

Effects of Melt-Spinning Process Parameters on the Formation of Amorphous Precursors for Hot-Deformed Nd-Ce-Fe-B Magnets

Seong-Jun Yun, Se-Hun Seo, Jae-Gyeong Yoo, Hee-Ryoung Cha,
Tae-Hoon Kim, Sumin Kim*, and Jung-Goo Lee

Nano Materials Research Division, Korea Institute of Materials Science (KIMS), Changwon 51508, Republic of Korea

(Received 20 May 2026, Received in final form 1 June 2026, Accepted 4 June 2026)

Nd-Fe-B magnets are widely used as permanent magnets for high-performance drive systems owing to their excellent magnetic properties. However, the increasing cost fluctuations and supply instability of Nd/Pr resources have drawn growing attention to the development of Nd-lean magnets through Ce substitution. Nevertheless, Ce substitution can degrade the intrinsic magnetic properties of the 2:14:1 main phase and promote the formation of secondary phases such as CeFe_2 . Therefore, securing a stable amorphous precursor is essential to suppress these undesirable effects. In this study, the effects of melt-spinning process parameters, including wheel speed, gas ejection pressure, nozzle-to-wheel distance, nozzle diameter, and melt temperature, on the ribbon thickness and phase structure were systematically investigated for the fabrication of precursors for Nd-Ce-Fe-B hot-deformed magnets. The results showed that the ribbon thickness decreased with increasing wheel speed and nozzle-to-wheel distance, whereas it increased with increasing ejection pressure, nozzle diameter, and melt temperature. Under the present experimental conditions, both amorphous structure formation and stable ribbon production were achieved in ribbons with a thickness of approximately 20 μm . Furthermore, the results confirmed that precise control of the final ribbon thickness and thickness uniformity, through the systematic control of individual process parameters, is critical for the stable fabrication of amorphous precursor ribbons. These findings provide useful guidelines for designing the melt-spinning process for amorphous precursor fabrication in Ce-substituted Nd-Fe-B hot-deformed magnets.

Keywords : hot-deformed Nd-Ce-Fe-B magnets, melt spinning, amorphous precursor, ribbon thickness, phase structure control

Nd-Ce-Fe-B 열간변형 자석용 비정질 전구체 형성에 미치는 멜트스피닝 공정 변수의 영향

윤성준 · 서세훈 · 유재경 · 차희령 · 김태훈 · 김수민* · 이정구

한국재료연구원 나노재료연구본부, 경상남도 창원시 창원대로 797, 51508

(2026년 5월 20일 받음, 2026년 6월 1일 최종수정본 받음, 2026년 6월 4일 게재확정)

Nd-Fe-B계 영구자석은 우수한 자기특성을 바탕으로 고성능 구동 시스템용 영구자석으로 널리 활용되고 있으나, Nd/Pr 자원의 가격 변동성과 공급 불안정성으로 인해 Ce 치환을 통한 Nd 저감형 자석 개발이 주목받고 있다. 그러나 Ce 치환은 2:14:1 주상의 고유 자기특성 저하와 CeFe_2 등 이차상 형성을 유발할 수 있으므로, 이를 억제하기 위한 안정적인 비정질 전구체 확보가 중요하다. 본 연구에서는 Nd-Ce-Fe-B 열간변형 자석용 전구체 분말 제조를 위해 멜트스피닝 공정 변수인 휠 속도, 분사압, 노즐-휠 간격, 노즐 직경 및 용탕 온도가 리본 두께와 상구조에 미치는 영향을 체계적으로 조사하였다. 그 결과, 휠 속도와 노즐-휠 간격이 증가할수록 리본 두께는 감소한 반면, 분사압, 노즐 직경 및 용탕 온도가 증가할수록 리본 두께는 증가하였다. 본 실험 조건에서 약 20 μm 전후의 두께를 갖는 리본에서 비정질 형성과 안정적인 리본 수득이 동시에 가능하였다. 또한 안정적인 비정질 전구체 리본 제조를 위해서는 개별 공정 변수의 독립적인 제어뿐만 아니라, 최종 리본 두께와 두께 균일성을 정밀하게 제어하는 것이 중요함을 확인하였다. 본 연구는 Ce 치환 Nd-Fe-B 열간변형 자석의 고성능화를 위한 비정질 전구체 제조 및 멜트스피닝 공정 최적화에 유용한 설계 지침을 제공한다.

주제어 : Nd-Ce-Fe-B 열간변형 자석, 멜트스피닝, 비정질 전구체, 리본 두께, 상 구조 제어

I. 서 론

Nd-Fe-B계 영구자석은 높은 자기에너지적과 우수한 자기특성으로 인해 전자동차 구동모터, 풍력발전 및 다양한 고효율 전자기기 분야에서 핵심 소재로 활용되고 있다[1-3]. 특히 열간변형(hot-deformation) 공정을 통해 제조된 Nd-Fe-B 자석은 미세한 2:14:1 판상(platelet) 결정의 배향 조직을 구현함으로써 우수한 보자력과 잔류자화를 동시에 확보할 수 있는 고성능 영구자석 제조 기술로 주목받고 있다[3-5].

그러나 기존 Nd-Fe-B 자석은 Nd와 Pr과 같은 희토류 원소에 대한 의존도가 높아 원료 가격 변동성과 자원 편재성 문제가 지속적으로 제기되고 있다[6]. 이러한 문제를 완화하기 위한 방안으로 상대적으로 매장량이 풍부하고 가격이 낮은 Ce를 Nd에 부분 치환하는 연구가 활발히 진행되고 있다[7-13]. 하지만 Ce는 Nd에 비해 2:14:1 주상의 고유 자기특성이 낮고, Ce의 치환량이 30% 이상 증가할 경우 CeFe_2 등의 이차상(secondary phase) 형성이 촉진되어 최종 자석의 자기특성을 저하시킬 수 있다는 한계를 가지고 있다[14,15]. 따라서 Ce 치환 Nd-Fe-B 자석에서 우수한 자기특성을 확보하기 위해서는 단순한 조성 제어를 넘어, 공정 단계에서의 상형성 및 미세조직 제어가 필수적이다.

