



**(19) 대한민국특허청(KR)**  
**(12) 등록특허공보(B1)**

(45) 공고일자 2013년12월18일  
 (11) 등록번호 10-1342091  
 (24) 등록일자 2013년12월10일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)  
**C22B 1/14** (2006.01)  
 (21) 출원번호 10-2011-0119796  
 (22) 출원일자 2011년11월16일  
 심사청구일자 2011년11월16일  
 (65) 공개번호 10-2013-0129318  
 (43) 공개일자 2013년11월28일  
 (56) 선행기술조사문헌  
 보고서 (2009.05)\*  
 논문 (1997.07)\*  
 \*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자  
**한국지질자원연구원**  
 대전광역시 유성구 과학로 124 (가정동)  
 (72) 발명자  
**임재원**  
 대전광역시 유성구 가정로 63, 110동 1105호 (신성동, 하나아파트)  
**최국선**  
 강원도 강릉시 화부산로111번길 24, 강릉교동 롯데캐슬아파트 204동 902호 (교동)  
 (뒷면에 계속)  
 (74) 대리인  
**김순용**

전체 청구항 수 : 총 9 항

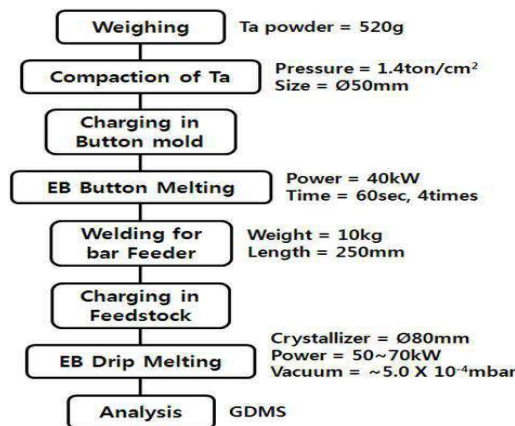
심사관 : 이학왕

(54) 발명의 명칭 **전자빔 드립 용해법을 이용한 고용점 금속의 초고순도 봉상형 잉곳의 제조방법**

**(57) 요약**

본 발명은 고용점 금속을 이용하여 봉상형 잉곳을 제조하는 방법에 관한 것으로, 보다 구체적으로 전자빔 드립 용해를 이용하여 99.995% 이상 100% 미만의 순도를 갖는 초고순도의 탄탈륨 봉상형 잉곳을 제조하는 방법에 관한 것이다.

**대표도** - 도2



(72) 발명자

**오정민**

대전광역시 대덕구 비래동 금석백조아파트 103동  
201호

**이백규**

대전광역시 중구 태평로 80, 36동 13호 (태평동,  
삼부아파트)

**김상배**

대전광역시 유성구 어은로 57, 110동 1205호 (어은  
동, 한빛아파트)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 GP2009-001

부처명 지식경제부

연구사업명 일반사업

연구과제명 해외 금속광물 개발을 위한 활용기술 연구

기 여 율 1/1

주관기관 한국지질자원연구원

연구기간 2009.01.01 ~ 2013.12.31

---

**특허청구의 범위**

**청구항 1**

- 1) 직경  $\Phi 20\text{mm}$  이상  $\Phi 100\text{mm}$  이하의 스틸킵렉션 몰드를 이용하여  $1.0\text{ton/cm}^2$  이상의  $2.0\text{ton/cm}^2$  이하의 압력으로 고용점 금속 분말을 압축하여 압분체를 제조하는 단계;
- 2) 전자빔 용해로 압분체를 용해하여 버튼형 잉곳으로 제조하는 단계;
- 3) 제조된 잉곳을 고용점 금속 바 피더(bar feeder)형태로 용접하는 단계;
- 4) 원형의 주 전자빔과 반원형의 보조 전자빔을 포함하는 2개의 전자빔을 동시에 사용한 전자빔 드립용해로 고용점 금속 바 피더를 연속적으로 용해하는 단계;를 포함하는 고용점 금속 봉상형 잉곳의 제조 방법.

**청구항 2**

제1항에 있어서, 상기 고용점 금속은 텅스텐(W), 탄탈륨(Ta), 몰리브덴(Mo), 니오븀(Nb), 지르코늄(Zr), 하프늄(Hf), 티탄(Ti) 및 이들의 합금으로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종의 금속인 것을 특징으로 하는 고용점 금속 봉상형 잉곳의 제조방법.

