

# 새 자성재료의 기초자기특성 연구 (2) 펄스측정법에 의한 비정질 $Fe_{80}B_{15}Si_5$ 합금의 자기특성\*

이용호, 신용돌, 김인수, 이연숙  
전북대학교 물리학과, 전주 560-756

노태환, 강일구  
한국과학기술연구원 금속부, 서울 136-791

(1991년 9월 13일 받음)

대표적인 철계비정질 합금인  $Fe_{80}B_{15}Si_5$  의 기초자기특성을 펄스법으로 측정하였다. 자기변형, 이방성에너지, 자화율의 역수들 사이의 정량적 관계를 연구하였다. 자기변형과 일축이방성에너지의 자화율의 역수에 대한 상대적인 기여도를 계산하였다. 내부응력의 크기와 유도이방성에너지를 추산하였다. 시료의 장축방향으로 인가된 장력은 유도 이방성에너지를 크게 증가하게 함을 알았다.

## I. 서론

액체 급냉법에 의한 비정질 강자성 합금은 연자성 재료에 적합한 여러 장점때문에 많은 연구가 진행되고 있으나, 초자화율의 불안정성은 아직도 해결되지 않는 문제이다. 일반적으로 연자성체의 자화율은 구조민감성 상수로서, 같은 성분의 합금에 있어서도 제작 및 열처리 조건과 외부응력 등에 의하여 크게 변화한다. 비정질 합금에 있어서는 결정이방성이 원리적으로 없으므로 자화율은 매우 크나 준안정상에 기인하는 가역적 또는 비가역적 구조완화에 의한 경시적 변화가 커서 실용상의 문제점이 되고 있다. 본 연구는 철계비정질 연자성 재료로서 대표적인  $Fe_{80}B_{15}Si_5$  합금의 초자화율 영역의 minor loop를 펄스법[1]으로 측정하여 자화율의 외부장력, 열처리, 교류소자후의 시간등에 대한 의존성을 조사하고, 자화율 결정의 기초요인인 자기변형과 자기이방성 등과의 정량적 상호관계를 자화율 계산의 모형에 의하여 검토하여, 최근에 개발된 finemet[2]등의 초미세 결정립 합금의 우수한 연자기특성의 물리적기초 해명의 기초자료를 얻으려 한다

## II. 실험

### 1. 시료의 제작

비정질  $Fe_{80}B_{15}Si_5$  합금은 single roller에 의한 액체급냉법으로 제작하였다. 급냉용 원판은 철제이며 직경 15 cm, 회전수는 5600 rpm, Ar의 분출게이지 압력은 약 0.8 기압이었다. 얻어진 시료의 폭은 분출구의 직경에 따라 1~3 mm, 두께는 25  $\mu$ m, 길이는 4~5 m 였다. 곡률반경 2 mm의 180° 굴곡시험에 의하여 원상복귀되었고 비정질 특유의 강한 인장강도를 보였다.

### 2. 측정방법

시료의 major 및 minor loop는 펄스법[1]으로 측정하였다. 시료의 길이는 65 mm이며 0~60 MPa의 장력을 시료의 장축방향으로 가할수 있게 하였다. major loop 측정의 주파수는 100 Hz, 인가자기장의 진폭은 40 Oe이며 minor loop 측정의 주파수는 1 kHz, 자기장의 진폭은 15 mOe이며 소자주파수는 50 Hz, 최대진폭은 20 Oe, 소자시간은 1.5 초였으며 소자후 1, 4, 15, 60, 240 초의 휴지(休止)시간을 두고 1 kHz의 삼각파펄스를 2회만 가하여 순간적으로 minor loop를 측정하였다. 측정온도는 약 20°C의 실온이었다. 자기이방성은 시료를 직경 2.8 mm의 원판으로 성형하여 전기용량법 토오크 자력계[3]로 측정

\* 본 연구의 일부는 1990년도 교육부 기초과학육성 연구비의 지원을 받았음.