이러한 측면에서 열간변형 공정은 Ce 치환 Nd-Fe-B 자석의 자기특성 저하를 완화할 수 있는 유망한 제조 공정으로 평가된다. 열간변형 자석은 일반적으로 멜트스피닝(melt-spinning) 공정을 통해 제조된 비정질 또는 나노결정질 리본을 전구체로 사용하며, 이를 분쇄하여 얻은 멜트스핀(melt-spun) 분말을 열간성형(hot pressing)과 열간변형(hot deformation) 공정을 거쳐 이방성 자석으로 제조한다[4,16,17]. 본 연구팀은 Ce이 30% 치환된 조성에서 비정질 전구체를 활용하여 열간변형 자석을 제조할 경우 CeFe_2 등의 이차상 형성이 억제되고 균일한 RE-rich 입계상이 형성됨을 선행 연구를 통해 보고하였다[18,19]. 이러한 미세구조적 변화는 2:14:1 판상 결정립의 종횡비와 c축 배향도를 향상시켰으며, 결과적으로 우수한 자기특성 확보에 기여하였다. 이는 열간변형 공정의 출발 원료가 되는 멜트스핀 리본의 상구조와 미세조직이 이후 치밀화 거동 및 배향 미세조직 형성 전반에 큰 영향을 미치는 핵심 요소임을 의미한다.

멜트스피닝 공정에서 비정질 전구체를 안정적으로 확보하기 위해서는 합금 용탕이 냉각 휠과 접촉하는 순간 충분한 냉각속도가 확보되어야 한다. 일반적인 Nd-Fe-B계 멜트스피닝 공정에서는 휠 속도가 냉각속도를 결정하는 대표 변수로 다루어져 왔으나, Ce의 다량 치환 시 이차상 생성 및 결정화 거동 변화에 따른 비정질 전구체 리본 형성 공정 창(process window)이 달라지기 때문에 보다 정밀한 공정제어가 요구된

다[20-25]. 기존 연구에서는 Nd-Ce-Fe-B계 비정질 리본을 얻기 위해 휠 속도를 과도하게 증가시키는 방법이 사용되기도 하였으나, 이러한 경우 용탕 비산 등의 문제로 인해 리본의 형상 불균일 및 수득률 저하를 초래할 수 있다[25,26]. 따라서 Nd-Ce-Fe-B계 비정질 전구체를 안정적으로 확보하기 위해서는 휠 속도뿐만 아니라 분사압, 노즐-휠 간격, 노즐 직경 및 용탕 온도와 같은 다양한 공정 변수를 함께 고려한 최적화가 필요하다.

멜트스피닝 공정에서 형성되는 리본의 두께는 냉각 휠 접측면(wheel side)과 자유 표면(free side) 사이의 열전달 차이를 반영하는 직접적인 지표이며, 최종 상구조와 밀접하게 관련된다. 리본 두께가 증가할수록 자유 표면 부근의 유효 냉각속도는 감소하여 부분 결정화가 발생하기 쉬운 반면, 얇고 균일한 리본은 전 두께 영역에서 높은 냉각속도를 확보할 수 있어 비정질 전구체 형성에 유리하다[27,28]. 즉, 멜트스피닝 공정 변수는 용탕 유량(melt flow rate), 용탕 풀(melt puddle)의 체적과 안정성, 냉각 휠과의 접촉 조건 및 열추출 효율을 변화시키고, 궁극적으로는 리본 두께 및 상형성을 통해 전구체의 품질을 결정한다고 할 수 있다.

따라서 본 연구에서는 Ce 치환 Nd-Fe-B 합금을 대상으로, 휠 속도뿐만 아니라 분사압, 노즐-휠 간격, 노즐 직경 및 용탕 온도를 체계적으로 변화시키고, 이에 따른 리본 두께와 상구조 변화를 분석하였다. 특히 각 공정 변수가 용탕 유량, 용탕 풀의 안정성, 냉각 휠과의 접촉 조건 및 열추출 거동에 미치는 영향을 리본 두께와 연계하여 해석하고자 하였다. 이를 통해 Nd-Ce-Fe-B 열간변형 자석에서 비정질 전구체 확보를 위한 공정 변수-리본 두께-상구조 간의 상관관계를 규명하고, 고성능 Nd 저감형 열간변형 자석 제조를 위한 멜트스피닝 공정 설계 지침을 제시하고자 한다.

II. 실험 방법

본 연구에서는 $(\text{Nd}_{0.7}\text{Ce}_{0.3})_{13.0}\text{Fe}_{61}\text{Co}_{4.5}\text{Ga}_{0.6}\text{B}_{5.6}(\text{at.}\%)$ 조성의 합금을 제조하기 위해 Ar 분위기에서 아크멜팅(arc-melting) 공정을 수행하였다. 조성 균일성을 확보하기 위해 용해된 합금을 반복적으로 뒤집어가며 5회 재용해하였다. 제조된 합금은 멜트스핀 리본으로 제작하기 위해 멜트스피닝 공정에 사용하였으며, Fig. 1에 멜트스피닝 공정의 모식도와 주요 공정 변수를 나타내었다.

