Ga이 첨가된 Nd-Fe-B 소결자석의 1차 열처리 온도 변화에 따른 미세구조와 자기적 특성 최적화 연구

배경훈[1*], 이성래[1], 김효준[2], 이민우[3], 장태석[3]
[1]고려대학교 신소재공학과, 서울특별시 성북구 안암동 고려대학교, 136-713
[2]자화전자 R&D 센터, 충청북도 청원군 자화전자, 363-922
[3]선문대학교 신소재공학과, 충남 아산시 탕정면 선문대학교, 336-708

1. 서론

Nd-Fe-B 소결자석에서 연속적이고 균질한 비자성 Nd-rich 입계상 형성은 $Nd_2Fe_{14}B$(주상) 입자간의 자기적 결합과 계면에서의 결함을 효과적으로 감소시켜 잔류자화 감소 없이 보자력을 증가 시킬 수 있다 [1, 2]. Cu, Al, Ga과 같은 Nd-rich 상의 융점을 감소시킬 수 있는 원소 첨가는 열처리 이후, Nd-rich 입계상의 연속성 및 균질성을 향상 시킨다 [1-3]. 그러나, 소결자석 내에는 여전히 hexagonal-Nd_2O_3상과 Fe 함량이 높은 강자성 입계상이 형성되어 주상과의 격자부정합도와 주상간의 자기적 결합을 증가시켜 보자력 향상을 방해한다 [1, 2]. 소결자석에 Ga 첨가는 Nd-rich 상의 젖음성 향상 및 구조/화학적 결함을 개선하기 위한 효과적인 원소로 보고되어 있다 [3]. 특히, 특정 열처리 조건에 따라 강자성 입계상의 형성을 효과적으로 억제 시킬 수 있다 [3]. 하지만, 열처리 동안 Ga에 의한 Nd-rich 상의 미세구조 상변태 거동은 아직 명확하게 규명 되지 않았다. 본 연구에서는 Ga이 첨가된 Nd-Fe-B 소결자석의 최적의 자기적 특성을 갖는 1차 열처리 온도를 찾고 그 원인을 규명 하였다. 특히, 1차 열처리 온도 변화에 따른 미세구조 특성 및 상변태 거동을 통하여 Ga 첨가 효과를 연구 하였다.

2. 실험방법

Ga이 0.3 at.% 첨가된 $Nd_{28.5}Dy_{0.80}Fe_{bal.}B_{1.0}Ga_{0.3}Cu_{0.15}M_{1.87}$ (at.% M=Al, Co, Nb)인 Nd-Fe-B 소결자석을 준비하였다. 비교를 위해 Ga이 첨가되지 않은 소결자석(un-doped)을 함께 준비 하였다. 자석의 소결은 1070˚C에서 4시간동안 진행 하였다. 소결 이후, 850˚C~790˚C에서 2시간 동안 온도 변화를 주었다. 이후, 2차 열처리를 530℃에서 2시간, 그리고 3차 열처리를 500℃에서 2시간동안 고정 하여 진행 하였다. 미세구조와 자기적 특성 분석은 EPMA, Line profile (JXA-8500F) (Electron Probe Micro Analyzer), BH loop tracer을 이용하여 미세구조 변화 및 자기적 특성 변화를 관찰하였다. 온도에 따른 상변화 분석은 DSC (differential scanning calorimetry)를 이용하여 Ga 첨가에 따른 상변태 온도를 규명하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 1은 Ga이 doping된 (0.15 at.% Cu/ 0.3 at.% Ga) 자석과 un-doped (0.15 at.% Cu) 자석의 1차 열처리 온도 (850 -> 760˚C) 변화에 따른 자기적 특성 변화를 나타낸다. un-doped 자석은 850˚C에서 최적의 특성을 보였으며, 1차 열처리 온도가 감소함에 (850 -> 760°C) 따라 보자력도 (17 -> 16.4 kOe) 함께 감소하였다. 반면, Ga이 doping된 자석은 790˚C에서 가장 높은 보자력을(18.25 kOe) 나타내었으며, un-doped 자석보다 효과적으로 열처리 온도를 감소시킬 수 있었다. Ga이 doping된 자석의 잔류자화는 1차 열처리 온도 감소로 인해 회복 되었다. 미세구조 분석 결과, un-doped 자석은 1차 열처리 온도가 감소함에 따라, 구조/화학적 결함으로 작용하는, Cu 함량이 낮은 hexagonal-Nd_2O_3상과 Fe 함량이 높은 amorphous-$Nd_6(Fe,Cu)_{14}$상이 형성 되었다. 반면, 790˚C에서 1차 열처리 된 Ga이 doping된 자석은 Ga이 용해된 cubic-Nd_2O_3상과 tetragonal-$Nd_6Fe_{13}(Cu,Ga)_1$상이 형성 되어 구조/화학적 결함을 최소화 하였다. 특히, Ga 원자가 $Nd_6(Fe,Cu)_{14}$상에 Fe와 치환되면 반강자성체 (비자성체)로

