

FeSiBNi 비정질 리본의 열처리 조건에 따른 미세구조가 직류중첩특성에 미치는 영향

장용익 · 김종렬

한양대학교 금속재료공학과
경기도 안산시 사1동 1271, 425-791

송용설

(주) 아모스
경기도 김포시 통진면 수삼리 189-4, 415-860

(1999년 9월 29일 받음, 1999년 12월 23일 최종수정본 받음)

단물법으로 제조된 비정질 $Fe_{79.7}Si_{9.2}B_{0.7}Ni_{1.4}$ 합금 리본의 직류중첩특성을 향상시키기 위하여 460 °C에서 열처리 시간에 따른 자기적 특성과 미세구조의 변화를 조사하였다. 직류중첩특성은 미세구조의 변화와 밀접한 연관성이 있음이 관찰되었다. α -Fe 결정립의 크기가 200~300 nm일 경우 가장 효과적으로 자벽 이동을 방해하여 최대 직류중첩특성을 나타내었다. 수지상정의 성장 형태와 분포는 2개의 영역으로 분리되어 나타나며, 이는 리본 제조 시 발생하는 리본 내 과냉도의 차이에 기인한 것이다.

I. 서 론

최근 전자산업은 에너지 절약을 위하여 부품의 소비전력과 크기를 최소화하고, 또한 단가를 낮추어 고부가가치를 창출하는데 전력을 기울이고 있다. 이러한 추세에 따라 전자부품은 고주파대로 그 사용영역이 급속히 확산되고 있으나 이는 부품의 노이즈를 증가시켜 부품의 특성 저하를 초래한다. 따라서 Fe계 비정질 합금으로 제작된 토로이달 코어의 노이즈를 최소화 하기 위해 합금 내부 비가역적인 자구 이동을 최대한 억제하고 자구의 회전에 의한 기여를 최대화하는 방법으로 직류중첩특성을 향상시키고자 노력하고 있다. 하지만 FeSiB계 비정질 합금 리본이 널리 사용 중임에도 불구하고 아직까지 자기적 특성과 미세구조의 상호연관성에 관한 연구는 미흡한 실정이다.

따라서, 본 연구에서는 고주파 특성 향상과 산화를 최소화 하기 위하여 Ni를 첨가한 $Fe_{79.7}Si_{9.2}B_{0.7}Ni_{1.4}$ 비정질 합금 리본의 미세구조를 제어하기 위하여 열처리를 하였으며, 열처리 조건에 따른 자기적 특성과 미세구조의 상호연관성을 조사하였다. 특히, 결정화 과정, 결정의 형상, 분포, 자구의 크기와 형태 등의 연구에 중점을 두었다.

II. 실험방법

$Fe_{79.7}Si_{9.2}B_{0.7}Ni_{1.4}$ 비정질 합금 리본은 단물법을 이용하

여 제조되었다(주)아모스 제조). 열처리에는 460 °C, 공기 중에서 실행되었으며 열처리 후 공냉시켰다. 시편은 토로이달 형태로 외경 4.3 mm, 내경 2.2 mm, 두께 1 mm이며, 열처리 전 · 후 리본 합금의 직류중첩 특성은 Impedance/Gain phase analyzer와 LCR 미터를 사용하여 200 kHz, 30 Ts, 진동전압 1 V의 조건에서 측정하였으며, 자기적 특성은 진동 시료형 지속계(VSM)를 사용하여 20 kOe의 인가자장 하에서 측정되었고, Core loss는 MMS-4001 Iron loss measuring system, 비저항은 4 단자법으로 측정하였다. 제조된 합금의 열처리 시간에 따른 결정구조 변화를 관찰하기 위해 $CuK\alpha$ 특성선을 사용한 X선 회절 분석을 하였으며 전체적인 결정분포와 결정화 정도를 확인하기 위하여 Potassium metabisulfite에 에칭 시킨 후 주사전자 현미경으로, 결정화, 결정의 성장, 자구 및 미세구조를 관찰하기 위하여 ion milling으로 제작된 시편을 투과전자 현미경으로 관찰하였다.

