

## Measurements of Magnetic Properties of Melt-Spun Amorphous Ribbon by Single Strip Method

Jae Woong Lee, Sung Woo Lee, and Jong-Ryul Jeong\*

Department of Materials Science and Engineering, Chungnam National University, Daejeon 34134, Korea

Soo Young Park

Magsen, Daejeon 34882, Korea

Hyang Yeon Kim

Automotive Components & Materials R&D Group, Korea Institute of Industrial Technology (KITECH), Gwangju 61012, Korea

(Received 14 October 2017, Received in final form 16 November 2017, Accepted 16 November 2017)

In this study, we have investigated the frequency and annealing temperature dependent magnetic properties of melt-spun  $\text{Fe}_{64.5}\text{Co}_7\text{Si}_5\text{B}_{15.5}\text{Nb}_{3.5}\text{Al}_{4.5}$  amorphous ribbon. We have measured B-H magnetic hysteresis loops in the frequency range of 50 Hz~100 kHz using single-strip method and magnetic permeabilities in the frequency range of 1 MHz~100 MHz using impedance analyzer. We observed the increase of coercivity as a function of measurement frequency and annealing temperature due to Eddy current effect and crystallization, respectively.

**Keywords** : amorphous ribbon, single-strip measurement, B-H hysteresis loop, magnetic permeability

## Melt-spinning법을 이용하여 제조된 비정질 리본의 Single Strip 방법을 이용한 자기적 특성 측정 연구

이재웅 · 이성우 · 정종율\*

충남대학교 신소재공학과, 대전시 유성구 대학로 99, 34134

박수영

맥센, 대전시 중구 수침로 91번길 40, 34882

김향연

한국생산기술연구원 동력부품소재그룹, 광주시 북구 첨단과기로 208번길 6, 61012

(2017년 10월 14일 받음, 2017년 11월 16일 최종수정본 받음, 2017년 11월 16일 게재확정)

본 연구에서는 melt-spinning법을 이용하여 제조된 비정질  $\text{Fe}_{64.5}\text{Co}_7\text{Si}_5\text{B}_{15.5}\text{Nb}_{3.5}\text{Al}_{4.5}$  리본의 열처리 온도에 따른 결정성장 및 이에 따른 자기적 특성의 변화를 연구하였다. 취성이 큰 리본의 자기적 특성 측정을 위해 단일 스트립 방법을 이용하여 50 Hz~100 kHz 대역에서 B-H 이력곡선을 측정하였으며, 1 MHz~100 MHz 대역에서 복소 자기투자율을 impedance analyzer를 이용하여 측정하였다. 단일 스트립 측정을 통해 측정 주파수 및 열처리 온도에 따른 보자력의 증가를 확인하였으며, 이는 각각 Eddy current 및 리본의 결정 성장에 기인하는 것으로 이해되었다.

**주제어** : 비정질리본, 단일스트립 측정, B-H 이력곡선, 자기투자율

## I. 서 론

최근 전자기기의 발전과 함께 고효율 전자기기 응용을 위한 연자성 소재에 대한 관심이 증가하고 있으며, 특히 스마트기기의 발전에 따라 근거리 통신(NFC: Near Field Communication), 무선태그(RFID: Radio Frequency Identification), 무선충전을 위한 전자파 차폐 및 흡수용 고주파 연자성 소재에 대한 필요성이 증가하고 있다[1-6]. 고주파용 연자성 소재로 각광받고 있는 Fe-계 비정질 소재의 경우 높은 포화자속 밀도를 보이지만 낮은 자기투자율 및 큰 자기변형 특성으로 인해 다양한 조성 및 구조 연구를 통해 자기적특성 및 열적 안정성 향상을 위한 연구가 지속적으로 진행되고 있다[3-8].

최근 가장 활발하게 연구되고 있는 무선전력전송(WPT: Wireless Power Transfer) 기술의 경우 수십 kHz 이상의 주파수 대역을 사용하는 자기유도방식 및 수십 kHz~수 MHz 대역의 자기공진방식을 중심으로 응용연구 및 소재연구가 활발하게 진행되고 있다[1]. 이에 따라 연자성 소재의 연구도 kHz~MHz 대역에 집중되고 있으며, 자기적 특성 측정 기술도 network analyzer 및 impedance analyzer와 같은 다양한 고주파 장비를 이용하여 연구되고 있다. 일반적으로 토로이드 코어(toroid core) 형태의 시료는 고주파 대역에서 자기적 특성의 측정이 용이하나, 최근 연구되고 있는 비정질 연자성 리본의 경우 열처리 등의 과정을 거치면서 취성이 커져 가공성이 떨어지는 문제로 인해 고주파 특성 측정에 걸림돌이 되고 있다[9].