하였으며 자기변형은 길이 15mm의 시료를 TRA부리지법 [4]으로 측정하였다. 시료의 열처리리는 자기장없는 질소분 위기속에서 동일시료에 대하여 4단계의 등온열처리를 하였으며 특성측정은 각 단계가 끝날때 마다 하였다. 제 1단계는 300 °C 30분, 제2단계도 300 °C 30분, 제3단계는 370 °C 30분, 제4단계는 450 °C 30분이였다.

### Ⅲ. 실험결과 및 고찰

#### 1. Major loop

열처리에 대한 major loop의 변화는 그림 1과 같다. 열처리전 시료 (as quenched, 이하 AQ로 약칭함)의 외부장력을 가하지 않는 상태에서의 각형비는 0.59이며 외부장력  $\sigma_a$ 가 51 MPa이 되면 0.85로 향상된다. 이것은 AQ상태의 90°자벽의 180°자벽에 대한 비율이 상당히 큰 것을 의미하며 Vilar 효과에 의하여  $\sigma_a$ 인가시에 180°자벽이 증가함을 알수 있다. 각형비 S의 인가장력  $\sigma_a$  및 열처리 조건 의존성을 그림 2에 표시한다. 열처리온도와 시간이 커짐에 따라 각형비는 0.95 까지 향상되며 300 °C 1hr+370 °C .5hr의 열처리와 34 MPa 이상의 장력인가에 의하여 각형비는 0.95에 포화한다. 각형비의 증가는 열

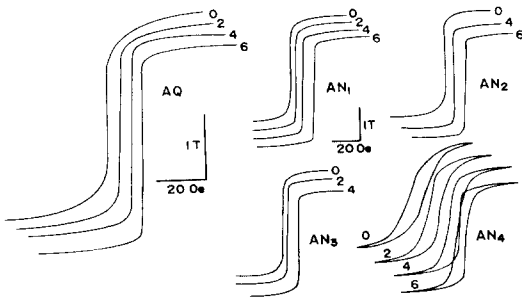


Fig. 1. The variation of minor loops with applied tension  $\sigma_a$  and annealing condition.

AQ:as quenched, AN<sub>1</sub>:300 °C, 30 min. annealing  
 AN<sub>2</sub>:300 °C, 30+30 min. AN<sub>3</sub>:300 °C, 1 hr+370 °C, 30 min.  
 AN<sub>4</sub>:300 °C, 1 hr+370 °C, 30 min+450 °C, 30 min.  
 The numbers at right top of loops represent applied tension. 2:17 MPa, 4:34 MPa, 6:51 MPa

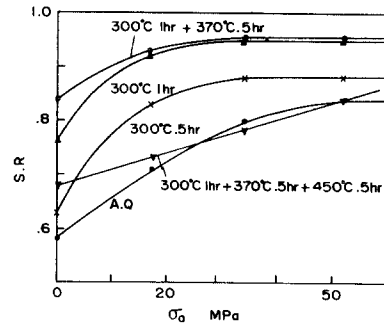


Fig. 2. The relations between squareness ratio (S-R) with applied tension  $\sigma_a$  and annealing condition.

처리에 의하여 내부응력이 완화되어 Vilar 효과를 개재한 자기변형에 기인하는 국부이방성 에너지의 감소로 해석된다. 300 °C 1 hr+370 °C .5hr의 열처리후에 다시 450 °C .5hr의 열처리를 더하면 보자력은 7Oe로 급격히 커지며 각형비는  $\sigma_a=0$  때 0.68로 감소하며  $\sigma_a=51$  MPa 때 0.84까지 직선적으로 증가하여 연자성은 급격히 악화한다. 이것은 결정화에 의한 국부적인 결정이방성이 생겨 90° 자벽의 수가 크게 증가하는 것으로 해석된다. 연자성을 유지하는 동안의 보자력은 0.15Oe 이하였다.