**청구항 3**

- 1) 직경  $\Phi 20\text{mm}$  이상  $\Phi 100\text{mm}$  이하의 스틸킵렉션 몰드를 이용하여  $1.0\text{ton/cm}^2$  이상의  $2.0\text{ton/cm}^2$  이하의 압력으로 탄탈륨 분말을 압축하여 버튼형 압분체를 제조하는 단계;
- 2) 전자빔 용해로 압분체를 용해하여 버튼형 잉곳으로 제조하는 단계;
- 3) 제조된 잉곳을 탄탈륨 바 피더(bar feeder)형태로 용접하는 단계;
- 4) 원형의 주 전자빔과 반원형의 보조 전자빔을 포함하는 2개의 전자빔을 동시에 사용한 전자빔 드립용해로 탄탈륨 바 피더를 연속적으로 용해하는 단계;를 포함하는 탄탈륨 봉상형 잉곳의 제조 방법.

**청구항 4**

삭제

**청구항 5**

삭제

**청구항 6**

제3항에 있어서, 상기 2) 단계의 용해는 3회 내지 5회 반복되는 것을 특징으로 하는 탄탈륨 봉상형 잉곳의 제조 방법.

**청구항 7**

삭제

**청구항 8**

제3항에 있어서, 상기 주 전자빔은 크리스탈라이저의 용융풀을 연속적으로 용해하고, 보조 전자빔은 탄탈륨 바 피더를 용해하여 액적을 크리스탈라이저로 떨어뜨리는 것을 특징으로 하는 탄탈륨 봉상형 잉곳의 제조방법.

**청구항 9**

제3항에 있어서, 상기 전자빔 용해는 40kW이상 60kW 이하의 파워로 탄탈륨 시드를 제조한 후 파워를 60kW이상 80kW이하까지 증가시켜 전자빔 드립 용해를 수행하는 것을 특징으로 하는 탄탈륨 봉상형 잉곳의 제조방법.

**청구항 10**

제3항 및 제6항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 탄탈륨 봉상형 잉곳은 99.995% 이상 100% 미만의 순도를 갖는 것을 특징으로 하는 탄탈륨 봉상형 잉곳의 제조방법.

**청구항 11**

제3항 및 제6항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 탄탈륨 봉상형 잉곳은 스퍼터링 타겟용인 것을 특징으로 하는 탄탈륨 봉상형 잉곳의 제조방법.

**청구항 12**

제3항 및 제6항 중 어느 한 항의 방법으로 제조된  $\Phi 40 \times 100\text{mm}$  이상  $\Phi 100 \times 1000\text{mm}$  이하 직경 및 99.995% 이상 100% 미만의 순도를 가진 탄탈륨 봉상형 잉곳.

**명세서**

**기술분야**

[0001] 본 발명은 전자빔 드립 용해법을 이용한 고용점 금속의 초고순도 봉상형 잉곳의 제조방법에 관한 것이다. 보다 구체적으로 본 발명은 탄탈륨(Ta) 분말을 압축하여 압분체를 제조하는 단계; 전자빔 용해로 압분체를 반복적으로 용해하여 잉곳으로 제조하는 단계; 제조된 잉곳을 탄탈륨 바 피더(bar feeder)형태로 용접하는 단계; 전자빔 드립 용해로 탄탈륨 바 피더를 반복적으로 용해하는 단계;를 포함하는 탄탈륨 봉상형 잉곳을 제조하는 방법에 관한 것이다.

**배경기술**

[0002] 고용점 금속은 Fe보다 용융온도가 높은 금속재료로써 대표적으로 W, Ta, Mo, Nb, Zr, Hf, Ti 등과 이들의 합금을 분류하고 있다. 고용점 금속의 대표적 특징인 높은 용융온도와 타 금속에 비해 탁월한 내식성으로 현대 산업에서 핵심 소재로 이용되고 있으며 최근에는 반도체 스퍼터링 타겟의 소재로 그 용도가 증대되고 있다. 스퍼터링 타겟의 경우 소재 내의 불순물이 엄격하게 관리되어 그 순도가 4N(99.99%)급에서 5N(99.999%)급으로 점차 고순도화되고 있다. 하지만 고용점 금속의 높은 용융온도와 고반응성이라는 특성 때문에 고순도화 기술은 매우 어려운 것으로 알려져 있다. 고용점 금속의 정련은 먼저 습식법으로 분말의 환원법이 있으나 그 순도는 4N급 이하의 한계를 갖는다. 건식법에 의한 정련은 대표적으로 수소 플라즈마 아크 용해법과 전자빔 용해법이 있다.

[0003] 반도체 스퍼터링 타겟의 경우 소재의 고순도화와 더불어 스퍼터링 타겟의 대면적화가 요구되고 있다. 이러한 요구에 부응하기 위해 고온 용해법에 의해 고용점 금속의 분말로부터 봉상형 잉곳을 제조하기 위한 연구가 진행되었다. 하지만 기존의 방식은 분말로부터 전자빔 용해를 이용한 봉상형 잉곳의 제조 시 열처리로 및 가공 장비를 이용한 전처리 과정(고온소결 및 스웨이징 공정)이 필요하므로 고가의 고온소결로 및 스웨이징 장비가 별도로 요구되고 있다. 또한 스웨이징 공정 후 초고순도 고용점 금속의 봉상형 잉곳을 얻기 위하여 수회 반복적인 용해가 동반되고 있다.