본 연구에서는 광폭 melt-spinning 방법으로 제조된 Fe-계 열 FeCoSiBNbAl 비정질 리본 소재의 자기적 특성을 다양한 주파수 범위에서 측정하였다. 취성이 큰 비정질 리본의 측정을 위해 단일 스트립 방법을 이용하여 50 Hz~100 kHz 대역에서 리본 시료의 B-H 이력곡선을 측정하였으며, 100 kHz 이상의 자기적 특성은 impedance analyzer를 이용하여 1 MHz~

100 MHz 대역에서 복소 자기투자율을 측정하였다. 또한 이를 기반으로 비정질 리본의 열처리 조건에 따른 구조적, 자기적 특성의 변화를 연구하였다.

## II. 실험 방법

본 연구에 사용된 리본 시료는 Ar arc melting을 통해  $\text{Fe}_{64.5}\text{Co}_7\text{Si}_5\text{B}_{15.5}\text{Nb}_{3.5}\text{Al}_{4.5}$  조성의 합금 형성 후, Ar 분위기에서 melt-spinning 방법으로 제조하였다. Melt-spinning시 사용된 노즐의 폭은 10 mm였으며, 냉각휠의 선 속도는 40 m/s 이었다. 리본시료의 B-H 이력곡선 측정을 위해 본 연구에서는 IWATSU사의 SY-8232 B-H analyzer를 사용하였다. 일반적으로 kHz 대역에서 B-H 이력곡선의 측정은 토로이드 코어 형태의 시료에 1차 코일과 2차 코일 권선을 통해 측정이 가능하며, 리본시료의 경우 리본을 토로이드 형태로 권취하여 측정이 이루어진다. 그러나 최근 개발되고 있는 일부 리본 시료의 경우 취성이 매우 높아 토로이드 형태의 측정 시료 제작에 어려움이 있으며, 이를 극복하기 위해서는 권취 단계가 없는 B-H 이력곡선의 측정이 요구된다. 스트립(strip)을 이용한 리본 시료의 측정에는 Epstein frame 및 yoke를 이용한 단일 스트립 방법이 있다[10]. 본 연구에서는 시료가 많이 요구되지 않고 판재 시료의 특성 측정에 적합한 단일 스트립 방법을 이용하여 리본 시료의 B-H 이력곡선을 측정하였다. 단일 스트립 방법의 경우 솔레노이드에 리본 시편을 삽입하고 솔레노이드의 양단에 투자율이 큰 yoke를 부착하여 시편의 자속밀도가 yoke를 통하여 자기 폐회로를 형성하는 방법이다. 100 kHz 대역의 B-H 이력곡선 측정을 위해서는 솔레노이드에 권선된 코일의 inter winding capacitance와 impedance가 측정에 문제가 되지 않도록 권선하는 것이 중요하며, melt-spinning 방법으로 제조된 비정질 리본 시료의 경우 시편의 두께가 수십  $\mu\text{m}$  정도로 매우 얇기 때문에 코일

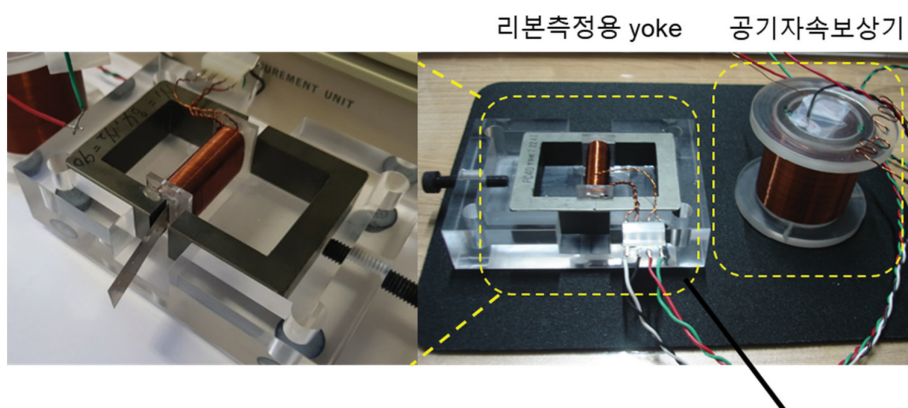


Fig. 1. (Color online) Yoke and air compensation setup for single strip B-H hysteresis measurements.