#### 2. 자기변형 및 자기이방성

열처리전 및 400 °C .1hr의 열처리후의 자기변형 측정 결과는 그림 3 및 그림 4와 같다. 이것을 사용하여 얻은 자기변형의 값은 열처리전  $25 \times 10^{-6}$ 이며 열처리후에는  $28 \times 10^{-6}$ 으로 거의 변화가 없었다. 자기 이방성을 측정 한 토오크곡선은 그림 4와 같다. 대체적으로 일축이방성을 나타냈으며 일축이방성상수의 값은 열처리전은  $1.2 \times 10^9$  J/m<sup>3</sup> 였으며 400 °C 1hr의 열처리후는  $1 \times 10^9$  J/m<sup>3</sup> 가 되어 약간 감소하였다. 결정화 후의 자기변형과 자기이방성은 시료가 허약하여 시료홀더에 장착시 파손되어 아직 측정 못하였다. major loop와 자기변형 및 자기이방성의 결과를 요약하여 표 1에 표시한다.

#### 3. Minor loop

열처리전의 minor loop의 교류소자후의 휴지시간 t 및 인가장력  $\sigma_a$  의존성을 그림 5에 표시한다. 뱀모양 (constricted)의 loop가 되었으며 큰 DA(disaccommodation 또는 permeability aftereffect)가 있음을 보여주고 있다. OA 부분은 직선이며 인가자기장 H가 H<sub>0</sub>를 넘으면

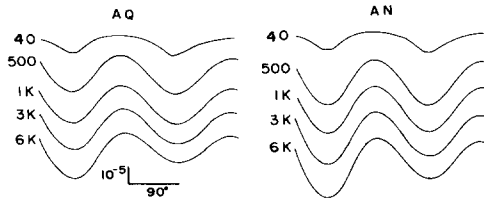


Fig. 3. Magnetostriiction vs rotation angle. The numbers at left of the curves are field intensity in Oe.

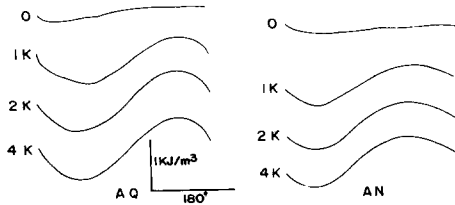


Fig. 4. Torque curves for anisotropy measurement. The numbers at left of the curves represent field intensity in Oe. AQ:as quenched AN;annealed, 400°C, 1hr.

Table 1. Major loop's characteristics.

	$I_s$ (T)		S(%)		$K_u$ ( $10^3$ J/m <sup>3</sup> )	$\lambda$ ( $10^{-6}$ )
	0	51	0	51		
$\sigma_a$ (MPa)	0	51	0	51	-	-
AQ	1.48	1.51	58	84	1.2	25
AN	1.51	1.51	84	95	1.0	28

$I_s$  : saturation magnetization  
 S : squareness factor  
 $K_u$  : uniaxial anisotropy constant  
 $\lambda$  : magnetostriction  
 AQ : as quenched  
 AN : annealed, 300°C 1hr + 370°C .5hr

자화는 급격히 커진다. 이것은 180°자벽속의 성분원자들의 위치가 국부적인 구조완화과정을 통하여 자유에너지 최소의 배치를 하여 180° 자벽 자신이 potential well을 형성하여 그 위치에 pinning 되어있다가 외부자기장  $H_o$ 에 의하여 변위해 가는 과정으로 설명된다.[5, 6] 임계점

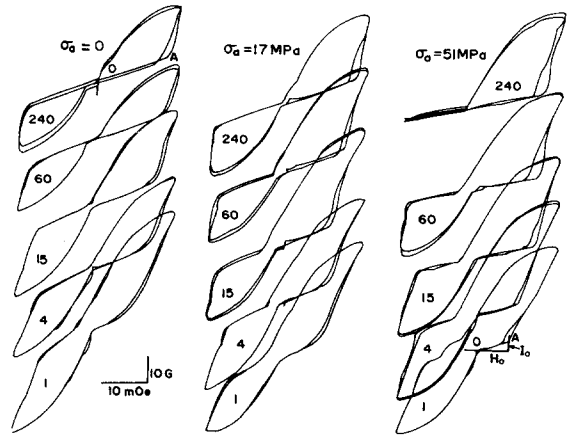


Fig. 5. The Variation of minor loops with the time t after A.C demagnetization and applied tension for the as quenched sample. The numbers in the loop show t.