III. 결과 및 고찰

3.1. 자기적 특성 분석

Fig. 1는 열처리 시간과 인가자장에 의한 직류중첩특성의 변화를 나타내고 있다. 직류중첩특성은 비정질 상태에서 열처리 시간이 증가함에 따라 초기에 감소한 후 1시간 열처리까지는 거의 변화하지 않았다. 그러나 2.5 시간 이

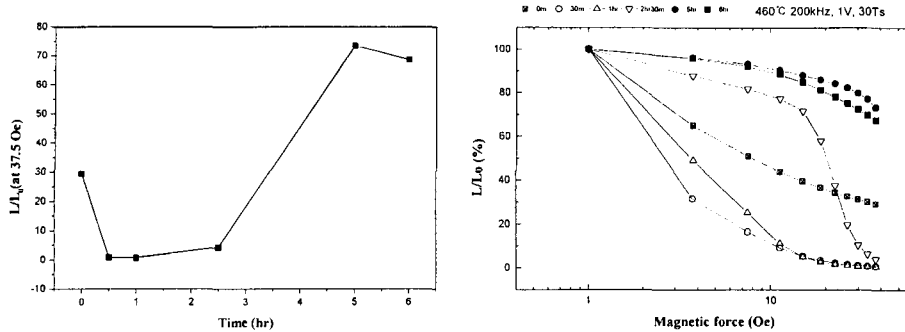


Fig. 1. The changes of D.C. Bias characters for FeSiBNi amorphous alloy annealed at 460 °C as a function of annealing time and magnetic force.

후 급격히 증가하여 5 시간에 최고 값에 도달하며 6 시간에는 감소함이 관찰되었다. 초기 감소 원인은 리본 제조시 급냉 응고에 의해 내부에 발생한 응력이 완화되는 과정[1]에서 발생한 것이다. 직류중첩특성의 변화는 열처리 시간에 따른 비정질 합금 리본의 결정화와 밀접한 관련이 있음을 알 수 있다.

Fig. 2는 열처리 시간에 따른 자기적 특성들의 변화를 나타내고 있다. 자심 손실은 초기에 급격히 감소한 후 열처리 시간이 증가함에 따라 서서히 증가하였다. 이는 직류중첩특성의 변화에서 예측한 결과와 일치하게 초기 응력 완화 효과에 의한 것이다. 보자력은 응력 완화에 의해 초기에 감소한 후 자심 손실과 비슷한 경향으로 증가하였다

[2,3]. 투자율과 직류중첩특성은 반비례의 관계를 나타내고 있다. 비저항은 초기에 급격히 감소한 후 서서히 감소하고 있으므로 결정화가 진행되고 있음을 나타내고 있다[4].

3.2. 미세구조 분석

Fig. 3은 460 °C에서 열처리 시간에 따른 결정화 과정을 나타내는 XRD회절패턴이다. 급냉 응고 상태와 0.5 시간 열처리한 상태는 완전한 비정질을 나타내고 있으나 1 시간에 이르면 α-Fe의 (110)피크가 나타나기 시작하였고 열처리 시간이 증가함에 따라 피크의 강도가 연속적으로 증가함이 관찰되었다. 이러한 결정화 과정은 앞에서 설명한 자기적 특성의 결과들(보자력, 자심 손실, 비저항 등)과