권선을 위한 코일포머(coil former)에 의해서 필연적으로 발생하는 공기자속(air-flux)이 시편의 두께가 두꺼울 때 보다 상대적으로 매우 커서 공기자속을 보상하는 적절한 방법이 고려되어야 한다. 이를 위해 본 연구에서는 Fig. 1에 나타낸 바와 같이 mutual inductor를 이용한 공기자속 보상 방법 대신에 상대적으로 inter winding capacitance가 적은 differential search coil 방법을 이용한 솔레노이드와 높은 투자율을 가지는 yoke를 사용하여 B-H 이력곡선을 측정하였다. 단일 스트립 측정에 사용된 시료의 크기는 폭 10 mm, 길이 50 mm 이었다. 또한 고주파 대역의 자기투자율 측정을 위해서는 Agilent 사의 4294A impedance Analyzer(40 Hz~110 MHz)에 Keysight 42942A(Impedance Adapter)를 연결하여 측정하였다. 자기투자율 측정 전 필요한 보정을 위해서는 16454A (Magnetic material test fixture)를 사용하였다. MHz 대역의 자기투자율 측정에 사용된 시료는 단일 스트립 시료를 펨토 세컨드(femto second) 레이저를 이용하여 직경 6 mm의 토로이드 시편을 사용하였다.

### III. 실험 결과 및 고찰

Fig. 2에 본 연구에서 사용한 비정질 FeCoSiBnBAI 리본의 X-ray diffractometry(XRD) 및 differential scanning calorimetry (DSC) 측정결과를 나타내었다. 제조된 as-quenched 상태의 리본 시료는 Fig. 2(a)에서 확인할 수 있는 바와 같이 비정질

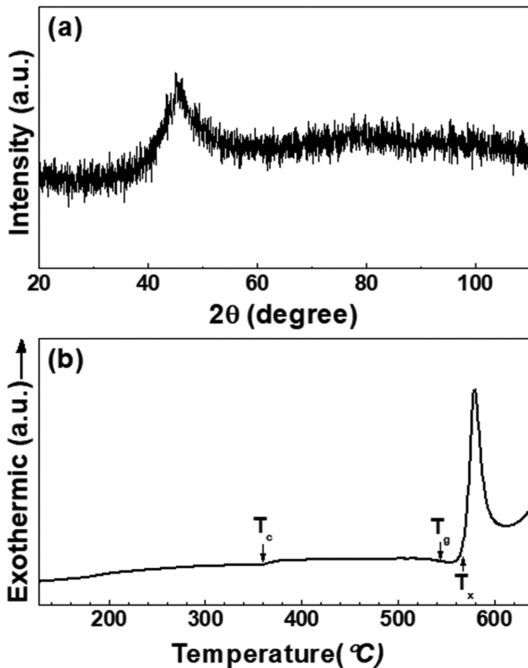


Fig. 2. (a) X-ray diffraction and (b) DSC results for the amorphous ribbon sample.

특성을 나타내는 폭넓은 XRD 피크를 확인할 수 있었다. 또한 DSC 측정을 통해서 비정질 리본 시료의 Curie 온도( $T_c$ ), 유리전이온도( $T_g$ ; glass transition temperature), 결정화온도 ( $T_x$ ; crystallization temperature)를 확인하였다. DSC 측정 시 승온속도는  $0.67^\circ\text{C/s}$ 이었으며, 측정 결과를 Fig. 2(b)에 나타내었다. DSC 측정 결과 자성 비정질 합금에서 나타나는  $T_c$ ,  $T_g$ ,  $T_x$ 가 존재하였으며,  $T_c$ 는  $360^\circ\text{C}$ ,  $T_g$ 는  $543^\circ\text{C}$ ,  $T_x$ 는  $568^\circ\text{C}$ 임을 확인할 수 있었다. DSC 측정 시 승온속도는  $0.67^\circ\text{C/s}$ 이었다.