A에서의 인가자기장  $H_o$ 를 안정화자기장(stabilization field)이라하며, 그때의 자화를  $I_o$ 라 할때  $I_o/H_o$ 는 초기자화율  $\chi$ 가 된다. 교류소자후의 시간 t가 증가하면  $H_o$ 는 증가하고  $\chi$ 는 감소한다. 그것은 180°자벽을 pinning하는 국부적 구조완화가 t에 따라 점차로 증가하기 때문이다. 열처리에 의하여 minor loop의 모양은 현저히 변화한다. 그 한 예를 그림 6과 그림 7에 표시한다.

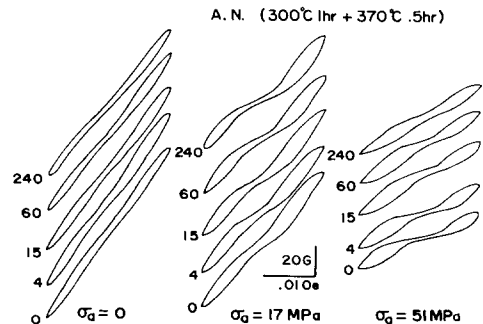


Fig. 6. Changes of the minor loops with annealing condition. The numbers at left bottom show the time after A.C demagnetization.

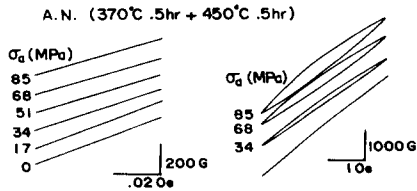


Fig. 7. Changes of the minor loops with applied tension of crystallized sample by annealing.

결정화 이전에는 뾰모양의 loop는 존속된다. 450 °C .5hr의 열처리에 의하여 결정화 되면 major loop에서 보는바와 같이 연자성은 악화되고 minor loop는 거의 직선이 되며 초자기화율은 크게 감소하여 보통의 다결정질 강자성체와 같이 된다.

4. 안정화 자기장 H<sub>o</sub>

안정화 자기장 H<sub>o</sub>의 교류소자후의 시간 t 및 인가장력 sigma<sub>a</sub>의 의존성은 그림 8과 같다. H<sub>o</sub>의 물리적인 의미는 다음과 같은 180°자벽의 운동방정식[7]에 의하여 알 수 있다.

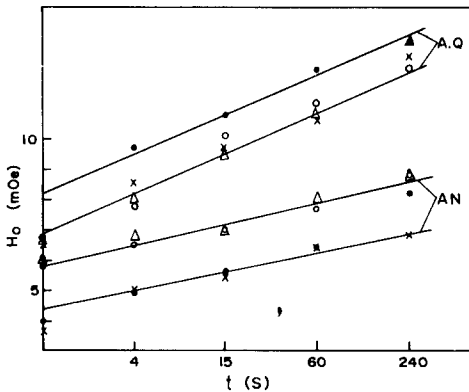


Fig. 8. Changes of stabilization field H<sub>o</sub> with time after A.C demagnetization and annealing. A.Q stand for as quenched, AN for annealing at 300 °C, 1 hr + 370 °C .5 hr.  
· sigma<sub>a</sub>=0 x: sigma<sub>a</sub>=17 MPa △:34 MPa ○:51 MPa

$$m_s \ddot{x} + b \dot{x} + ax = 2 I_s H \tag{1}$$

여기서 m<sub>s</sub>은 자벽의 단위면적당의 가상질량, b는 감쇠 상수, a는 복원력상수, x는 자벽의 좌표, H는 인가자기

장의 자벽에 대한 수직성분이며 2I<sub>s</sub>H는 자벽에 인가되는 단위 면적당의 구동력이다. 따라서 2I<sub>s</sub>H<sub>o</sub>는 자벽의 pinning을 벗어나는 임계 압력을 나타낸다. H<sub>o</sub>의 교류소자후의 시간 t에 대한 의존성의 실험식은 다음과 같다.