[0004] 탄탈륨은 대표적인 고용점 금속으로 높은 용점(2,996℃)과 열전도도, 우수한 내식성으로 현대 산업에서 핵심 소

재로 이용되고 있다. 최근에는 반도체 스퍼터링 타겟의 재료로도 그 용도가 증대되고 있는데, 타겟의 경우 소재 내 불순물이 엄격하게 관리되어 그 순도는 4N(99.99%)급에서 5N(99.999%)급으로 점차 고순도화가 요구되고 있다. 하지만 탄탈륨은 고용점, 고반응성이라는 특성 때문에 제련 및 정련이 매우 어렵다고 알려져 있다.

[0005] 탄탈륨의 정련은 먼저 습식법으로  $K_2TaF_7$ 으로부터 나트륨 환원법에 의한 금속분말의 제조 방법이 있다. 하지만 나트륨 환원법에 의해 제조된 분말은 그 순도가 4N급의 한계를 갖는다. 건식법에 의한 탄탈륨의 정련은 고온용해법에 의한 정련으로 대표적으로 수소 플라즈마 아크 용해(Hydrogen Plasma Arc Melting, HPAM)과 전자빔 용해(Electron Beam Melting, EBM)법이 있다. Elanski 등은 99.9% 순도의 상용 탄탈륨으로부터 HPAM법에 의해 Nb, Mo, W를 제외한 모든 불순물들을 수 ppb 레벨까지 제거하여 5N급의 탄탈륨 금속을 제조하였다고 보고하였다.

[0006] 반도체 스퍼터링 타겟의 경우 소재의 고순도화와 더불어 스퍼터링 타겟의 대면적화가 요구되고 있다. 상기에서 보고된 탄탈륨 정련의 연구들은 크기보다 불순물 제거에 주안점을 두었으며, 정련된 잉곳 또한 버튼형(최대 500g)이었다. 이에 반해 Briant 등의 연구에서는 전자빔 용해를 이용해 직경 200mm의 봉상형 잉곳을 제조하였지만, 그 순도는 4N급에 머물고 있다. 따라서, 5N급 초고순도 탄탈륨의 봉상형 잉곳의 제조방법에 대해서는 현재 연구된 바가 없다.

### 발명의 내용

#### 해결하려는 과제

[0007] 본 발명의 목적은 고온소결 및 스웨이징 가공을 배제하고 우선적으로 버튼형 잉곳을 제조한 후 이들을 용접에 의해 바 형태로 만든 후 단 1회의 전자빔 드립용해에 의해 5N급 초고순도 봉상형 잉곳을 제조하는 방법에 관한 것이다.

[0008] 본 발명의 또 다른 목적은 종래의 봉상형 잉곳에 비하여 큰 직경을 가지고 순도가 99.995% 이상 100% 미만인 초고순도 탄탈륨 봉상형 잉곳을 제조하는 방법을 제공하는 것이다.

#### 과제의 해결 수단

[0009] 상기와 같은 목적을 달성하기 위해서, 1) 고용점 금속 분말을 압축하여 압분체를 제조하는 단계; 2) 전자빔 용해로 압분체를 용해하여 버튼형 잉곳으로 제조하는 단계; 3) 제조된 잉곳을 바 피더(bar feeder)형태로 용접하는 단계; 4) 전자빔 드립 용해로 바 피더를 연속적으로 용해하는 단계;를 포함하는 고용점 금속 봉상형 잉곳을 제조하는 방법을 제공한다.

[0010] 또한, 본 발명은 상기의 발명으로 제조된  $\Phi 40 \times 100\text{mm}$  이상  $\Phi 100 \times 1000\text{mm}$  이하의 직경 및 99.995% 이상 100% 미만의 순도를 가진 고용점 금속 봉상형 잉곳을 제공한다.

### 발명의 효과

[0011] 본 발명에 따르면, 기존의 제조 방법을 개선하여 고온소결 및 스웨이징 가공을 배제하고 전자빔 용해 장비만으로 초고순도 봉상형 잉곳을 제조할 수 있으며 이를 스퍼터링 타겟용 원재료를 제조하는 데 유용하게 이용될 수 있다.

### 도면의 간단한 설명

[0012] 도1은 기존의 탄탈륨 잉곳 제조방식과 본 발명의 제조방식의 차이점을 도시한다.

도2는 초고순도 탄탈륨 봉상형 잉곳을 제조하는 모식도를 도시한다.