공정 변수의 영향을 조사하기 위해 아크멜팅으로 제조한 20 g의 합금을 길이 250 mm, 외경 30 mm, 내경 26 mm의 석영관에 장입하였다. 이후 Ar 분위기에서 유도 가열(induction melting)을 통해 용융한 뒤, 직경 350 mm의 수냉식 구리 휠에 분사하여 급냉 리본을 제조하였다. 이때 휠 속

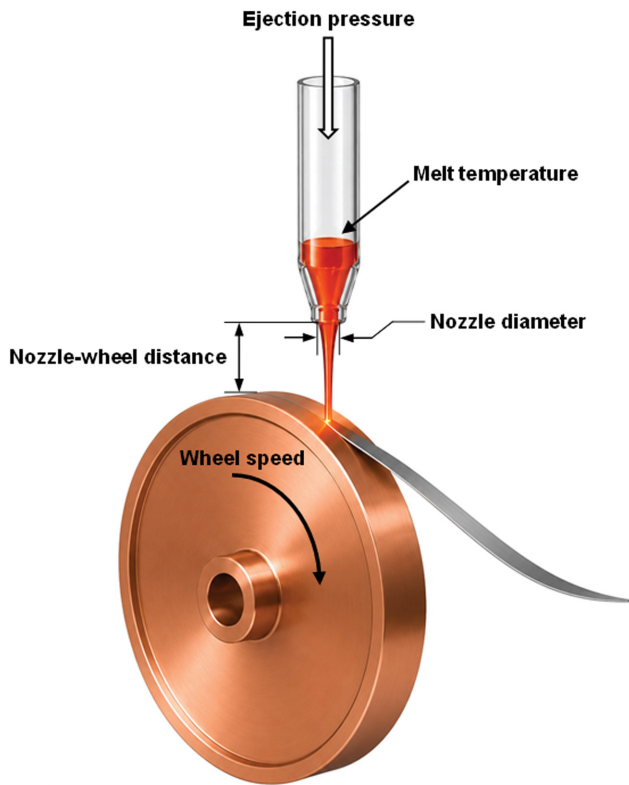


Fig. 1. (Color online) Schematic illustration of the melt-spinning process and key process parameters.

도, 분사 압력, 노즐과 구리 휠 사이의 거리, 노즐 직경, 용탕의 온도를 주요 공정 변수로 설정하였다. 이때 각 공정 변수의 세부 조건은 Table I과 같으며, 각 실험에서는 변화시키는 변수 이외의 공정 변수는 Table I의 기본 조건으로 유지하였다.

제조된 멜트스핀 리본의 미세조직과 두께 방향에 따른 조직 차이는 전계방출형 주사전자현미경(FE-SEM, JIB-4601F, JEOL)을 이용하여 분석하였다. 멜트스피닝 공정 변수에 따른 리본의 냉각 거동 차이를 비교하기 위해 각 실험 조건에서 최소 5개 이상의 시편에 대해 두께를 측정하였으며, 그 평균

Table I. Experimental conditions and parameter ranges for the melt-spinning process.

Process parameter	Base condition	Variation range
Wheel speed (m/s)	30	20~40
Ejection pressure (kPa)	40	20~60
Nozzle-wheel distance (mm)	4	2~10
Melt temperature (°C)	1,100	1,050~1,250
Nozzle diameter (mm)	0.4	0.2~0.6

값을 해당 조건의 대표 두께로 사용하였다. 또한 제조된 리본의 상구성을 분석하기 위해 리본을 막자와 막자사발로 파쇄한 후, X선 회절분석(XRD, SmartLab, Rigaku)을 통해 각 실험 조건에 따른 리본의 회절 패턴을 비교하였다.

최적 멜트스피닝 조건에서 제조된 비정질 전구체 리본의 효과를 확인하기 위해, 비정질 전구체와 결정질 전구체 리본을 각각 분쇄하여 열간 변형 자석을 제조하였다. 분쇄된 멜트스핀 분말은 불활성 분위기에서 hot pressing 공정을 통해 치밀화한 후, hot deformation 공정을 통해 이방성 벌크 자석으로 제조하였다. 제조된 열간변형 자석의 자기특성은 진동시료 자력계(VSM, EZ9, MicroSense)를 이용하여 비정질 전구체와 결정질 전구체 사용에 따른 감자곡선을 비교하였다.

III. 결과 및 고찰

Fig. 2는 본 연구에서 멜트스피닝 공정으로 제조된 약 30 μm 두께의 Nd-Ce-Fe-B 리본의 단면 SEM 이미지를 나타낸다. 그림에서 확인할 수 있듯이 냉각 휠과 직접 접촉한 면(wheel side) 부근에서는 비정질이 형성된 반면 자유 표면(free side) 부근에서는 결정질의 조직이 관찰되었다. 이러한 두께 방향 미세조직 차이는 멜트스피닝 과정에서 용탕의 열이 냉각 휠 측으로 우선적으로 추출되기 때문에 발생하는 냉각속도 구배에 기인한다[27,28]. 즉, 휠 접촉면은 매우 빠른 열추출로 인해 높은 냉각속도를 경험하는 반면, 자유 표면으로 갈수록 휠과의 거리가 증가하여 열추출 효율이 저하되고,

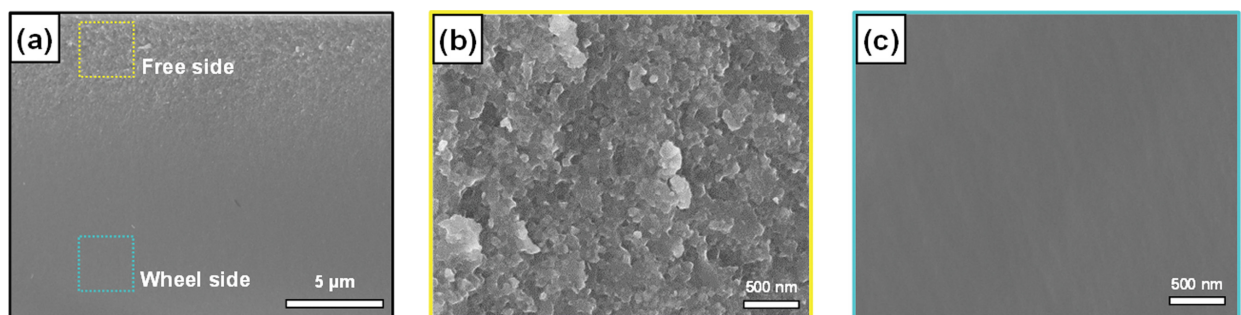


Fig. 2. (Color online) Cross-sectional SEM images of a melt-spun ribbon: (a) low-magnification image and high-magnification images near the (b) free side and (c) wheel side.