$$H_o(t) = H_o(1) + m \log t \tag{2}$$

여기서 m은 반 대수도표에서의 직선의 기울기이며 H<sub>o</sub>(1)은 t=1s 때의 H<sub>o</sub>의 값이다. 이것은 전형적인 Richter형 함수의 중간직선부[8]에 해당되며, 자기여효에 통상적으로 나타나는 함수형이다. A.Q 상태에서, H<sub>o</sub>(1)과 m가 크며 외부장력 sigma<sub>a</sub>에 의하여 H<sub>o</sub>(1)은 증가하나 m은 거의 같다. 열처리에 의하여 H<sub>o</sub>(1)는 감소하고 m도 감소한다. 열처리상태에서 sigma<sub>a</sub>의 인가는 A.Q때와 달리 H<sub>o</sub>(1)을 증가시킨다. 이러한 경향은 major loop에서의 보자력 H<sub>c</sub>의 열처리 및 외부장력인가의 경향과 유사한점이 주목된다. H<sub>o</sub>(1), m, 2I<sub>s</sub>H<sub>o</sub>(1)등의 값을 표 2에 표시한다.

Table 2. Minor loop's characteristics of the sample.

sigma <sub>a</sub> (MPa)	H <sub>o</sub> (1) mOe		m		2I <sub>s</sub> H <sub>o</sub> (1) 10 <sup>5</sup> Nm <sup>2</sup>		r(1) 10 <sup>4</sup>		n 10 <sup>5</sup>	
	0	51	0	51	0	51	0	51	0	51
AQ	6.6	6.0	2.3	2.3	25	23	4.4	8.4	9.6	31
AN	4.0	5.8	1.2	1.2	15	22	2.3	7.2	2.8	29

H<sub>o</sub>(1): stabilization field at t=1s. m = ∂H<sub>o</sub>/∂(logt)

2I<sub>s</sub>H<sub>o</sub>(1): driving pressure to domain wall.

r(1): reluctivity at t=1s. n = ∂r/∂(logt)

AQ : as quenched.

AN : annealed, 300 °C 1 hr+370 °C .5 hr

5. 초자기화 및 disaccommodation

Minor loop에서 초자기화율 X의 역수인 r은 reluctivity이며 r의 교류소자후의 시간 t, 인가장력 sigma<sub>a</sub>, 열처리등에 관한 의존성은 그림 9와 같다.

r은 log t에 직선적으로 증가하며 다음식이 성립한다.

$$r(t) = r(1) + n \log t \tag{3}$$

이것은 H<sub>o</sub>(t)의 시간변화와 같으며 DA가 있음을 알 수 있다. 여기서 r(1)은 교류소자 1초후의 reluctivity이며 sigma<sub>a</sub>가 51 MPa 때 300 °C까지의 열처리는 r(1)과 n을 감소시키나 370 °C의 열처리에 의하여 r(1)은 감소하나 n은 증가시키고 있다. r(1), n의 값을 표 2에 표시한다.

