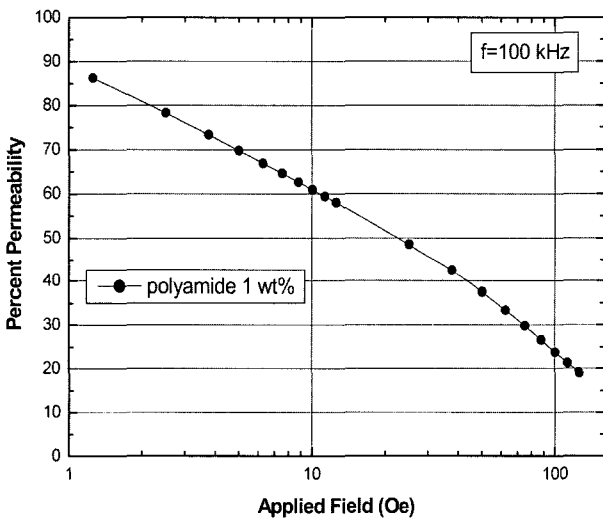


Fig. 8. Variation of percent permeability with applied dc magnetic field for $Fe_{73.5}Cu_1Nb_3Si_{15.5}B_7$ alloy powder cores including 1 wt% polyamide.

면 투자율이 상당히 증가하면서 그 안정성은 낮아짐을 보여 주었다. 이 자심을 사용하여 직류충첩 특성을 조사해 보면 Fig. 8과 같은 결과가 얻어지는데, 10, 50, 100 Oe에서의 퍼센트 투자율이 각각 61, 37, 24%가 되어 GF 및 활석을 3 wt% 혼합하여 만든 분말코어의 퍼센트 투자율과 거의 같아져 버린다.

결국 이와 같은 결과는, Fig. 7의 폴리아미드 사용에 의한 퍼센트 투자율의 증가는 기본적으로 절연물질이 달라져서 얻어진 것이 아니라 절연체 사용량(체적비)의 변화에 기인한다는 것을 보여주는 것으로 판단된다.

IV. 결 론

250~850 μm 크기의 FeCuNbSiB 나노결정립 합금분말에 3 wt%의 전기절연체(glass frits, 활석, 폴리아미드 분말)를 혼합한 뒤 압축성형하여 분말코어를 만들 때, 절연물질에 따른 자기적 특성의 변화를 조사하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 세라믹 물질인 glass frits와 활석은 폴리아미드에 비해 수백 kHz 이하의 주파수 범위에서 높은 투자율을 나타내나 1 MHz 이상의 주파수에서는 빠르게 낮아지는 거동을 보였다. 자심손실은 glass frits와 활석을 첨가한 자심 쪽이 더 크며, 품질계수는 폴리아미드를 첨가한 자심보다 더 낮은 주파수에서 피크를 나타내고 그 값도 더 작았다.

반면 폴리아미드로 절연처리한 분말코어의 경우 수 MHz에 이르기까지 투자율의 저하가 거의 나타나지 않았으며, 더 우수한 자심손실 및 품질계수 특성을 보여 주었다. 그리고 직류충첩특성 또한 폴리아미드를 첨가한 자심에서 100 Oe 이상의 큰 자장에 이르기까지 더 우수하였다.

2. 각 분말코어의 미세 단면구조를 관찰한 결과, 폴리아미드를 절연체로 사용한 경우 그 밀도가 낮음으로 인하여 더 많은 체적비로 혼합되므로 자성분말 사이의 전기적 절연을 보다 더 충분히 해주고 있는 것으로 판단되었으며, 세라믹 물질을 절연체로 사용했을 때와의 자기적 특성의 차이는 이 점에 크게 의존하고 있는 것으로 평가되었다.

감사의 글

본 연구는 한국과학재단 목적기초연구(R05-2002-000-00513-0) 지원으로 수행되었음.

참 고 문 헌

- [1] V. Leger, C. Ramiarinjaona, R. Barrue, R. Lebourgeois, J. Magn. Mater., **191**, 169(1999).
- [2] H. Xu, K. Y. He, Y. Q. Qiu, Z. J. Wang, W. Feng, Y. D. Hong, X. S. Xiao, Q. Wang, Mater. Sci. Eng., **A286**, 197(2000).
- [3] Y. Yoshizawa, S. Oguma, K. Yamauchi, J. Appl. Phys., **64**, 6044(1988).
- [4] K. Yamauchi, Y. Yoshizawa, J. Mag. Soc. Jpn., **14**(5), 684(1990).
- [5] G. H. Kim, T. H. Noh, G. B. Choi, K. Y. Kim, J. Appl. Phys., **93**(10), 7211(2003).
- [6] T. H. Noh, H. Y. Choi, S. J. Ahn, J. Kor. Mag. Soc., **14**(1), 7(2004).
- [7] T. H. Noh, H. Y. Choi, J. Kor. Inst. Met. & Mater., **42**(6) 501(2004).
- [8] H. Y. Choi, S. J. Ahn, T. H. Noh, Phys. Stat. Sol. (a), **201**(8), 1879(2004).

[9] 澤 孝雄, 일본국 공개특허공보 昭61-154014(1986).

[10] 山口紀繁, 일본국 공개특허공보 昭62-22410(1987).

[11] 김규진, 대한민국 특허공개번호 특2001-0035465(2001).

[12] 학원사 편집부, 과학대사전, 거북출판사, 서울, (1995), p. 1073.

[13] 문창권, 고분자 복합재료, 시그마프레스, 서울, (2000), pp. 133-134.

The Effects of Insulating Materials on the Magnetic Properties of Nanocrystalline FeCuNbSiB Alloy Powder Cores

T. H. Noh* and H. Y. Choi

School of Advanced Materials Engineering, Andong National University, Andong 760-749, Korea

(Received 24 August 2004, in final form 13 October 2004)

The variation of magnetic properties with insulating materials(glass frits, talc and polyamide) in compressed powder cores composed of $Fe_{73.5}Cu_1Nb_3Si_{15.5}B_7$ nanocrystalline alloy powders(size : 250~850 μm) and 3 wt% insulators has been investigated. Larger permeability was obtained at the frequency lower than 300~400 kHz for the powder cores including ceramic insulators(glass frits and talc) as compared to the cores with polyamide, while at higher frequency than 1 MHz the permeability of the former cores decreased rapidly. Further the cores with ceramic insulators showed larger core loss and smaller peak quality factor attained at lower frequency. On the contrary, the powder cores with polyamide exhibited high stability of permeabilities up to several MHz and superior core-loss and quality-factor properties. Moreover the dc bias property was better in the wide field range for the cores having polyamide. The enhanced magnetic properties of polyamide-added cores were attributed to the more sufficient electrical insulation between magnetic particles, where the higher insulation state was considered to be obtained from the larger volume fraction of polyamide in the powder cores.

Key words : nanocrystalline alloy, compressed powder core, insulator, magnetic properties, dc bias property