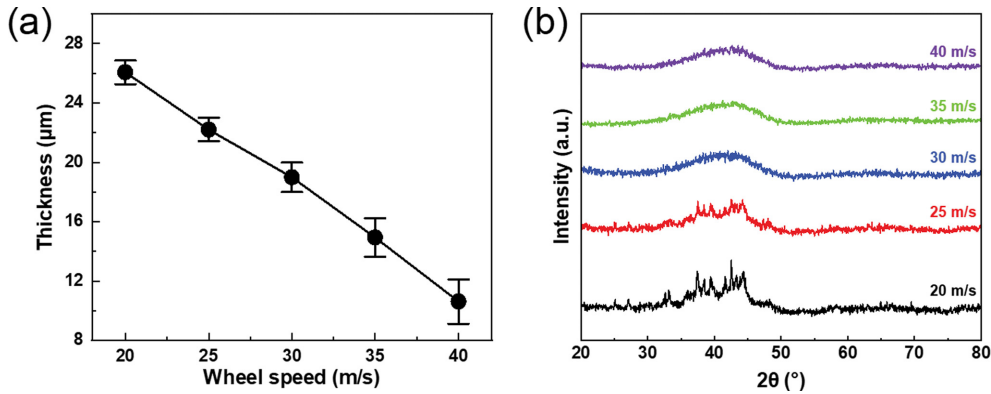


Fig. 3. (Color online) Effect of wheel speed on the thickness and phase constitution of melt-spun ribbons: (a) average ribbon thickness and (b) XRD patterns.

그 결과 결정 성장과 조성 편석이 상대적으로 용이해진다 [29]. 따라서 리본 두께는 전구체 리본의 미세조직 균일성과 상구조를 좌우하는 핵심 인자이며, 안정적인 비정질 전구체를 확보하기 위해서는 임계 두께 이하의 얇고 균일한 리본을 수득하는 것이 중요하다. 멜트스피닝 공정에서의 리본 두께는 휠 속도, 분사압, 노즐-휠 간격, 노즐 직경 및 용탕 온도와 같은 공정 변수의 영향을 직접적으로 받는다. 따라서 본 연구에서는 각 공정 변수에 따른 리본 두께 변화를 정량적으로 비교하고, XRD 분석을 통해 비정질 및 결정질 상의 형성 경향을 조사하였다. 이를 바탕으로 Ce 치환 Nd-Fe-B 열간변형 자석용 비정질 전구체 확보를 위한 공정 변수-리본 두께-상형성 간의 상관관계를 규명하고자 하였다.

Fig. 3(a)는 휠 속도에 따른 Nd-Ce-Fe-B 리본의 평균 두께 변화를 나타낸다. 휠 속도는 5 m/s 간격으로 변화시켰으며, 이때 수득된 리본의 평균 두께는 10.6~26.1 μm의 범위를 나타내었다. 또한 각 조건에서 측정된 두께 편차는 2 μm 미만으로 비교적 일정한 수준을 나타내었다. 휠 속도는 멜트스피닝 공정에서 리본의 두께와 냉각속도를 결정하는 대표적인 공정 변수이며, 휠 속도가 증가할수록 리본의 평균 두께가 감소하는 경향이 확인되었다. 이러한 결과는 냉각 휠 표면과 노즐 사이에 형성되는 용탕 풀의 거동과 밀접하게 관련된다. 휠 속도가 낮을 경우 휠 표면에 도달한 용탕이 상대적으로 오랫동안 머물면서 용탕 풀이 충분히 축적되고, 그 결과 인출되는 리본의 두께가 증가한다. 반면 휠 속도가 증가하면 용탕이 휠의 회전에 의해 보다 빠르게 인출되어 용탕 풀의 체적이 감소하게 되며, 이에 따라 최종적으로 수득되는 리본의 두께도 감소한다[30,31].

이와 같이 휠 속도에 의해 유도된 리본의 두께는 최종 상구조에도 직접적인 영향을 미친다. 앞서 언급한 바와 같이 리본 두께가 두꺼워질수록 휠 접촉면과 자유 표면 사이의 냉각 속도 차이가 커지고, 특히 자유 표면 부근에서는 열추출 효율

이 저하되어 결정화가 발생하기 쉬워진다. 따라서 휠 속도의 증가는 단순히 리본을 얇게 만드는 효과에 그치지 않고, 유효 냉각속도를 증가시켜 비정질 전구체 리본 형성에 유리한 조건을 제공한다고 해석할 수 있다. 다만 휠 속도를 과도하게 증가시키는 것이 항상 바람직한 것은 아니다. 휠의 회전 속도가 지나치게 높아질 경우, 용탕과 휠 표면 사이의 접촉 안정성이 저하되어 용탕이 파편(flake) 형태로 비산하거나 연속적인 리본 형성이 어려워질 수 있다[25,26]. 또한 용탕 풀이 지나치게 작아지면 리본의 폭과 형상이 불안정해질 수 있으므로, 실제 공정에서는 충분한 냉각속도와 안정적인 리본 수득이 동시에 확보되는 속도 범위를 설정하는 것이 중요하다.