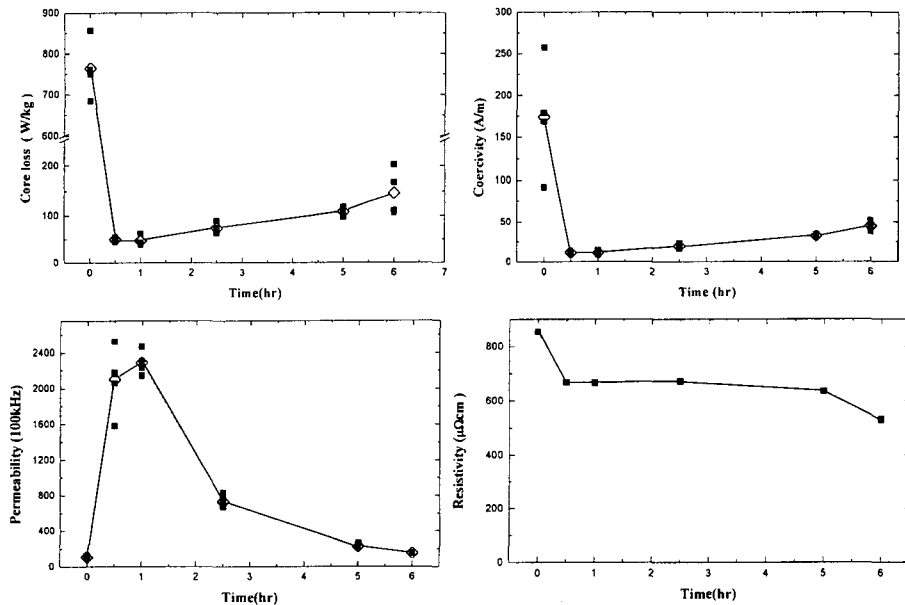


Fig. 2. The changes of magnetic properties for FeSiBNi amorphous alloy annealed at 460 °C as a function of annealing time.

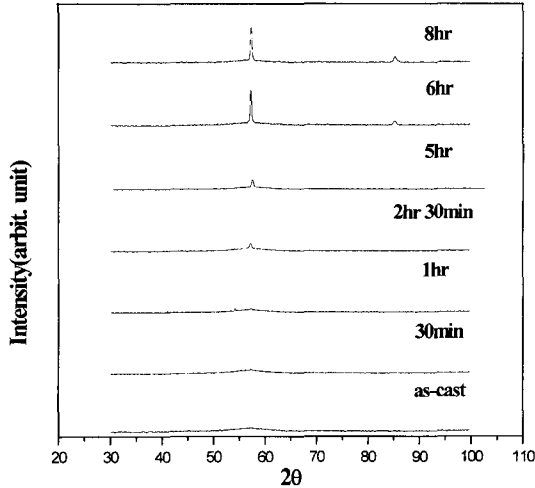


Fig. 3. The variations of XRD patterns of FeSiBNi amorphous alloy with annealing time at 460 °C.

거의 일치함을 알 수 있다[5]. 1 시간 열처리한 경우 α -Fe의 핵 생성이 발생함에 따라 직류충특성이 증가하기 시작하는 것으로 보아 석출물의 생성이 특성 변화의 중요한 요인으로 작용하는 것을 알 수 있다.

Fig. 4는 460 °C에서 5 시간 열처리한 경우 나타나는 리본의 주사전자현미경 사진으로, 미세한 수지상정이 조밀하게 분포되어 있는 영역(A)와 조대한 수지상정이 비조밀하게 분포되어 있는 영역(B)로 구분되어 존재함을 관찰할 수 있었다. 이러한 미세구조와 분포의 차이는 비정질 합금 리본의 제조 시 발생하는 리본 내 과냉도의 차이에서 기인한 것으로 판단된다.

급냉 용고 상태와 0.5 시간 열처리한 경우 완전한 비정질 상태임이 투과전자 현미경에서도 확인되었다. 1 시간 열처리한 경우 국부적인 영역에서 50~100 nm 크기의 α -Fe 핵이 생성되었으나 전체적인 영역은 여전히 비정질 상태를 유지하고 있었다. 국부적인 핵 생성의 원인은 합금 리본 제작 시 냉각 윗 과의 접촉편차에서 발생하는 과냉도의 차이에 의한 것으로 생각된다.

Fig. 5는 2.5 시간과 5 시간 열처리한 경우 관찰되는 미세구조와 회절패턴이다. 2.5 시간 열처리한 경우, A 영역에서는 1 시간 열처리한 경우 생성되었던 핵이 성장하여 약 200~300 nm의 크기를 이루고 있었으나 그 이외의 영역은 여전히 비정질 상태를 유지하고 있었다.