제조된 비정질 FeCoSiBnBAI 시료의 주파수에 따른 B-H 이력곡선의 변화를 Fig. 3에 나타내었다. 그림에서 확인할 수 있는 바와 같이 1~50 kHz 대역에서 비정질 리본 시료의 B-H 이력곡선 측정이 가능하였으며, 100 kHz의 경우 솔레노이드의 발열 및 impedance 매칭 문제로 인하여 최대 인가 자기장 5 Oe 범위에서 측정이 가능하였다. 측정주파수 1 kHz, 인가 자기장 10 Oe에서 측정된 비정질 리본의 자속밀도는 0.42 T, 보자력은 0.7 Oe이었다. Fig. 4에 측정주파수의 변화에 따른 자속밀도 및 보자력의 변화를 나타내었다. 포화가 되지 않은 100 kHz 시료를 제외하고 자속밀도의 경우 측정주파수에 큰 영향없이 유지되는 것을 확인할 수 있으며, 측정주파수의 증가에 따라 보자력이 연속적으로 증가하는 것을 확인할 수 있다. 일반적으로 비정질 금속 시료에서 주파수의 증가에 따른 보자력의 증가는 시료에 인가되는 자기장의 변화에 의한 Eddy current 영향으로 설명이 가능하다. 주파수가 증가하는 경우 시료내 자속밀도의 변화율이 증가하게 되며, Faraday 법칙에 의해 Eddy current 역시 증가하게 되어 시료

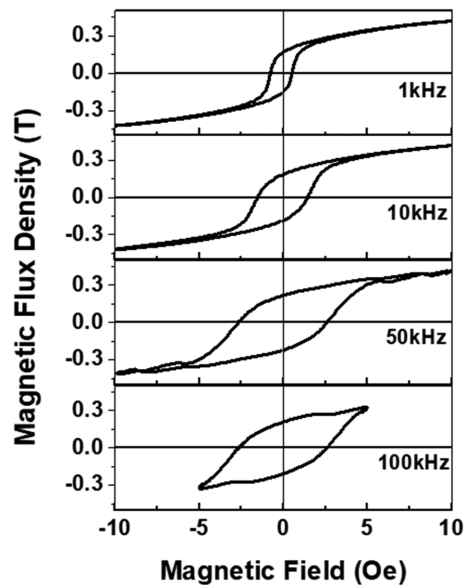


Fig. 3. B-H hysteresis loops with respect to the measurement frequency.

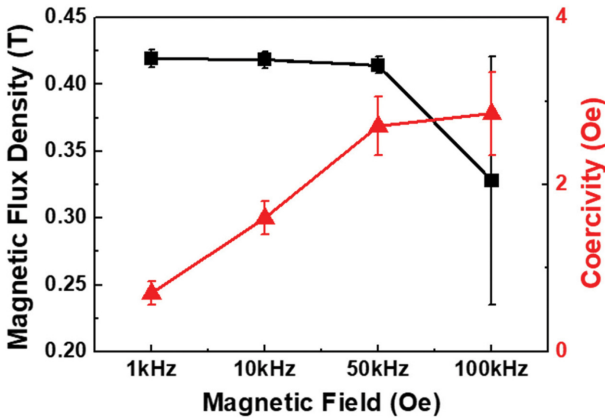


Fig. 4. (Color online) Magnetic flux density and coercivity as a function of measurement frequency.

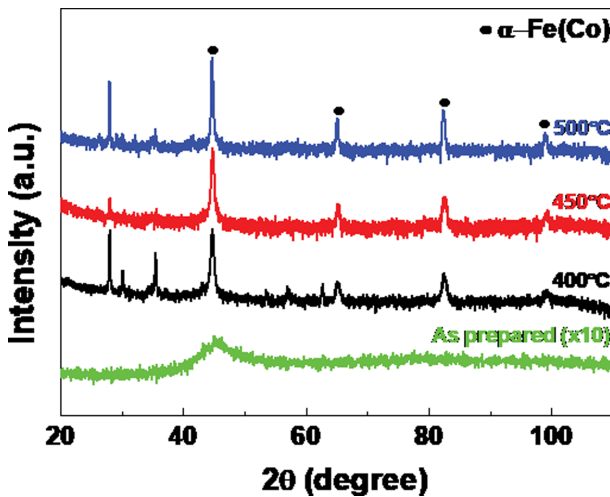


Fig. 5. (Color online) X-ray diffraction results with respect to the annealing temperature.

에 실제로 인가되는 유효자기장의 감소로 인해서 보자력이 증가하는 것으로 알려져 있다[11].