이와 같은 휠 속도 변화가 리본의 상구조에 미치는 영향을 확인하기 위하여 각 조건에서 수득된 리본의 XRD 결과를 Fig. 3(b)에 나타내었다. 30~40 m/s 조건에서는 모두 완전한 halo peak만이 관찰되었으며, 이를 통해 해당 조건에서 수득된 리본이 비정질 구조임을 확인할 수 있다. 반면 25 및 20 m/s 조건에서 수득된 리본에서는 halo pattern 위에 일부 결정상 피크가 나타났고, 휠 속도가 감소할수록 결정상 피크의 강도가 증가하는 경향을 보였다. 이는 휠 속도 감소에 따라 용탕 풀의 체적이 증가하고, 그 결과 리본 두께가 증가하여 유효 냉각속도가 저하되었기 때문으로 해석된다. 즉, 낮은 휠 속도에서는 자유 표면 부근까지 비정질 형성에 필요한 냉각속도가 충분히 확보되지 못하여 부분 결정화가 발생한 것으로 판단된다. 이러한 결과는 휠 속도가 리본 두께를 매개로 최종 상구조를 제어하는 핵심 인자임을 보여준다.

Fig. 4(a)는 분사압에 따른 리본의 평균 두께를 나타낸다. 분사압을 10 kPa 간격으로 변화시킨 결과, 수득된 리본의 평균 두께는 15.6~24.3 μm 범위였으며, 휠 속도 변화에 비해 두께 변화 폭은 상대적으로 작았지만 분사압이 증가할수록 평균 두께는 일관되게 증가하는 경향을 보였다. 이러한 결과는 분사압 상승에 따라 단위 시간당 노즐로부터 분사되는 용탕

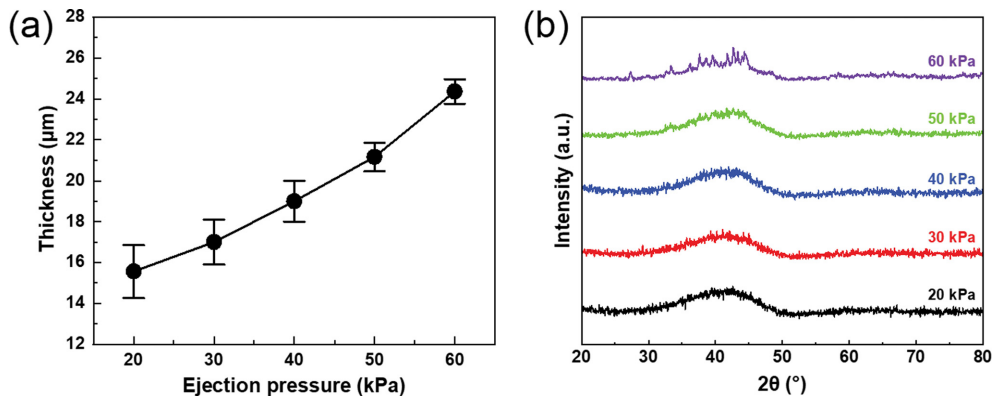


Fig. 4. (Color online) Effect of ejection pressure on the thickness and phase constitution of melt-spun ribbons: (a) average ribbon thickness and (b) XRD patterns.

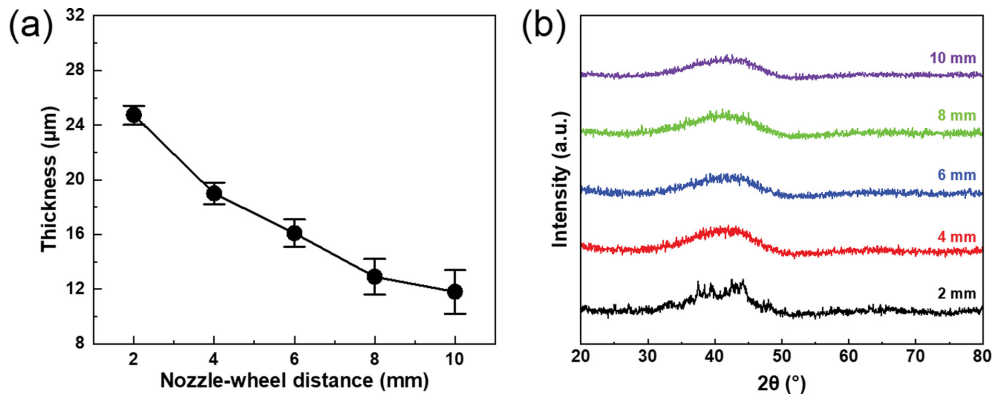


Fig. 5. (Color online) Effect of nozzle-to-wheel distance on the thickness and phase constitution of melt-spun ribbons: (a) average ribbon thickness and (b) XRD patterns.

의 양이 증가하고, 그에 따라 휠 표면에서 리본으로 인출되기 전에 형성되는 용탕 풀(melt puddle)의 체적이 커지기 때문으로 해석된다[28]. 또한 각 조건에서 두께 편차가 2 μm 미만으로 작게 유지되고 분사압이 증가할수록 오차가 감소하여, 분사압 변화에 따른 두께 증가 경향이 비교적 안정적으로 나타났음을 확인할 수 있었다.

반면, 분사압이 지나치게 낮을 경우에는 분사되는 용탕의 유량이 감소하여 용탕 풀이 충분히 형성되지 못하고, 리본이 연속적으로 수득되지 못한 채 끊기거나 파편(flake) 형태로 회수되어 수득률이 저하될 수 있음을 확인하였다. 이러한 현상은 리본의 폭과 표면 상태 등 형상 품질에도 부정적인 영향을 미치므로, 안정적인 비정질 전구체 리본을 확보하기 위해서는 일정 이상의 분사압이 확보되어야 한다.