5 시간 열처리한 경우, A 영역과 B 영역 모두에서 결정립의 생성과 성장이 발생함을 관찰할 수 있었다. A 영역

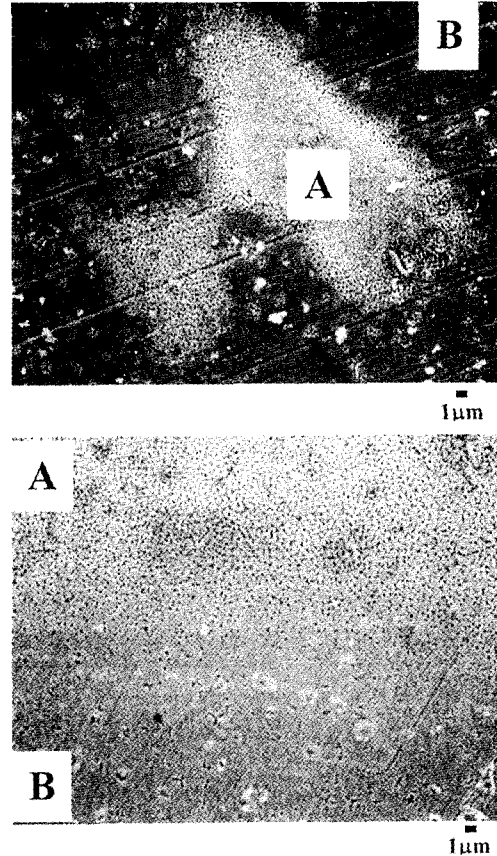


Fig. 4. SEM morphologies of Fe_{79.7}Si_{9.2}B_{9.7}Ni_{1.4} alloy annealed at 460 °C for 5 hr.

에서는 조밀한 분포로 약 200~500 nm의 크기를 갖는 3 개 가지 형태의 수지상정이 존재하였으며, B 영역에서는 비조밀한 분포로 약 2~3 μm의 크기를 갖는 3개 가지와 4개 가지 형태가 공존함이 관찰되었다. 두 영역에서 성장한 수지상정의 방향은 모두 영역에 상관없이 <110>이었으며, 이는 Fig. 6에서 확인할 수 있다.

자벽의 이동은 결정화 과정에서 생성된 결정립에 의해 억제 된다. 이와 같은 현상을 자벽 고착현상이라고 한다. 직류충특성 특성의 향상은 이러한 자벽 고착 현상에 의해 형성된 미세한 크기의 자구에 의한 것으로 판단 된다. 그러나 비정질 기지상에서 초기에 결정립의 생성과 성장이 국부적인 영역에서 발생하였으나 직류충특성이 향상되지 않았다. 그 이유는 다음과 같다. Fe를 기지상으로 하는 경우 자벽의 폭은 간단하게 아래의 식으로 계산이 된다.