도3의 (a)는 탄탈륨 분말의 외형, (b)는 분말을 압분체로 제조한 탄탈륨 압분체, (c)는 탄탈륨 압분체를 넣고 용해할 수 있는 버튼형 몰드, (d)는 탄탈륨 압분체를 버튼형 몰드에 넣고 전자빔 용해로를 이용해 제조한 버튼

형 탄탈륨을 도시한다.

도4의 (a)는 사각 동 몰드에 버튼형 잉곳을 장입한 모습을 도시하며, (b), (c)는 제조된 탄탈륨 바 형태를 도시한다.

도5는 탄탈륨 바 피더를 용해시켜 봉상형 잉곳을 만드는 모습을 도시한다.

도6은 최종 탄탈륨 봉상형 잉곳의 외형을 도시한다.

도7은 전자빔 드립 용해의 공정을 간략하게 도시한다.

도8은 버튼형 탄탈륨과 탄탈륨 봉상형 잉곳의 주요 불순물 제거 정도와 이의 증기압을 도시한다.

**발명을 실시하기 위한 구체적인 내용**

- [0013] 본 발명은 1) 고용점 금속 분말을 압축하여 압분체를 제조하는 단계; 2) 전자빔 용해로 압분체를 용해하여 버튼형 잉곳으로 제조하는 단계; 3) 제조된 잉곳을 고용점 금속 바 피더(bar feeder)형태로 용접하는 단계; 4) 전자빔 드립 용해로 고용점 금속 바 피더를 연속적으로 용해하는 단계;를 포함하는 고용점 금속 봉상형 잉곳의 제조 방법을 제공한다.
- [0014] 상기 고용점 금속은 텅스텐(W), 탄탈륨(Ta), 몰리브덴(Mo), 니오븀(Nb), 지르코늄(Zr), 하프늄(Hf), 티탄(Ti) 및 이들의 합금으로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종의 금속일 수 있으며, 이 외에도 스퍼터링 타겟용으로 사용 가능한 고용점 금속이라면 제한 없이 적용시킬 수 있다.
- [0015] 본 발명의 바람직한 일 실시예로써, 본 발명은 상기 고용점 금속 중 탄탈륨(Ta)를 선택하여 대표 실험을 실시하였다.
- [0016] 압분체는  $\Phi 20\text{mm}$  이상  $\Phi 100\text{mm}$  이하의 스틸 컴팩션 몰드를 이용하여  $1.0\text{ton}/\text{cm}^2$  이상의  $2.0\text{ton}/\text{cm}^2$  이하의 압력으로 버튼형으로 제조될 수 있다.
- [0017] 탄탈륨의 용해는 열원의 종류에 따라 플라즈마 용해, 진공 아크 용해법, 전자빔 용해(EBM: Electron Beam Melting)법 등으로 나누어 진다. 진공 아크 용해법은 전자빔 용해법보다 생산성이 높으나, 전자빔 용해법보다 저진공에서 용해작업이 행해지므로 산소에 의한 오염이 증가하는 경향이 있다. 본 발명에서는 일 예로써, 전자빔 용해로 압분체를 반복적으로 용해하여 버튼형 잉곳을 제조할 수 있으며, 전자빔 용해는 바람직하게는 3회 내지 5회 이상 반복될 수 있고 보다 바람직하게는 3회 이상 반복 용해 할 수 있다.
- [0018] 전자빔 드립 용해시에 잉곳의 크기는 크리스탈라이저(crystallizer) 내부의 크리스탈라이저의 직경과 풀러(puller)의 스트로크(stroke)에 의존하게 된다. 본 발명에서의 전자빔 드립 용해장치는 2개의 전자빔을 가지는 것이 바람직하며, 더욱 바람직하게는 원형의 주 전자빔과 반원형의 보조 전자빔을 포함하는 2개의 전자빔을 가질 수 있다.
- [0019] 크리스탈라이저는 동으로 제조될 수 있으며 용융 탄탈륨과의 반응을 피하기 위하여 수냉에 의해 저온을 유지하도록 설계되어 있을 수 있다. 크리스탈라이저는 개방형의 형상을 가질 수 있고, 시드 잉곳(seed ingot)이 용해 초기에 바닥 역할을 하며, 시드 잉곳에 탄탈륨의 용융된 방울이 떨어지면서 용해가 시작될 수 있다.
- [0020] 보다 구체적으로 주전자빔은 크리스탈라이저의 용융풀을 연속적으로 용해하고, 보조 전자빔은 탄탈륨 바 피더를 용해하여 액적을 크리스탈라이저로 떨어뜨려서 탄탈륨 봉상형 잉곳을 제조할 수 있다.
- [0021] 전자빔 드립 용해 시 탄탈륨 시드 제조를 위한 용해는 40kW 이상 60kW 이하의 파워로 수행 한 후 드립 용해를 위한 파워는 60kW 이상 80kW 이하까지 이상 증가시켜 수행될 수 있다.
- [0022] 본 발명에 의하여 제조되는 탄탈륨 봉상형 잉곳은 5N(99.999%)급의 초고순도 탄탈륨 봉상형 잉곳이며, 바람직하게는 잉곳은 99.995% 이상 100% 미만의 순도를 가진 봉상형 잉곳일 수 있다. 또한, 본 발명의 방법으로 제조된 탄탈륨 봉상형 잉곳은  $\Phi 40 \times 100\text{mm}$  이상  $\Phi 100 \times 1000\text{mm}$  이하 직경 및 99.995% 이상 100% 미만의 순도를 가지는 것이 바람직하며 보다 바람직하게는  $\Phi 80 \times 100\text{mm}$ 일 수 있다.
- [0023] 달리 한정되지 않는 한, 본원에 사용된 모든 기술적 및 과학적 용어는 당해 기술분야의 통상의 지식을 가진 자가 통상 이해하는 의미와 동일한 의미를 갖는다. 본원에 기재된 것들과 유사하거나 동등한 모든 방법 및 재료를