이와 같은 분사압 변화가 리본의 상구조에 미치는 영향을 확인하기 위하여 각 조건에서 수득된 리본의 XRD 결과를 Fig. 4(b)에 나타내었다. 20~40 kPa 조건에서는 모두 완전한 halo peak만이 관찰되어, 해당 조건에서 수득된 리본이 비정질 구조임을 확인할 수 있었다. 반면 50 kPa에서는 halo

pattern 위에 결정상 피크가 나타나기 시작하였고, 60 kPa에서는 그 강도가 더욱 증가하였다. 이는 분사압 증가에 따라 리본 두께가 증가하면서 유효 냉각속도가 저하되었고, 그 결과 리본 내부, 특히 자유 표면 측에서 부분 결정화가 촉진되었기 때문이다. 즉, 본 실험 조건에서는 20~40 kPa 범위가 비정질 리본 형성에 유효한 분사압 구간으로 해석된다.

Fig. 5(a)는 노즐-휠 간격에 따른 Nd-Ce-Fe-B 리본의 평균 두께 변화를 나타낸다. 노즐-휠 간격을 2 mm씩 변화시켜 리본을 제조한 결과, 평균 두께는 11.8~24.7 μm 범위였으며, 간격이 증가할수록 리본의 두께는 감소하고 편차는 커지는 경향을 보였다. 이러한 결과는 노즐로부터 분사된 합금 용탕의 직진성과 휠 표면에서의 용탕 풀 형성 거동에 기인한 것으로 해석된다[28]. 즉, 노즐-휠 간격이 증가할수록 용탕이 휠 표면에 도달하기까지의 거리가 길어지므로, 분사된 용탕은 한 지점에 집중되지 않고 넓게 퍼진 상태로 휠과 접촉하게 된다. 그 결과 휠 표면에 형성되는 용탕 풀의 넓고 얇은 형태로 형성되며, 최종적으로 인출되는 리본의 두께도 얇아지게 된다. 또한 노즐-휠 간격이 지나치게 클 경우 용탕 풀이 안정적으

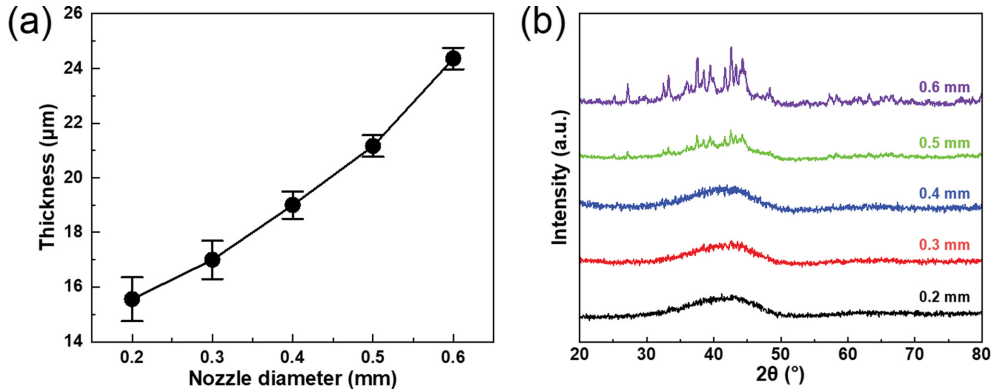


Fig. 6. (Color online) Effect of nozzle diameter on the thickness and phase constitution of melt-spun ribbons: (a) average ribbon thickness and (b) XRD patterns.

로 형성되지 못하여 용탕 비산이 발생하거나 리본이 불연속적인 파편(flake) 형태로 수득될 수 있으므로, 안정적인 비정질 전구체 리본을 확보하기 위해서는 적절한 노즐-휠 간격 범위의 설정이 필요하다.

각 노즐-휠 간격 조건에서 수득된 리본의 XRD 결과를 Fig. 5(b)에 나타내었다. 앞서 언급한 바와 같이 노즐-휠 간격이 증가하여 리본의 두께가 감소하면, 리본 전 두께 영역에서 보다 높은 유효 냉각속도를 확보할 수 있으므로 비정질 형성에 유리한 환경이 조성된다. 실제로 기본 조건인 4 mm를 포함한 4~10 mm 조건에서는 모두 완전한 halo pattern이 관찰되었다. 반면 2 mm 조건에서 수득된 리본에서는 결정상 피크가 관찰되었으며, 이는 좁은 간격으로 인해 용탕 풀이 과도하게 축적되고 리본 두께가 증가하여 비정질 형성에 필요한 냉각속도가 충분히 확보되지 못했기 때문으로 판단된다. 따라서 노즐-휠 간격 역시 리본의 최종 상 구조를 제어하는 핵심 변수이며, 본 실험 범위에서는 4~10 mm 조건이 비정질 Nd-Ce-Fe-B 전구체 리본 형성에 유리한 간격 범위로 해석된다.

또한, 노즐 직경에 따른 리본의 평균 두께 변화를 Fig. 6(a)에 나타내었다. 노즐 직경은 0.1 mm 간격으로 단계적으로 변화시켰으며, 이때 수득된 리본의 평균 두께는 15.5~24.3 μm 범위로 나타났다. 노즐 직경이 증가할수록 리본의 평균 두께는 증가하였고, 편차는 감소하는 경향을 보였다. 이러한 결과는 노즐 직경 증가에 따른 용탕 유량 증가에 기인한 것으로 해석할 수 있다. 노즐 직경이 커질수록 단위 시간당 분사되는 합금 용탕의 양이 증가하고, 그 결과 회전하는 휠에 의해 리본으로 인출되기 전에 휠 표면에 형성되는 용탕 풀의 체적이 증가하게 된다. 이로 인해 최종적으로 형성되는 리본의 두께가 증가한 것으로 판단된다.

한편, 노즐 직경이 지나치게 작을 경우에는 용탕의 사출이 원활하지 못하고 노즐 내부에서 부분적인 응고가 발생할 가능성이 있어 리본 수득 안정성이 저하될 수 있다. 그러나 본

실험 범위에서는 수득된 리본의 두께 오차가 전반적으로 크지 않아, 설정한 노즐 직경 조건 내에서는 비교적 안정적인 리본 제조가 가능하다고 판단된다.