비정질 리본의 구조적, 자기적 특성 연구를 위하여 제조된 리본을 다양한 온도에서 열처리하여 온도에 따른 리본 시료의 결정화 및 그에 따른 자기적 특성의 변화를 측정하였다. Fig. 5에 제조된 리본을 각각 400 °C, 450 °C, 500 °C에서 열처리한 후의 XRD 결과를 나타내었다. 그림에서 확인할 수 있는 바와 같이 400 °C 이상의 열처리를 통해 결정화가 진행된 것을 확인할 수 있으며, XRD 분석을 통해  $\alpha$ -Fe(Co), FeCoSiBNbAl 상이 형성됨을 확인하였으며, 열처리 온도가 증가함에 따라 결정성이 증가함을 확인하였다. Debye-Scherrer 식을 ( $D = K\lambda/\beta\cos(\theta)$ ) 이용하여 (110) 회절피크를 포함하여 계산한 평균 그레인의 크기는 열처리 온도의 증가에 따라 20.4 nm, 21.5 nm, 63.7 nm로 증가하는 것을 확인할 수 있었다. 여기서  $D$ 는 평균 그레인 크기,  $K$ 는 shape factor

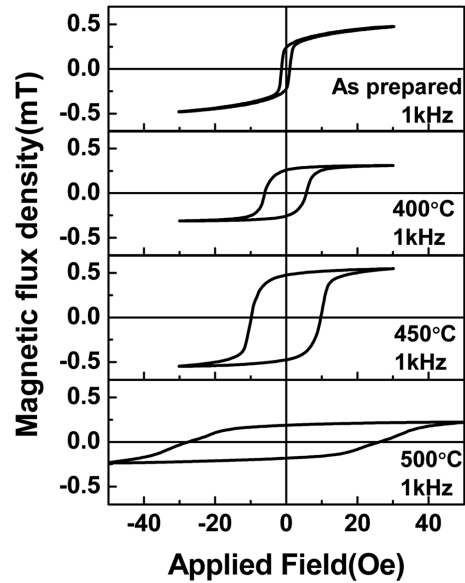


Fig. 6. B-H hysteresis loops measured at 1 kHz with respect to the annealing temperature.

(0.9),  $\lambda$ 는 X-ray 파장(1.5406 Å)이다.

열처리에 의한 결정성의 변화에 따른 B-H 이력곡선의 변화를 Fig. 6에 나타내었다. B-H 이력곡선은 1kHz에서 측정하였으며, 열처리 온도가 증가함에 따라 보자력의 증가를 확인할 수 있다. 이는 Fe를 포함한 다양한 결정립의 형성과 결정립의 크기가 증가하는 것으로 이해할 수 있다. 일반적인 나노결정 연자성체의 경우 10 nm 내외의 결정립들이 서로 교환상호작용을 하는 경우 보자력의 감소가 가능하나, 결정립의 크기가 크고 이웃한 결정립이 교환상호작용을 못하는 경우 보자력이 증가하게 되는 것으로 알려져 있다[7, 12]. 본 연구의 경우 400 °C 이상의 열처리를 통해 20 nm 이상의 결정립이 형성되고, Fe 등 다양한 결정립이 형성되면서 보자력이 증가된 것으로 판단된다. 본 측정장비를 통해 B-H 이력곡선과 더불어 자기투자율, 자기손실의 측정이 가능하기 때문에 향후 연자성 소재의 연구에 활용이 가능할 것으로 사료된다.

본 연구에서 사용한 B-H loop tracer를 이용한 자기적 특성 측정은 최대 100 kHz까지 가능하며, MHz 대역의 자기적 특성 측정을 위해서는 impedance analyzer를 이용하였다. Impedance analyzer를 이용한 측정을 위해 B-H 이력곡선에 사용한 단일 리본 시료를 펄스레이저 레이저 가공장비를 이용하여 외경 6 mm, 내경 3.1 mm 토로이드 시료로 가공하였다. 펄스레이저 장비를 이용한 레이저 가공을 사용한 이유는 시료의 자기적 특성의 변화 없이  $\mu$ m 두께의 취성이 큰 리본 시료 가공이 가능한 장점을 가지기 때문이다. Fig. 7에 impedance analyzer를 이용한 복소 자기투자율 측정 결과를 나타내었다. 자기투자율 측정은 1 MHz에서 100 MHz 구간에