본 발명 양태의 실시 또는 시험에 사용할 수 있다.

[0024] 이하, 본 발명을 제조예에 의해 상세히 설명한다. 단, 하기 제조예는 본 발명을 예시하는 것일 뿐, 본 발명의 내용이 하기 제조예에 의해 한정되는 것은 아니다.

[0025] <제조예>

[0026] 1. 탄탈륨 압분체의 제조

[0027] 탄탈륨의 정련 및 잉곳의 제조를 위해 100KW급 전자빔용해로(EMO100, VON ARDENNE Analgentechnik GmbH)를 이용하였다. 먼저 탄탈륨 분말(99.99%, 나인디지트)을 약 520g 칭량하여 압분체를 만들었다. 탄탈륨 압분체는  $\Phi$  50mm의 스틸 컴팩션 몰드를 이용하여  $1.4\text{ton}/\text{cm}^2$ 의 압력으로 제조하였다(도 3). 분말을 압분체로 제조함으로써 분말을 그대로 장입하여 용해할 경우 빔에 의하여 많은 양이 손실되는 것을 줄일 수 있었다.

[0028] 2. 탄탈륨 버튼형 잉곳의 제조

[0029] 바 피더(bar feeder)의 원재료 제조 및 1차적인 불순물 제거를 위해서 탄탈륨 버튼형 잉곳을 제조하였다. 제조된 압분체를 챔버 내 수냉식 버튼형 동 몰드에 장입하고 진공도가  $8.0 \times 10^{-5}$  mbar까지 배기하였다. 이후 각 시편에 대해 40kW의 파워로 60초씩 4회 반복용해 하였다. 버튼형 잉곳의 반복 용해 횟수에 따른 외형의 차이는 없으며, 이렇게 제조된 버튼형 잉곳은 약  $\Phi 50\text{mm} \times 12\text{mm}$  크기였다. 4회 반복 용해된 버튼형 잉곳의 무게는 평균적으로 약 6.2%의 무게손실이 나타났다. 이는 고진공에서 높은 용융온도와 낮은 증기압을 갖는 탄탈륨의 용해로 인해 대부분의 불순물들이 제거되면서 잉곳의 무게가 감소되기 때문인 것으로 판단되었다.

[0030] 3. 탄탈륨 바 피더(bar feeder)의 제조

[0031] 봉상형 잉곳을 만들 때 바를 용해로 옆에 장착하여 조금씩 밀어 넣음으로써 앞부분부터 용해될 수 있도록 할 수 있도록 하기 위하여 탄탈륨 바 피더를 제조하였다. 보다 구체적으로 4회 반복 정련된 탄탈륨 버튼형 잉곳을 전자빔 드립용해를 위한 바 피더로 만들기 위해 특수 제작한 수냉식 사각형 동 몰드에 버튼형 잉곳을 일렬로 세워 장입한 후 전자빔 용해로를 이용하여 바 피더 형태로 용접하였다. 탄탈륨 바 피더의 무게는 약 10kg이고, 길이는 약 250mm였다(도 4).

[0032] 4. 전자빔 드립용해

[0033] 봉상형 잉곳의 크기를 결정하는 크리스탈라이저는  $\Phi 80\text{mm}$ 를 사용하였다. 이후 50kW의 Power로  $\Phi 80\text{mm}$  탄탈륨 시드를 제조한 후, 파워를 70kW까지 증가시켜 바 피더로부터  $\Phi 80 \times 100\text{mm}$ 의 봉상형 잉곳을 제조하였다(도 5).

