

Fe_{73.5}Si_{13.5}B₉(Cu, Nd)Nb₃ 나노결정 합금의 열처리 특성에 미치는 열처리조건의 영향

(Effect of Heat Treatment Condition on the Soft-Magnetic Properties of Nano-crystalline Fe_{73.5}Si_{13.5}B₉X₁Nb₃(X=Cu, Nd) Alloys)

공주대학교 신소재공학부 박인수, 김문철*, 이기선
포항산업과학기술연구원(RIST)

1. 서론

Fe-Si-B계 비정질 합금에 Cu 및 Nb 등을 첨가하여 결정화하면 수십 nm 크기의 나노 결정을 얻을 수 있다. 우수한 연자성체의 필요조건은 100nm이하의 결정립크기, 영에 가까운 자기이방성계수, 원활한 자구벽 이동성, 영의 자기변형 등이다.¹⁾ 100nm를 기준으로 그 이상은 보자력이 1/D(D:결정립 크기)의 비율로 감소되지만 그 이하에서는 D⁶에 비례하여 감소한다. 자기이방성계수를 영, 자기변형을 영으로 만들기 위해서는 약 15nm이하의 결정들이 약 75% 정도로 분포해야 한다.^{2,3)} 이를 위해 지금까지의 연구들은 Cu 및 Nb 등을 이용하여 결정립크기를 약 10~15nm로 제어하는데 집중되어왔다. Cu는 주로 비정질 상태에서 우선 방출되어 cluster를 형성하고 α-Fe(Si) 및 Fe₃Si(DO₃상)결정들이 생성되기 위한 short range order의 형성을 도와주는 역할을 한다. Nb은 생성된 나노 결정들의 성장을 억제하는 역할을 한다. 이는 1차 결정상이 형성되면서 방출된 용질원자들이 잔류 비정질에 농축되어 결정화 온도가 증가함으로써 가능한 것으로 보고되고 있다.⁴⁾ 이 합금계는 낮은 1차 결정화온도(T_{x1}, 812K)와 높은 2차 결정화온도(T_{x2}, 912K)를 형성하기 때문에 ΔT(T_{x1}-T_{x2})가 ~130K로써 비교적 큰 온도차이를 나타낸다. 이는 적당한 열처리조건을 설정할 경우 2차 결정이 없는 순수한 α-(Fe,Si) 결정 및 Fe₃Si(DO₃ 상)결정을 얻을 수 있다는 것을 의미한다. 2차상은 Fe₂B 같은 magnetically hard phase이므로 자구벽 이동성을 감소시키는 결정적인 역할을 하므로 극히 억제할 필요가 있다. 현실적으로 우수한 연자성체를 제조하기 위해 위의 모든 조건을 갖추기는 어렵다. 최근 보고에 따르면⁵⁾, 이 조성의 합금을 급속응고하여 100% 비정질을 형성하기 어렵고 부분적으로 결정화가 나타나고 있다. X-ray 분석으로부터 이들 결정의 대부분은 (200) 결정면으로 확인되었다. 이들 비정질재료는 급속응고의 차이에 따라 소량의 결정 상을 포함하고 있다. 본 연구에서는 Fe_{73.5}Si_{13.5}B₉(Cu, Nd)Nb₃ 합금계를 이용하여 (200) TEXTURE를 형성하는 부분 결정상이 나노 결정화에 미치는 영향을 조사하고 결정화 열처리시에 분위기를 변화시켜 이들 TEXTURE 결정들의 성장 및 소멸거동이 자기적 성질에 미치는 영향을 연구하였다.

2. 실험방법

사용된 합금은 Fe_{74.5}Si_{13.5}B₉Nb₃, Fe_{73.5}Si_{13.5}B₉Nd₁Nb₃, Fe_{73.5}Si_{13.5}B₉Cu₁Nb₃, Fe_{73.5}Si_{13.5}B₉Nd_{0.5}Cu_{0.5}Nb₃이며, 이들은 Induction Melting법으로 제조되었다. 비정질 ribbon은 이들 합금을 채용하여 Planar Flow Casting(PFC)법으로 제조되었다. 비정질 Ribbon의 결정구조는 XRD 및 HRTEM으로 평가되었고, 결정화 온도는 DTA가 사용되었다. DTA의 승온속도는 10K/min.으로 고정하였다. 열처리조건은 H₂, NH₃ 분위기에서 실시하였으며, 열처리 장치는 RTA(Rapid Thermal Annealing)를 사용하였다. 열처리시 승온속도는 10K/sec이며, 시간은 0.5h, 1h, 2h이었다. 결정분율은 DTA 및 HRTEM를 이용하여 계산하였다. 연자성 평가를 위해 포화자화는 VSM, 투자율은 SQUID(Superconducting Quantum Interference Device), 1kHz~1MHz의 고주파에서 투자율 및 손실계수 측정은 Impedance analyzer를 사용하였다.

3. 실험결과

PFC법으로 두께 약 15~30μm의 비정질 리본이 제조되었다. Fe-Si-B-Nb의 합금계에 Nd 및 Cu를 첨가함에 따라서 1차 결정화 온도가 감소되었으며, 1차, 2차 결정화 온도의 간격(ΔT_{x2}(initial)-T_{x1}(final))이 증가하였다. Nd를 1at% 첨가 한 경우, 기존의 Cu를 첨가 할 경우 약 60K와 비교하여 약 100K로 크게 증가되었다. 이는 자기적으로 hard phase인 2차 결정 상을 배제할 수 있는 유리한 결과로 보인다. 비정질 리본의 열처리 분위기를 제어하기 위해 수소 및 NH₃ 분위기 중에서 결정화가 시도되었다. 수소분위기에서는 (200) 결정면이 우선적으로 발달하였다. 투과전자현미경으로 관찰한 결과 나노결정의 크기는 약 20nm로 나타났다.

4. 참고문헌

- [1] Michael E. McHenry, Matthew A. Willard, David E. Laughlin, Prog. in Mat. Sci. 44 (1999) 135.
- [2] T. Kulik, G. Vlasak, R. Zuberek, Mater. Sci. Eng. A226-228 (1997) 701.
- [3] G. Herzer, IEEE Trans. Magn. MAG-25 (1989) 3327.
- [4] R.W.Cahn, Mat. Sci. Tech. vol. 9: Glasses and Amorphous Materials, VCH, Wsinheim, (1991) 493.
- [5] M.El Ghannami, J. Magn. Mater., 133 (1994) 314.