노즐 직경 변화에 따른 리본 두께의 차이가 상구조에 미치는 영향을 확인하기 위하여 각 조건에서 수득된 리본의 XRD 결과를 Fig. 6(b)에 나타내었다. 0.2, 0.3 및 0.4 mm 조건에서는 모두 완전한 halo peak이 관찰되었으며, 뚜렷한 결정상 피크는 검출되지 않았다. 이는 해당 조건에서 수득된 리본이 모두 비정질 구조를 유지하고 있음을 의미한다. 반면, 노즐 직경이 더 큰 조건에서는 halo pattern 위로 결정상 피크가 점진적으로 뚜렷해지는 경향이 관찰되었다. 이러한 결과는 노즐 직경 증가에 따른 용탕 유량 증가로 인해 리본 두께가 증가하고, 이에 따라 유효 냉각속도가 저하되어 부분 결정화가 촉진되었기 때문으로 해석된다.

용탕 온도에 따른 리본의 평균 두께 변화를 Fig. 7(a)에 나타내었다. 용탕 온도는 50 °C 간격으로 변화시켰으며, 이때 수득된 리본의 평균 두께는 14.2~38.1 μm로 본 연구의 공정 변수 중 가장 넓은 두께 범위를 나타내었다. 용탕 온도가 증가할수록 리본의 평균 두께는 뚜렷하게 증가하는 경향을 보였으며, 이러한 결과는 용탕 온도 상승에 따른 유동성 증가와 밀접한 관련이 있는 것으로 판단된다. 일반적으로 액상 급속은 온도가 증가함에 따라 점도가 감소하므로, 노즐을 통해 사출되는 용탕의 유량이 증가하게 된다[32]. 그 결과 휠 표면에 형성되는 용탕 풀의 체적이 증가하고, 회전하는 휠에 의해 리본으로 인출되기 전에 더 많은 용탕이 축적되어 최종적으로 리본 두께가 증가하게 된다. 반면, 용탕 온도가 지나치게 낮을 경우에는 합금의 용융이 원활하지 않아 부분적인 응고나 조성 불균일이 발생할 수 있으므로, 안정적인 리본 수득을 위해서는 적절한 용탕 온도 범위를 확보하는 것이 중요하다.

이와 같은 용탕 온도 변화가 리본의 상구조에 미치는 영향을 확인하기 위하여 각 조건에서 수득된 리본의 XRD 결과

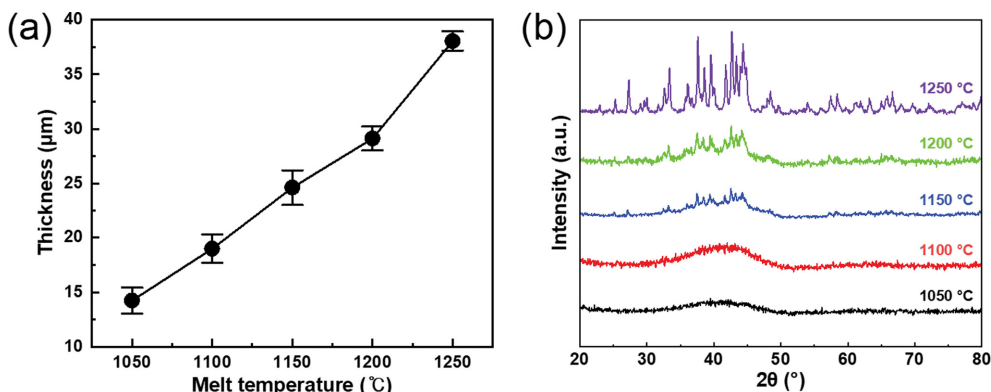


Fig. 7. (Color online) Effect of melt temperature on the thickness and phase constitution of melt-spun ribbons: (a) average ribbon thickness and (b) XRD patterns.

를 Fig. 7(b)에 나타내었다. 1,050 및 1,100 °C 조건에서는 모두 완전한 halo peak만이 관찰되었으며, 이를 통해 해당 조건에서 수득된 리본이 비정질 구조임을 확인할 수 있다. 이러한 결과는 적어도 본 실험의 1,050~1,100 °C 범위에서는 멜트스피닝 공정을 위한 용융이 충분히 이루어졌음을 시사한다. 만약 이 온도 구간에서 합금의 용융이 불충분 하였다면, 미용융 입자나 잔존 고상 핵이 이중 핵생성의 기점으로 작용하여 결정상 피크가 나타났을 가능성이 높기 때문이다. 즉, 본 연구에서 관찰된 저온 조건에서의 비정질 패턴은 비정질 형성에 필요한 용융 상태를 확보하면서도 높은 냉각속도를 유지할 수 있는 유효한 온도 범위임을 보여준다.

반면, 1,150 및 1,200 °C에서 수득된 리본에서는 halo pattern 위에 일부 결정상 피크가 나타났고, 1,250 °C에서는 뚜렷한 결정상 피크가 관찰되어 리본의 결정화가 더욱 진행되었음을 확인할 수 있었다. 일반적으로 용탕 온도 상승에 따라 과열도(superheat)가 증가하면 잔존 결정핵이 제거되어 비정질 형성에 유리하게 작용하는 것으로 알려져 있다[20,33]. 그러나 멜트스피닝 공정에서 용탕 온도는 과열도뿐만 아니라 용탕의 점도, 사출 유량, 용탕 풀의 체적, 그리고 최종 리본 두께를 동시에 변화시키고, 최종 상형성은 이러한 인자들의 복합적인 효과로 결정된다. 본 연구에서는 용탕 온도가 증가함에 따라 리본 두께가 현저히 증가하였고, 이에 따른 유효 냉각속도 감소가 과열도 증가에 따른 비정질 형성능 향상 효과보다 더 지배적으로 작용하는 것으로 판단된다. 그 결과, 고온 조건에서는 특히 자유 표면 부근에서 부분 결정화가 촉진된 것으로 해석된다. 따라서 본 연구 결과는 용탕 온도가 단순히 합금의 용융 여부만을 결정하는 변수가 아니라, 리본 두께와 냉각속도를 매개로 최종 상구조를 직접 제어하는 핵심 공정 변수임을 보여준다.