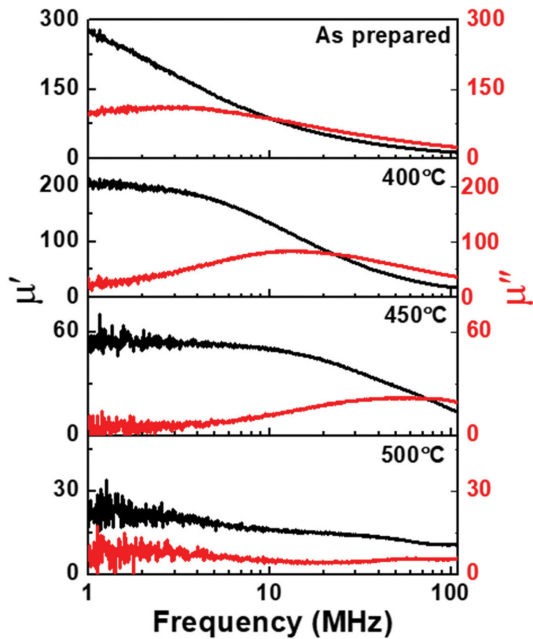


Fig. 7. (Color online) Complex magnetic permeability in the frequency range of 1 MHz~100 MHz with respect to the annealing temperature.

서 이루어졌으며, as quenched 상태의 시료의 경우 1 MHz에서  $\mu' = 277.6$ ,  $\mu'' = 95.7$ 이었으며, 13.56 MHz에서는 각각  $\mu' = 70.5$ ,  $\mu'' = 77.7$ 이었다. Fig. 6의 측정결과와 마찬가지로 열처리 온도가 증가하면서 결정립의 성장에 따라 연자성 특성이 감소하면서  $\mu'$ ,  $\mu''$  값은 지속적으로 감소하는 경향을 나타내는 것을 확인할 수 있었다.

#### IV. 결 론

본 연구에서는 melt-spinning 방법으로 제조된 FeCoSiBNbAl 비정질 리본 소재의 자기적 특성을 연구하였다. 단일 스트립 방법을 이용하여 50 Hz~100 kHz 대역에서 리본 시료의 B-H 이력곡선을 측정하였으며, 100 kHz 이상의 자기적 특성은 impedance analyzer를 이용하여 1 MHz~100 MHz 대역에서

복소 자기투자율을 측정하였다. 본 연구에 사용된 단일 스트립 및 펄토세컨드 레이저 가공 방법은 측정 시 많은 시료가 필요치 않은 장점을 가지며,  $\mu\text{m}$  두께의 취성이 큰 리본 시료에도 적용이 가능한 방법으로 향후 비정질 및 나노결정 연자성 연구에 활용이 가능할 것으로 사료된다.

#### 감사의 글

This work is supported by research grants from the Chungnam National University.

#### References

- [1] S. Bae, D.-C. Choi, S.-Y. Hyun, and S. W. Lee, J. Korean Magn. Soc. **23**, 68 (2013).
- [2] K. I. Arai and K. Ishiyama, J. Magn. Magn. Mater. **133**, 233 (1994).
- [3] D. Guo, C. Jiang, and X. Fan, Appl. Surf. Sci. **307**, 576 (2014).
- [4] N. Kobayashi, N. Kataoka, T. Shima, and H. Fujimori, J. Magn. Mater. **129**, 302 (1994).
- [5] J. S. Yang, D. Son, Y. Cho, and K. S. Ryu, J. Magn. **31**, 130 (1997).
- [6] A.-T. Le, C.-O. Kim, N. D. Ha, N. Chau, N. D. Tho, and H.-B. Lee, J. Magn. **11**, 36 (2006).
- [7] S. F. Chen, C. Y. Hung, S. J. Wang, S. H. Chen, and C. C. Chen, J. Alloys Comp. **627**, 333 (2015).
- [8] S. Dobák, J. Füzér, and P. Kollár, J. Alloys Comp. **651**, 237 (2015).
- [9] A. Sypień and J. Kusiński, J. Microscopy **224**, 111 (2006).
- [10] H. Ahlers and J. D. Sievert, J. Magn. Magn. Mater. **26**, 176 (1982).
- [11] R. Groessinger, N. Mehboob, M. Kriegisch, A. Bachmaier, and R. Pippan, IEEE Trans. Magn. **48**, 1473 (2012).
- [12] R. Xiang, S. Zhou, B. Dong, G. Zhang, Z. Li, Y. Wang, and C. Chang, Prog. Nat. Sci. Mater. Int. **24**, 649 (2014).