6. 180° 자벽의 두께 δ

최초의 Barkhausen 도약이 일어나는 인가자기장 H<sub>o</sub>

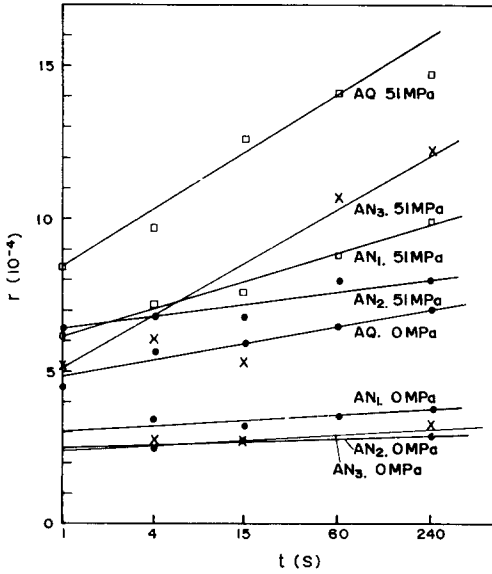


Fig. 9. Changes of reluctivity  $r$  with time  $t$  after A.C demagnetization, applied tension and annealing. The meaning of A.Q, AN<sub>1</sub>, AN<sub>2</sub>, AN<sub>3</sub> are the same as in Fig. 1

에 대한 자화  $I_0$ 에 의하여  $180^\circ$  자벽의 두께  $\delta$ 는 다음식으로 계산된다[9].

$$N\delta = wH_0 / 2 I_s \quad (4)$$

여기서  $w$ 는 시료의 폭,  $I_s$ 는 포화자화이며  $N$ 은  $180^\circ$  자벽의 수이나 이 실험의 해석에서는 리본의 폭이 1mm로 작아서  $N=1$ 로 가정하였다. [2]  $\delta$ 의 교류소자후의 시간  $t$ , 인가장력  $\sigma_a$ , 열처리효과등을 그림 10에 표시한다.  $\sigma_a$ 에 의하여  $\delta$ 는 단조감소하며  $t$ 가 증가하면 약간 증가하고 열처리에 의하여  $\delta$ 는 증가한다.

### 7. 특성 상호간의 관계

이상의 실험결과를 해석하기 위하여 자화율  $\chi$  또는 그 역수  $r$ 의 이론적 근거를 살펴본다. 자화과정은 회전자화와 자벽의 이동으로 분류된다. 단일자구, 일축이방성의 경우  $\chi = I_s^2 / 2\mu_0 K_u$  [10]이 성립하며,  $180^\circ$  자벽의 병진이동의 경우는  $\chi = 2I_s^2 / 9\mu_0 \pi^2 \lambda \sigma$  [11]이다. 여기서  $\mu_0$ 는 진공의 투자율,  $\lambda$ 는 자기변형,  $\sigma$ 는 실효응력,  $K_u$ 는 일축이방성상수이다. 실제의 자화과정은 회전자화와 자벽이동이 복합적으로 일어나며 자구의 분포도 다양하

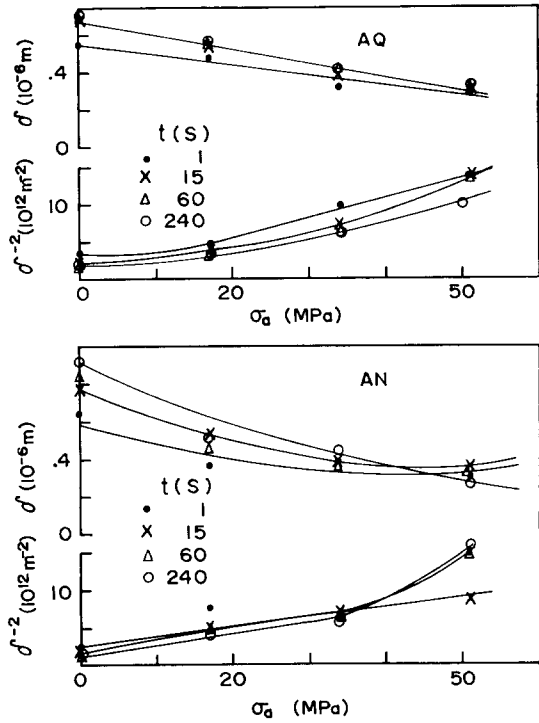


Fig. 10. Changes of  $180^\circ$  domain wall thickness with applied tension  $\sigma_a$ , time  $t$  after A.C demagnetization and annealing.