[0034] 전자빔 드립 용해에 의한 정련 공정은 버튼형 잉곳의 용해방법과 다르게 2개의 전자빔을 동시에 사용하게 된다(도7). 원형의 주 전자빔은 크리스탈라이저의 용융풀을 연속적으로 용해하고, 반원형의 보조 전자빔은 바 피더를 용해하여 그 액적을 크리스탈라이저로 떨어뜨리게 된다. 이렇게 탄탈륨 액적들이 크리스탈라이저로 떨어지게 되면 주 전자빔의 파워를 더 상승시켜서 용융풀을 용해하게 되므로 그 정련효과가 더 개선된다. 초기 용융풀을 안정시키기 위해 50kW의 파워로 전자빔을 사용한 후 액적을 떨어뜨려 정련효과를 높이기 위해 70kW의 파워를 사용하였다. 이렇게 전자빔 드립 용해를 통해  $\Phi 80 \times 100\text{mm}$ 의 탄탈륨 봉상형 잉곳을 제조하였다. 탄탈륨 봉상형 잉곳의 외형을 도 6에 나타내었다.

[0035] <비교예>

[0036] 제조된 탄탈륨 버튼형 및 봉상형 잉곳의 순도는 글로 방전 질량 분석기(Autoconcept GD90, MSI)를 이용하여 분석하였다.

[0037] 원재료 탄탈륨 분말, 2회 용해된 버튼형 잉곳, 4회 용해된 버튼형 잉곳 그리고  $\Phi 80\text{mm}$ 의 봉상형 잉곳의 불순물 및 순도변화를 표 1에 나타내었다.



표 1

Element	Ta powder	Ta button ingot (2 times)	Ta button ingot (4 times)	Ta cylindrical ingot
Li	0.008	0.007	0.007	0.003
B	0.012	0.011	0.010	0.004
Na	7.500	1.987	0.996	0.004
Mg	0.007	0.007	0.006	0.002
Al	1.996	0.035	0.008	0.001
P	0.034	0.030	0.028	0.011
S	2.470	0.759	0.129	0.011
Cl	6.447	0.794	0.451	0.008
K	3.248	0.986	0.013	0.005
Ca	0.020	0.020	0.017	0.017
Sc	0.004	0.004	0.004	0.001
Ti	1.287	0.124	0.008	0.003
V	0.008	0.007	0.007	0.003
Cr	6.304	0.104	0.065	0.003
Mn	1.510	0.012	0.011	0.005
Fe	11.49	0.970	0.448	0.002
Co	0.012	0.011	0.010	0.004
Ni	2.554	0.032	0.026	0.025
Cu	2.603	1.840	1.083	0.023
Zn	0.198	0.018	0.017	0.004
Ga	0.587	0.024	0.022	0.009
Ge	0.038	0.034	0.030	0.023
As	0.004	0.033	0.035	0.013
Se	0.004	0.004	0.003	0.003
Br	0.033	0.030	0.027	0.011
Sr	0.006	0.005	0.005	0.002
Y	0.005	0.004	0.004	0.002
Zr	0.034	0.015	0.014	0.012
Nb	0.488	0.474	0.464	0.211
Mo	0.028	0.027	0.024	0.012
Pd	0.031	0.034	0.027	0.020
Ag	0.002	0.001	0.001	0.001
Cd	0.020	0.022	0.017	0.013
In	0.018	0.015	0.016	0.006
Sn	2.010	0.043	0.036	0.031
Sb	0.051	0.045	0.041	0.017
Te	0.033	0.027	0.023	0.013
I	0.016	0.013	0.014	0.005
Cs	0.014	0.012	0.013	0.005
Ba	0.012	0.010	0.011	0.004
Hf	0.021	0.021	0.019	0.014
W	0.031	0.032	0.031	0.033
Pt	0.066	0.054	0.048	0.027
Au	1.300	0.182	0.118	0.006
Hg	0.167	0.018	0.016	0.009
Tl	0.022	0.018	0.019	0.007
Pb	0.041	0.036	0.033	0.013
Bi	0.017	0.014	0.015	0.006
U	0.004	0.003	0.003	0.001
Be	0.005	0.004	0.004	0.001
Th	0.003	0.003	0.002	0.001
Si	2.928	2.158	1.167	0.895
<b>Impurities</b>	<b>55.746</b>	<b>11.173</b>	<b>5.646</b>	<b>1.565</b>
<b>RD(%)</b>	<b>-</b>	<b>79.96</b>	<b>89.87</b>	<b>97.19</b>