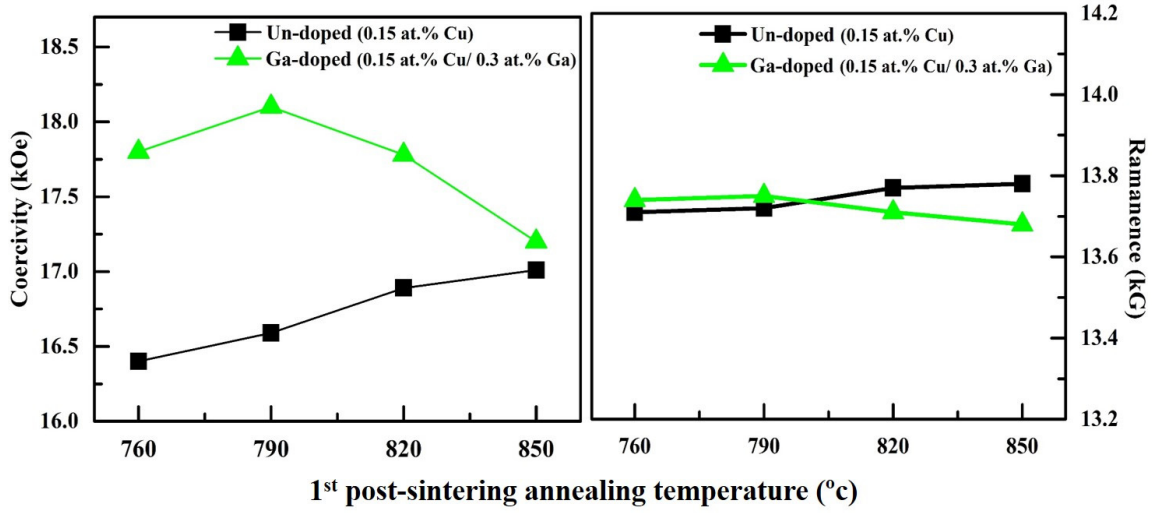

그림. 1 1차 열처리 온도 변화에 따른 Ga이 doping된 자석과 un-doped 자석의 자기적 특성 변화

알려진 tetragonal-$Nd_6Fe_{13}(Cu,Ga)_1$상이 형성 될 수 있다 [4]. 또한, un-doped 자석과 달리, Cu 함량이 낮은 hexagonal-Nd_2O_3상에 Ga이 용해되면서 부족한 Cu 함량을 보완 해주어 미세구조가 효과적으로 개선되었다. DSC 분석결과, Ga이 doping된 자석은 Nd-rich 상의 융점이 효과적으로 감소되었다. 하지만, 790˚C보다 고온에서 열처리를 진행하게 되면, tetragonal-$Nd_6Fe_{13}(Cu,Ga)_1$상이 공정 반응이 아닌 포정 반응에 의해 형성되기 때문에 상대적으로 입계상 형성이 어려워 보자력 향상에 기여하지 못한다. 또한, fcc-NdO 산화물 상의 형성을 촉진시켜 cubic-Nd_2O_3상의 형성이 어렵다. 따라서, Ga이 doping된 자석의 최적의 1차 열처리 온도는 790˚C이며, Ga이 doping된 자석의 Nd-rich 상의 구조/화학적 개선을 극대화하기 위해서는 반드시 1차 열처리 온도를 감소 시켜야 한다.

4. 결론

Ga 첨가에 따른 Nd-Fe-B 소결자석의 1차 열처리 온도 변화에 따른 미세구조 변화와 자기적 특성간의 상관관계에 대해서 연구하였다. Ga이 doping된 자석의 최적의 1차 열처리 온도는 790˚C였으며, un-doped 자석보다 효과적으로 1차 열처리 온도를 감소시킬 수 있었다. Ga 첨가와 함께 1차 열처리 온도 감소에 따른 보자력 향상에 대한 두 가지 주요 이유는 다음과 같다. 첫째, Ga이 용해된 비자성 tetragonal-$Nd_6Fe_{13}(Cu,Ga)_1$입계상이 형성되어 입자간 자기적 결합이 효과적으로 제어되었고, 둘째, Ga이 용해된 연속적이고 균질한 cubic-Nd_2O_3입계상 형성으로 입계 결함을 효과적으로 감소 시켰다. 이 결과, Ga이 doping된 자석은 1차 열처리 온도를 감소했음에도 불구하고, un-doped 자석보다 잔류자화 감소 없이 11.2% 보자력이 증가하였다.

5. 참고문헌

[1] H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, T. Shima, K. Hono, Acta Mater. 60, 819 (2012).
[2] T.- H. Kim, S.-R. Lee, M.-W. Lee, T.-Suk Jang, J.W. Kim, Y.D. Kim, and H.-J. Kim, Acta Mater. 66, 12 (2014).
[3] T.T. Sasaki, T. Ohkubo, Y. Takada, T. Sato, A. Kato, Y. Kaneko, K. Hono, Scr. Mater. 113, 218 (2016).
[4] P. Schobinger-Papamantellos, K.H.J. Buschow, C. Ritter, J. Alloys Comp. 359, 10 (2003).

6. 감사의 글

본 연구는 지식경제부 지원의 기술 혁신사업 (No.10043780)과 2016년도 정부(교육부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업입니다(No.NRF-2016R1D1A1B03931980).