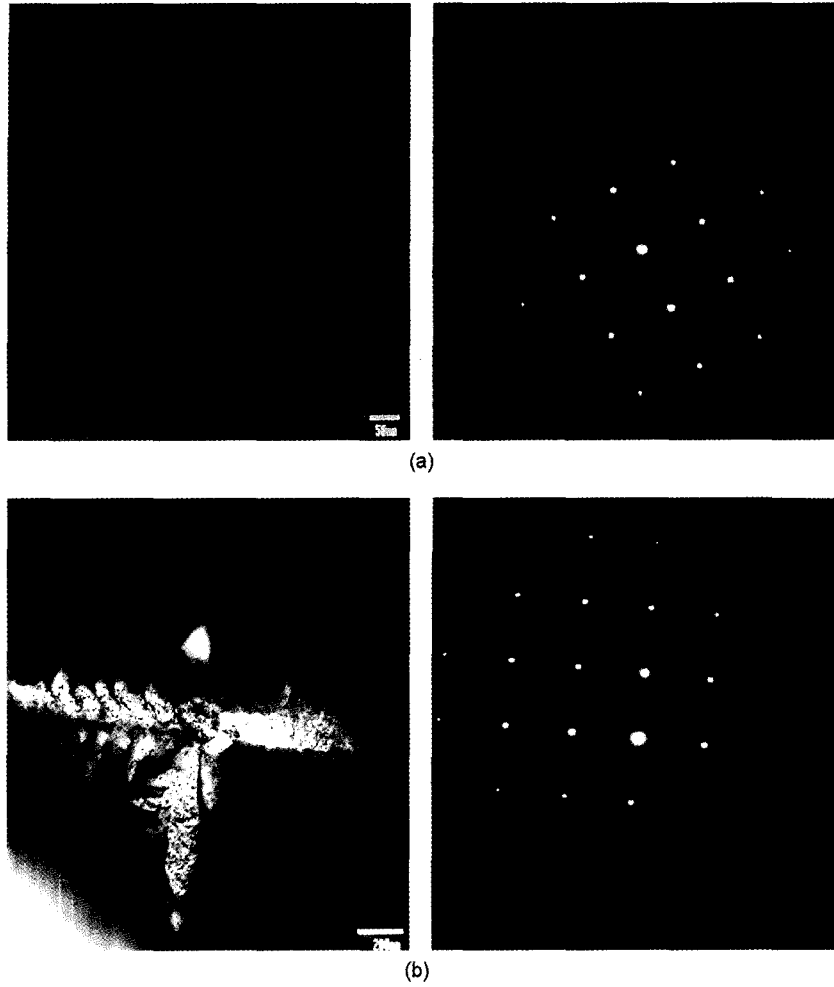


Fig. 5. The TEM microstructures and SAD patterns of FeSiBNi amorphous alloy annealed at 460 °C (a) for 2.5 hr, (b) for 5 hr.

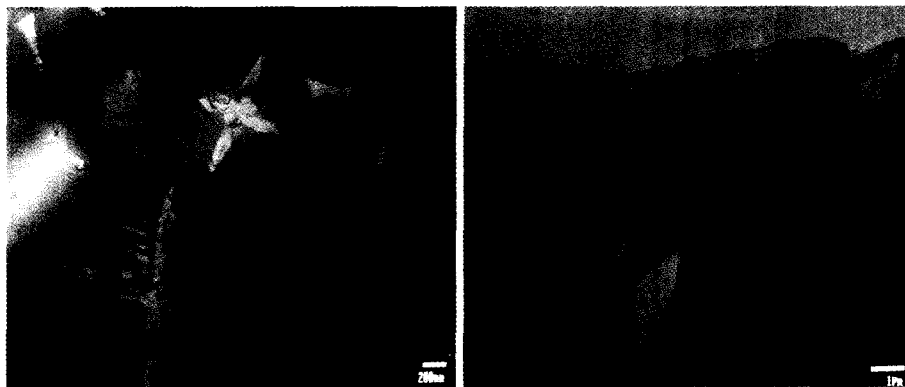


Fig. 6. The microstructures of FeSiBNi amorphous alloy annealed for 5 hr at 500 °C.