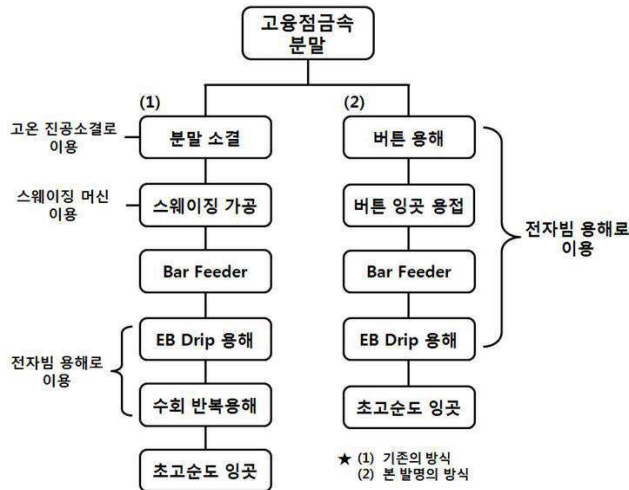


Purity(%)	99.9944	99.9989	99.9994	99.9998
-----------	---------	---------	---------	---------

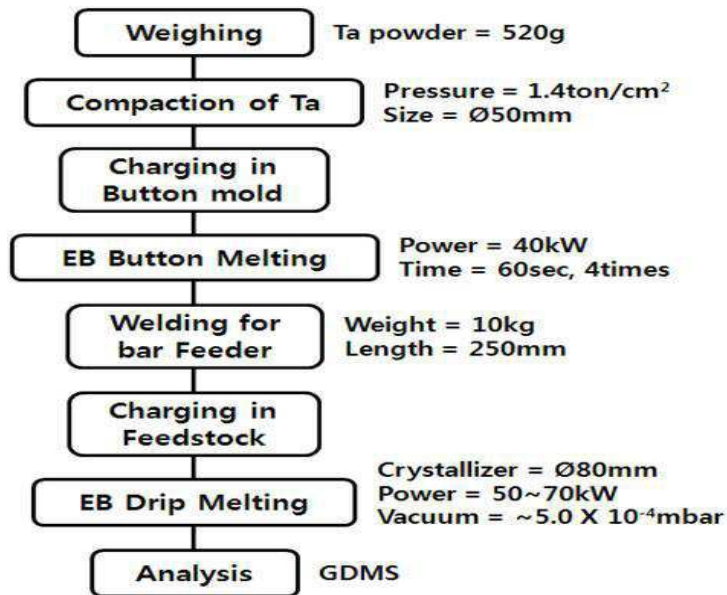
- [0039] 원재료 탄탈륨 분말의 순도는 99.9944%로 조사되었으며, 전자빔 용해를 통해 대부분의 불순물을 제거하여 최종 99.9998%의 고순도 탄탈륨 봉상형 잉곳을 제조하였다. 결과에서 각 용해조건에 따른 불순물 제거율(RD)은 다음의 식에 의해 계산되었다.
- [0040]  $RD = 100 (C_i - C_f) / C_i$
- [0041] 위 식에서  $C_i$  는 탄탈륨 분말의 초기불순물 함량이며,  $C_f$  는 각각 용해된 잉곳의 불순물 함량을 나타낸 것이다. 초기불순물 대비 2회 반복 용해된 버튼형 잉곳은 약 80%의 불순물 제거율을 보였으며, 4회 반복 용해된 버튼형 잉곳은 제거율이 약 90%로 향상되었다. 이후 전자빔 드립 용해를 통해 제조된 최종적인 봉상형 잉곳에서는 약 97%의 제거율을 나타내었다.
- [0042] 탄탈륨 금속의 주요 불순물에 대해 각각의 제거율과 증기압을 조사하여 도8을 통해 나타내었다. 도 8에서 도시하는 바와 같이 Fe, Ni, Cr, Al, Mn 등의 불순물은 앞의 총 불순물 제거율에 비슷한 경향을 가져 최종 탄탈륨 봉상형 잉곳에서는 모두 약 99% 이상 제거되는 것으로 조사되었다. 하지만 Cu의 경우 탄탈륨에 비하여 낮은 용융온도와 높은 증기압을 갖는 원소임에도 불구하고 2회, 4회 용해된 버튼형 잉곳에서는 낮은 제거율을 나타내었다. 이는 버튼형 동 몰드에서 탄탈륨의 높은 용융온도로 인한 Cu의 혼입으로 생각되었다. 버튼형 잉곳 제조의 특성으로 작은 크기의 동 몰드에 높은 파워의 전자빔이 집중되어 Cu의 혼입이 이루어졌을 것으로 판단된다. 하지만 이후 전자빔 드립 용해에 의해 약 99% 이상 제거되어 최종 순도에는 영향을 미치지 않았다.
- [0043] 도 8의 Cu를 기준으로 왼쪽의 W를 제외한 원소들은 탄탈륨의 증기압보다는 높지만 위의 타 원소에 비해 낮은 증기압을 갖는 원소들이다. Mo, Zr, V, Si의 경우 버튼 용해 시 낮은 제거율을 보이고, 이후 봉상형 잉곳에서 약 60~70%의 제거율을 나타내었다. 특히 Nb은 탄탈륨과 분리 및 정제가 어려운 금속으로 알려져 있다. Nb은 버튼 용해 시 타 원소에 비해 낮은 제거율을 보였으며, 전자빔 드립 용해를 통해 약 56%의 낮은 제거율을 나타내었다.
- [0044] 진공용해법을 통한 금속의 정련 시 가장 문제가 되는 W의 경우 본 발명에서도 용해를 통해 그 함량이 소량 증가한 것으로 조사되었는데, 이는 용해 중 원재료인 탄탈륨도 증발되면서 W의 함량이 농축된 것으로 사료된다.
- [0045] 각 원소들의 제거율의 차이를 온도에 따른 각 원소들의 증기압 곡선으로 설명할 수 있다. 즉, 도8에서 도시하는 바와 같이 각 원소들의 전자빔 드립 용해에 의한 제거율은 그 원소들의 증기압 차이와 같은 경향을 나타내었다.
- [0046] GDMS 분석결과를 통해 W를 제외한 대부분의 금속들이 전자빔을 이용한 버튼 용해보다 전자빔 드립 용해에 의해 더 큰 정련효과가 있음을 알 수 있었다. 전자빔 드립 용해법에서 1차적으로 피용해체를 용해하면서 정련이 일어나며, 이후 크리스탈라이저의 용융풀의 재가열에 의해 2차적인 정련이 일어난다. 또한 크리스탈라이저의 위치보다 상단에 위치한 피용해체가 1차적으로 용해되면서 그 액적이 작은 크기의 물방울 형태로 떨어지게 되는데 이때 고진공 분위기에서 반응표면적을 더욱 크게 증대시켜 정련효과를 높이게 된다.
- [0047] 본 제조방법을 통해 4N급 탄탈륨 분말로부터 전자빔 반복 용해에 의해 버튼형 탄탈륨 잉곳을 제조하였고, 이후 전자빔 드립 용해에 의해  $\Phi 80\text{mm} \times 100\text{mm}$  크기와 99.9998%의 순도를 갖는 스퍼터링 타겟용 초고순도 탄탈륨 봉상형 잉곳을 제조가 가능하였다. 따라서 본 제조 방법에 의하여 고용점 금속을 봉상형 잉곳으로 제조하는 경우 단면적이 증가되고 초고순도를 갖는 봉상형 잉곳을 제조할 수 있으며, 이것을 스퍼터링 타겟용으로 활용할 수 있음을 확인할 수 있었다.