여 정확한 해석적 표현은 어렵다. 현상론적으로 보면 상기 두 식에서  $I_s^2 / 2\mu_0$ 는 정자기에너지 밀도  $E_m$ 이며  $K_u$ 와  $(3/2)\lambda\sigma$ 는 결정이방성 에너지 밀도 및 자기변형에 의한 이방성에너지 밀도인 점으로 보아 다음의 모형을 가정한다.

$$x = \frac{I_s^2 / 2\mu_0}{aK_u + b(\frac{3}{2}\lambda\sigma)} \equiv \frac{E_m}{aE_A + bE_\lambda} \quad (5)$$

여기서  $a$ 와  $b$ 는 결정이방성과 자기변형 이방성과의 상대적 비중계수이며  $E_A$ 는 결정이방성에너지밀도,  $E_\lambda$ 는 자기변형이방성 에너지 밀도이다.  $a$ 와  $b$ 를 구하기 위하여  $\chi$ 의 역수를  $r$ 라 하면

$$r = [aK_u(1) + aK_u(t) + b\lambda\sigma_0 + b\lambda\sigma_e] / E_m \quad (6)$$

라 가정한다. 여기서  $K_u(1)$ 은 교류소자 1초후의  $K_u$ 이고  $K_u(t)$ 는 교류소자  $t$ 초후의 유도이방성상수,  $\sigma_0$ 는 내부응력,  $\sigma_e$ 는 인가장력이다. (6)식에 있는  $a, b, \sigma_0, K_u(t)$  등

은 다음과 같이하여 구할수 있다.  $b$ 는  $\frac{\partial r}{\partial a_r} = \frac{b}{E_m} \lambda$ 에 의하여  $b = \frac{E_m}{\lambda} \cdot \frac{\partial r}{\partial a_r}$ 로 구할수 있다. 또  $\frac{\partial r}{\partial t} = \frac{a}{E_m} \cdot \frac{\partial K_i}{\partial t}$ 와 실험식  $r = n \log t + n(1)$ 에 의하여

$$K_i(t) = n E_m \log t/a \quad (7)$$

이 성립된다.  $t=1s$  때  $K_i=0$ 으로 가정하고, 열처리에 의하여  $\sigma_o=0$ 이 된다고 하면 (6)식에 의하여  $a$ 는

$$a = E_m \cdot r(t=1, \sigma_o=0, \sigma_e=0) / K_u \quad (8)$$

에 의하여 구할수 있다, 또  $\sigma_o$ 는 (6)식에서  $t=1s$ ,  $\sigma_e=0$ 으로 두면

$$\sigma_o = E_m \cdot r(t=1, \sigma_e=0) / b\lambda \quad (9)$$

에 의하여 얻을수 있다. 그 결과는 표 3과 같다.

Table 3. Several constants in minor loop analysis.

	$E_m$	$K_u$	$b$	$a$	$\sigma_o$	$K_i$
단위	kJ/m <sup>3</sup>	kJ/m <sup>3</sup>	%	%	MPa	J/m <sup>3</sup>
$\sigma_o$ (MPa)	-	-	t=1s	-	-	0 51
AQ	870	1.2	26	16	30	120 400
AN	910	1.0	30	16	5.4	38 390

- $E_m$  : magnetostatic energy density.
- $a$  : weighing factor of  $K_u$  to  $r$ ,
- $b$  : weighing factor of  $\lambda\sigma$  to  $r$ .
- $K_i$  : induced inisotropy for  $t=240$  s.