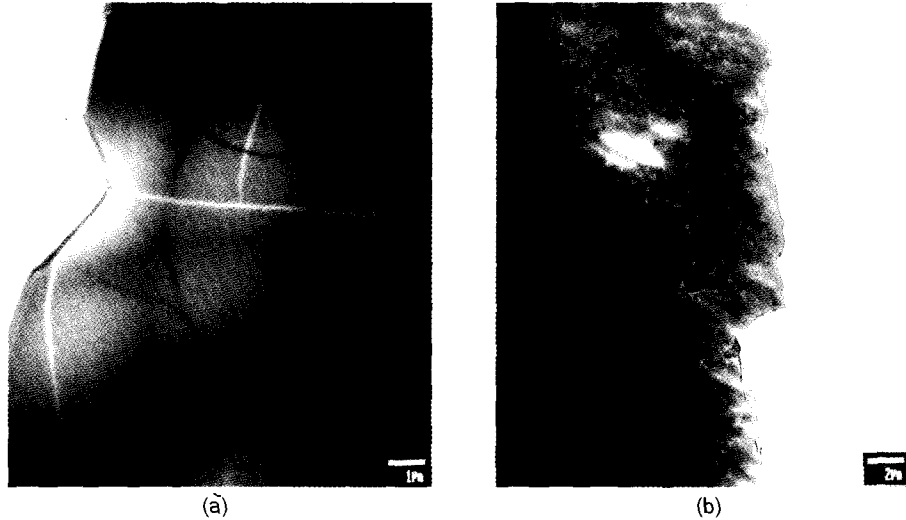


Fig. 7. Magnetic domain morphologies of FeSiBNi amorphous alloy. (a) as-cast, (b) annealed for 5 hr at 460 °C.

$$\delta \sim \sqrt{A/K_u}$$

A : 교환상수 ($\sim 10^{-11}$ J/m)

K_u : 등축이방성 상수 (~ 250 J/m³)

위의 계산에 의하면 자벽의 폭은 약 200 nm가 된다. 자벽 고착 현상은 생성된 결정립의 크기가 200 nm 이상일 경우 지배적으로 나타난다는 것이다. 급냉 응고 상태에서는 내부에 존재하는 응력에 의해 자벽의 이동이 억제된다. 0.5 시간 열처리한 경우는 비정질이므로 비정질 상태와 동일한 자구를 가지고 있으며, 1 시간 열처리한 경우에는 극부적인 영역에서 생성된 결정립의 크기가 200 nm보다 작기 때문에 거의 자벽 고착 효과가 나타나지 않는다. 즉 내부에 존재하던 응력도 완화되었으므로 자벽이 쉽게 이동할 수 있게 된다. 이러한 이유로 0.5 시간과 1 시간 열처

리한 경우의 직류점특성이 작은 값을 가지게 되는 것이다. 2.5 시간 열처리의 경우는 자벽 고착 효과가 나타날 수 있는 크기로 결정립이 성장하였기 때문에 직류점특성이 증가하기 시작하는 것이다. 그러나 대부분의 영역은 여전히 비정질 상태를 유지하고 있으므로 증가의 폭은 급격하게 나타나지는 않는다.

Fig. 7은 급냉 응고 상태에서의 자구와 460 °C에서 5 시간 열처리한 경우 나타나는 자구의 사진이다. 급냉 응고 상태의 경우 자구의 크기가 약 4~6 μm인 반면에 5 시간 열처리한 경우 A 영역은 조밀하게 생성된 수지상정을 따라서 자벽이 존재하였으며 그 크기가 약 0.5~1.5 μm로 미세화 되었음을 확인할 수 있었다. 5 시간에서 최대 직류점특성을 나타내는 이유는 A, B 두 영역에서 자벽의 이동을 방해하는 역할을 하는 수지상정에 의해 자구 미세화 효

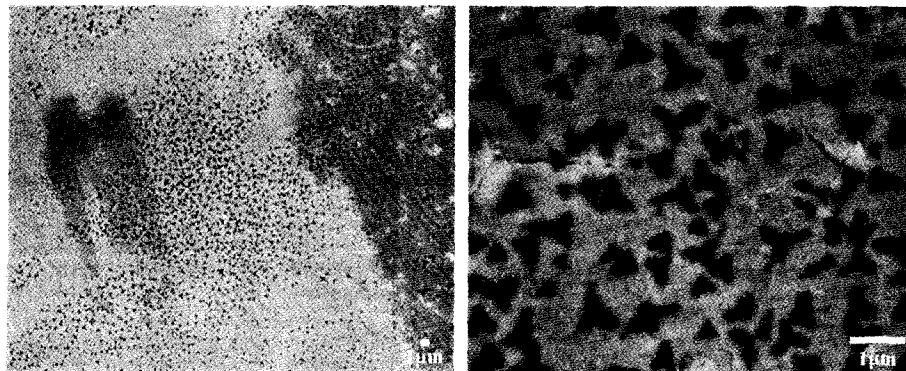


Fig. 8. SEM morphologies of Fe_{79.7}Si_{9.2}B_{9.7}Ni_{1.4} alloy annealed at 460 °C for 6 hr.