도면

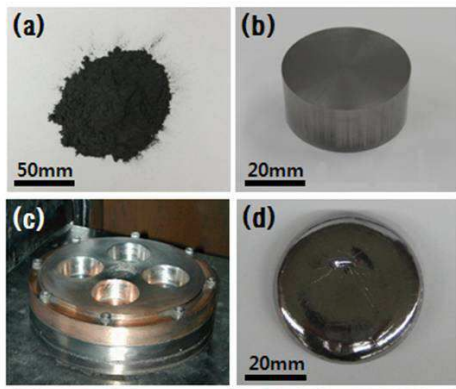
도면1



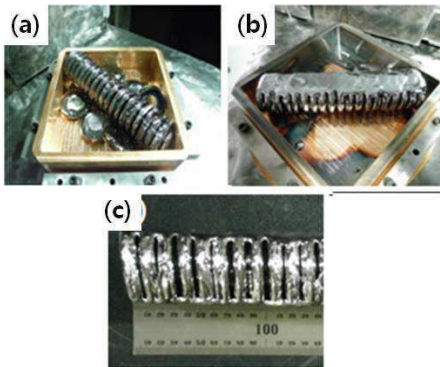
도면2



도면3



도면4



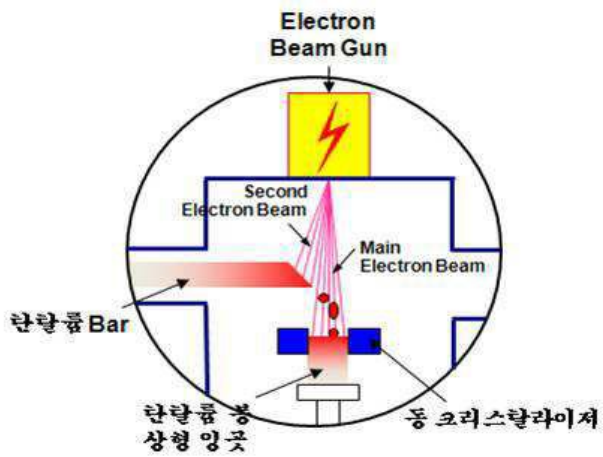
도면5



도면6



도면7



도면8