이 분석에 의하여 AQ시 내부응력  $\sigma_o$ 는 30 MPa 정도 이고, 300℃ .1hr+370℃ .5hr의 열처리에 의하여 5MPa 정도로 완하되며 소자후 240초간의 유도이방성에너지는 인가장력 0일때 AQ는 120 J/m<sup>3</sup>인데 열처리에 의하여 40 J/m<sup>3</sup> 정도로 감소하며 장력인가는  $K_i$ 를 크게 증가하게 함을 알수 있다. 180°자벽의 두께  $\delta$ 는 이론적 계산에 의하여  $\delta = 2\pi(A/K)^{1/2}$ 이 성립한다. 여기서  $K$ 는 결정 이방성상수  $K_u$ , 유도이방성상수  $K_i$ , 자기변형 이방성 에너지 (3/2)  $\lambda\sigma$  등을 포함하는 광의의 이방성상수이므로 다음식이 성립된다.

$$\delta^{-2} = [aK_u + aK_i(t) + b\lambda\sigma_o + b\lambda\sigma_e] / 4\pi^2 A \quad (10)$$

그림 10에서 보면  $\delta^{-2}$  대  $\sigma_e$ 의 관계는 거의 직선이 되어 대체적으로 (10)식이 성립하고 있다. 그러나  $\sigma_e$ 가 커지면 직선관계에서 벗어나고 있다.

#### IV. 결론

철계 비정질합금중의 대표적인 Fe<sub>80</sub>Bi<sub>15</sub>Si<sub>5</sub> 합금을 제작하여 연자성의 기초특성인 포화자화, 초자화율, 자기 이방성, 자기변형, 180°자벽의 두께등의 인가장력, 열처리, 시간변화에 대한 많은 자료가 얻어졌으며 자화율의 해석적 계산 모형에 의하여 자화율에 대한 각종 이방성의 기여도와 내부응력등을 산출하였다. 인가장력은 유도이방성을 크게 증가시키며 열처리에 의하여 내부응력이 완화된 시료에서 그 효과가 더욱 큰점은 투자율 여효의 원인에 관한 중요한 자료로 생각된다.

#### 참 고 문 헌

- [1] Y. H. Lee IEEE Trans Mag-23, pp.2131-3(1987).
- [2] Y. Yoshizawa, S. Oguma and K. Yamauchi, J. Appl. Phys. 64, pp.6044-6(1988).
- [3] 이용호, 이연숙, 신용돌, 노태환, 강일구 한국자기학회지 1, pp.30-6(1991).
- [4] 이용호, 신용돌, 이영희, 김희중, 강일구, 응용물리 2, pp.437-443(1989).
- [5] L. Neel, J. Phys. et Rad 13, 249(1952).
- [6] S. Chikazumi, Physics of Magnetism pp.295, John Wiley Co. New York (1964).
- [7] ibid. pp.349
- [8] ibid. pp.308
- [9] J. Bindels, J. Bijvoet and G. W. Rathenau, Physica 26, 163 (1960).
- [10] K. Ohta, 자기공학기초, pp.294 Kyoritsu Co. Tokyo (1977).
- [11] ibid. pp.301
- [12] J. W. Schilling, AIP. Conf. Proc. 29, 222 (1975) also see [1].

# Study on Basic Magnetic Characteristics in New Magnetic Materials

## (2) Magnetic Properties of Amorphous $\text{Fe}_{80}\text{B}_{15}\text{Si}_5$ alloy Measured with Pulse Method

Yong-Ho Lee, Yong-Dol Shin, In-Soo Kim  
and Yeon-Suk Lee

*Department of Physics, Jeonbuk National University,  
Jeonju 560-756 Korea*

Tae-Hwan Noh and I. K. Kang  
*Division of Metals, Korea Institute of Science  
and Technology, Seoul 136-791, Korea*

(Received 13 September 1991)

The basic soft magnetic characteristics of a typical Fe based amorphous  $\text{Fe}_{80}\text{B}_{15}\text{Si}_5$  alloy were measured with pulse method. Quantitative relations between magnetostriction, anisotropy energy, reluctivity were investigated. The relative contribution factor of magnetostrictive and uniaxial anisotropy energy to the reluctivity were calculated. The internal stress and induced anisotropy were estimated. A tension applied to the long axis of the sample greatly enhanced induced anisotropy.