과[6]가 극대화되기 때문이다.

Fig. 8은 6 시간 열처리한 경우 나타나는 미세구조의 사진이다. 결정립이 성장하면서 입계 크기보다 작은 결정립들은 소멸되는 Ostwald ripening 효과가 발생하게 되므로 수지상정의 크기가 5 시간의 경우보다 증가하였으며, 또한 조밀도 역시 감소함을 확인할 수 있었다. 이러한 조밀한 분포의 감소에 의하여 자구의 크기가 증가하게 되므로 직류중첩특성의 감소가 발생하게 된다.

IV. 결 론

고주파용 연자성 재료로 사용이 가능한 Fe_{79.7}Si_{9.2}B_{9.7}Ni_{1.4} 비정질 리본 합금의 열처리 조건에 따른 결정화 거동과 직류중첩 특성의 변화를 미세구조적으로 분석하여 다음과 같은 결론을 얻었다. 460 °C에서 5 시간 열처리한 경우, 조밀하게 생성된 200~500 nm 크기의 α-Fe는 자벽 이동의 방해물로 작용하여 자구 미세화를 일으키는 것이 관찰되었고, 이러한 원인에 의해 최대 직류 중첩 특성을 나타나게 되는 것으로 생각된다. 냉각속도의 차이에 의한 합금 리본의 결정화는 결정립의 성장 형태와 분포의 차이에 의

해 2개의 영역으로 구분되어지나 수지상정의 성장방향은 모두 <110>이다.

후 기

본 논문은 한양대학교의 연구비 지원과 (주)아모스의 공동연구로 진행되었으며, 이에 감사드립니다.

참고문헌

- [1] H. H. Liebermann, J. Marti, R. J. Martis, and C. P. Wong, Metall. Trans. **20A**, 63(1989).
- [2] F. E. Luborsky, H. H. Libermann, and J. L. Walter : in Conference on Metallic Glasses : Science Technology, C. Hargitai, I. Bakonyi, and T. Kemeny, eds., Central Research Institute for Physics, Budapest, Hungary, **1**, 203(1981).
- [3] F. E. Luborsky, IEEE Trans. Magn. **MAG-11**, 1644(1975).
- [4] H. Karamon, J. Appl. Phys., **63**, 4306(1988).
- [5] W. J. Yang, C. S. Lin, and Y. C. Chen, in Preceedings of the 1989 Conference of the Chinese Society for Materials Science, 1989, p. 261.
- [6] C. S. Tsai, B. J. Li, K. L. Jean, and C. S. Lin., J. Appl. Phys. **67**, 5586(1990).

Microstructural Effects on DC Bias Characters in FeSiBNi Amorphous Ribbon

Y. I. Jang and J. Kim

Department of Metallurgy and Materials Engineering, Hanyang University, Ansan 425-791, Korea

Y. S. Song

AMOS Co., Ltd. 189-4, Suchamri Tongjinmyun, Kimpo 415-860, Korea

(Received 29 September 1999, in final form 23 December 1999)

Amorphous Fe_{79.7}Si_{9.2}B_{9.7}Ni_{1.4} ribbon alloys were fabricated by a single roll method. To enhance D. C. bias properties, the magnetic and micro-structural changes have been investigated as the variation of annealing time and condition. The D. C. bias properties were found to be directly related to micro-structural changes. Primary α-Fe dendrites with 200~300 nm showed the best D. C. bias properties, which resulted from the magnetic domain wall pinning effect. Due to the differences of cooling rate, the growth shape and distribution of the dendrites is divided into two areas.