

## Variation of microstructures and magnetic properties of nanocomposite Nd-Fe-B alloys by small cobalt and dysprosium additions

Division of Materials and Chemical Eng., Sun Moon Univ.: Moon-Bae Kim\*, J. H. Park, D. H. Lee and Taesuk Jang

### 1. 서 론

Tetragonal 구조를 갖는 정량적  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  ( $\sim\text{Nd}_{12}\text{Fe}_{82}\text{B}_6$ ) 화합물에서의 Nd 양보다 적은 양의 Nd를 함유하는 Nd-Fe-B 합금에서는, 일반적으로 입자크기가 큰 연자성  $\alpha\text{-Fe}$ 가 과다하게 존재하면서 외부에서 가해주는 자장에 대해 강자성  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 와 별개의 자기적 거동을 보여주기 때문에, 보자력이 아주 적어 실용성이 없다. 그러나 이러한 합금을 급랭응고하여 미세 결정화하거나, 비정질화한 후 적절히 열처리 해주면  $\alpha\text{-Fe}$ 와  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  입자가 나노화하면서 이들 사이에 상호교환작용이 일어나 등방성 상태에서도  $M_s/2$  보다 큰 잔류자화와 함께 적절한 크기의 보자력도 얻을 수 있다. 그러나 이 합금의 실용화를 위해서는 보자력을 보다 증가시키고 안정화시킬 필요가 있다. 본 연구에서는 이  $\alpha\text{-Fe}$ 기 나노복합 Nd-Fe-B 합금의 자기적 특성 향상을 도모하기 위하여,  $\text{Nd}_9\text{Fe}_{84}\text{B}_7$ 의 기본조성을 갖는 합금에 소량의 Co(1.5 ~ 3.0 at.%)와 Dy(0.3 ~ 1.5 at.%)를 단독 또는 복합 첨가하여 급랭응고하고 다양한 조건에서 열처리를 실시한 후, 미세구조와 자기적 성질의 변화를 조사하였다.

### 2. 실험방법

소량의 Co와 Dy를 각각 또는 복합 첨가한  $\text{Nd}_9\text{Fe}_{84-x}\text{Co}_x\text{B}_7$  ( $x = 0, 1.5, 2.0, 3.0$  at.%),  $\text{Nd}_{9-y}\text{Dy}_y\text{Fe}_{84}\text{B}_7$  ( $y = 0, 0.3, 0.5, 1.0, 1.5$  at.%), 또는  $\text{Nd}_{7.5}\text{Dy}_{1.5}\text{Fe}_{84-x}\text{Co}_x\text{B}_7$  ( $x = 0, 1.5, 2.0, 3.0$  at.%)를 목표조성으로 하는 리본 합금들을 Ar 분위기 하에서 40 m/s로 회전하는 직경 200 mm의 Cu wheel에 노즐( $\Psi = 0.5$  mm)을 통하여 용탕을 쏘아 제조하였다. 제조된 리본 합금들을 700 ~ 750 °C의 범위에서 5 ~ 15 분간 열처리 한 후, 이들 원소의 첨가 및 열처리 조건의 변화가 nanocomposite 합금의 상 및 미세조직 형성에 미치는 영향을 DTA, XRD, TEM, FESEM 등을 이용하여 조사하였다. 자기적 특성은 상온에서 최대 인가자장이 20 kOe인 VSM을 이용하여, 합금리본 몇 개를 서로 평행하게 쌓아 고정시킨 후 리본의 길이 방향으로 리본 표면에 평행하게 자장을 인가하면서 측정하였으며, 시편 형상에 따른 demagnetization factor는 고려하지 않았다.

### 3. 실험결과 및 고찰

DTA 분석 결과, 40 m/s에서 제조된 비정질 합금에서의 결정화는 크게 두 단계에 걸쳐 일어나, 연자성상이 먼저 형성된 다음 강자성  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 가 석출되는 형태로 진행되는 것을 알 수 있었다. 그러나 Co나 Dy가 첨가되지 않은 합금에서는  $\alpha\text{-Fe}$ 와 준안정상인 1:7 (TbCu<sub>7</sub> type) 상이 동시에 형성된 반면,

Co나 Dy가 첨가된 후에는 서로 다른 온도에서 형성되었다. 전반적으로 Co 첨가는 상전이 온도들을 낮추는 반면, Dy 첨가는 상전이 온도들을 상승시키는 경향을 보였다. 한편 Co나 Dy의 첨가는 준안정상인 1:7을 안정화시켜, 700 °C에서도 완전히 제거되지 않고 자기적 특성을 저하시키는 요인으로 작용하였으며, 725 °C 이상일 때 비로소 완전히 제거되었다. 그러나 이들의 첨가에 의해 형성된 또 다른 상인 Fe<sub>3</sub>B는 Co가 2.0 at%, 또는 Dy가 0.5 at% 이상 첨가되었을 경우 750 °C에서도 제거되지 않아 비록 적은 양이기는 하지만 Co나 Dy의 첨가에 의해 안정화함을 알 수 있었다. Co 첨가량의 변화에 따른 α-Fe와 Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 양의 변화는 뚜렷하게 나타나지 않았으나, Dy를 첨가하였을 때에는 첨가량이 증가할수록 Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B의 양이 증가하는 경향을 보였다. 또한 Dy를 첨가한 합금의 결정립들이 Co를 첨가한 합금의 결정립들보다 일반적으로 미세하였다.

자기적 특성은 700 ~ 750 °C의 범위에서 10 ~ 12분간 열처리하였을 때, 전반적으로 우수하게 나타났으며, 이들의  $m_r(M_r/M_s)$  값은 모두 0.68 이상이었다. 거시적으로 보았을 때, Co 첨가는 잔류자화의 향상에 더 크게 기여하였으며, Dy 첨가는 보자력의 향상에 기여하였다. 따라서 Co와 Dy를 복합 첨가하였을 때에는 보자력과 잔류자화에 서로 상호 보완적인 영향을 미치는 것을 알 수 있었다. 지금까지 얻어진 최적 자기특성은 Co 첨가량이 3.0 at%일 때 725 °C에서 12분간 열처리하여 얻은  $H_c = 4.02$  kOe,  $B_r = 12.35$  kG,  $(BH)_{max} = 15.42$  MGOe,  $m_r = 0.72$ 와, Dy 첨가량이 1.5 at%일 때 750 °C에서 12분간 열처리하여 얻은  $H_c = 5.23$  kOe,  $B_r = 11.34$  kG,  $(BH)_{max} = 15.48$  MGOe,  $m_r = 0.72$ , 그리고 Dy와 Co를 1.5 at%씩 복합첨가하고 725 °C에서 12분간 열처리하여 얻은  $H_c = 4.85$  kOe,  $B_r = 11.32$  kG,  $(BH)_{max} = 15.73$  MGOe,  $m_r = 0.73$ 이다.

#### 4. 결 론

α-Fe기 나노복합 합금에 Co나 Dy를 소량 첨가하였을 경우, 비정질 합금의 결정화 과정이 복잡해지면서 준안정상인 1:7이나 연자정상인 Fe<sub>3</sub>B가 안정화되는 경향을 보였다. 또한 Co가 첨가되면 결정화 온도들이 하락하는 반면 Dy가 첨가되면 상승하였다. 이것은 Co가 첨가된 합금에서는 입자성장이 일어날 가능성이 크고, Dy가 첨가된 합금에서는 핵형성의 증가로 인해 결정립이 미세해질 가능성이 큰 것을 암시하는 것으로, 실제로 Dy를 첨가한 합금의 결정립들이 Co를 첨가한 합금의 결정립들보다 미세하였다. 일반적으로 Co 첨가는 잔류자화의 향상에 기여하고 Dy 첨가는 보자력의 향상에 기여하여, Co와 Dy를 복합 첨가하였을 때에는 보자력과 잔류자화에 서로 상호 보완적인 영향을 미치는 것을 알 수 있었다. 그러나 지금까지 얻은 최대 보자력은 5.23 kOe로서, 합금의 기본 조성을 바꾸지 않는 한 더 이상의 보자력 향상은 기대하기 어려움을 알 수 있었다.

#### 5. 참고문헌

- [1] A. Manaf, M. Al-Khafaji, P.Z. Zhang, H.A. Davies, R.A. Buckley, and W.M. Rainforth; J. Magn. Mater. 128, 1993, p 307.
- [2] E.F. Kneller and R. Hawig; IEEE Trans. Magn. MAG-27, 1991, p 3588.
- [3] A.M. Gabay, A.G. Popov, V.S. Gaviko, Ye.V. Belozarov, and A.S. Yermolenko, J. Alloys Compd. 245, 1996, p 119.
- [4] Z. Chen, Y.-Zhang, Y. Ding, and G.C. Hadjipanayis, J. Appl. Phys. 85, 1999, p 5908.