이상의 결과를 종합하면, 휠 속도, 분사압, 노즐-휠 간격, 노즐 직경 및 용탕 온도는 각각 용탕의 유량, 용탕 풀의 체

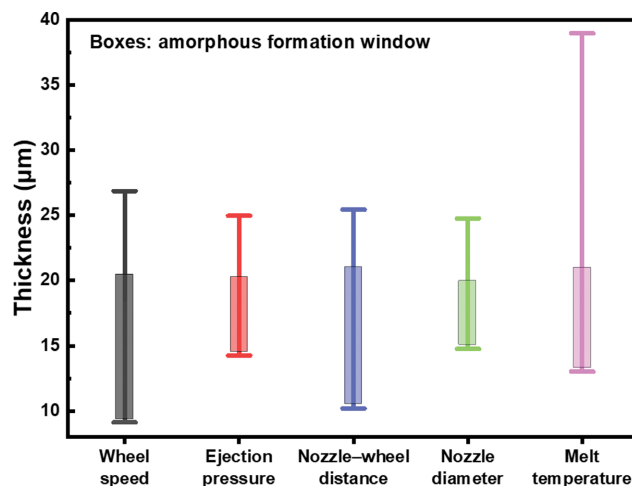


Fig. 8. (Color online) Processing window for amorphous alloy formation as a function of melt-spinning parameters.

적과 안정성, 그리고 냉각 휠로의 열 추출 조건을 변화시켜, 궁극적으로 리본 두께를 매개로 Nd-Ce-Fe-B 리본의 비정질 형성 여부를 결정하는 핵심 공정 변수로 작용함을 확인할 수 있었다. 특히 리본 두께가 증가할수록 휠 접촉면과 자유 표면 사이의 냉각속도 구배가 커져 자유 표면 부근에서 부분 결정화가 용이해졌으며, 반대로 얇고 균일한 리본은 전 두께 영역에서 충분한 유효 냉각속도를 확보함으로써 안정적인 비정질 구조 형성에 유리하였다[33]. Fig. 8에서 나타난 것과 같이 본 실험 결과를 기준으로 할 때, 비정질 형성과 연속적이고 안정적인 리본 수득을 동시에 만족하는 두께 범위는 20 μm 전후로 판단된다. 이는 20 μm보다 현저히 두꺼운 리본에서는 결정상 출현 가능성이 증가하는 반면, 지나치게 얇은 리본은 과도한 휠 속도 증가 또는 불안정한 melt puddle 형성과 연계되어 flake 발생, 형상 불균일 및 수득률 저하를 유발할 수 있기 때문이다. 따라서 멜트스피닝 공정의 최적화는 단순히 리본을 가장 얇게 제조하는 방향이 아니라, 비정

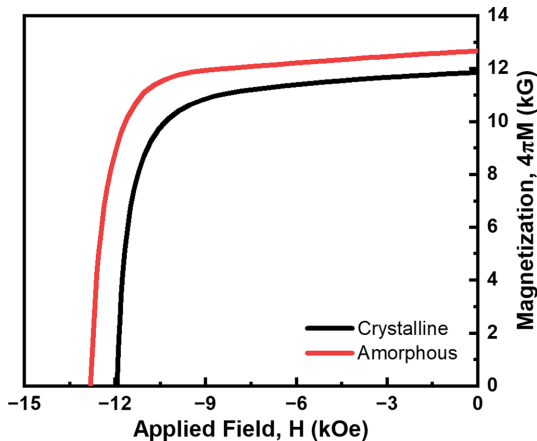


Fig. 9. (Color online) Demagnetization curves of hot-deformed Nd-Ce-Fe-B magnets fabricated using amorphous and crystalline precursors.

질 형성에 필요한 냉각속도와 공정 안정성을 동시에 확보할 수 있는 두께 영역을 설정하는 방향으로 수행되어야 한다.

이러한 비정질 전구체 확보의 효과를 확인하기 위해, 본 연구에서 제조한 비정질 전구체와 결정질 전구체를 각각 사용하여 Nd-Ce-Fe-B 열간변형 자석을 제조하고 자기특성을 비교하였다(Fig. 9). 비정질 및 결정질 전구체 리본은 각각 30 m/s 및 15 m/s의 휠 속도에서 제조되었으며, 이외의 멜트스피닝 공정조건은 Table I에 제시된 기본 조건(base condition)과 동일하다. 비정질 전구체를 사용한 자석은 결정질 전구체를 사용한 자석에 비해 향상된 자기특성을 나타내었으며, 이는 멜트스피닝 단계에서 균일한 비정질 전구체를 확보하는 것이 후속 열간성형 및 열간변형 과정에서 CeFe_2 와 같은 불필요한 이차상 형성을 억제하고, 균일한 2:14:1 결정립 및 RE-rich 입계상 형성에 유리하게 작용했기 때문으로 판단된다. 반면 결정질 전구체의 경우, 급속응고 단계에서 이미 형성된 결정상 또는 이차상이 후속 열간변형 공정 중 미세조직 제어를 방해하여 최종 자기특성 저하로 이어질 수 있다. 따라서 본 연구에서 제시한 리본 두께 기반의 멜트스피닝 공정 최적화 전략은 단순히 비정질 리본을 제조하기 위한 조건 도출에 그치지 않고, Ce 치환 Nd-Ce-Fe-B 열간변형 자석의 최종 자기특성 향상으로 직접 연결될 수 있음을 보여준다. 다만, 여기서 제시한 약 20 μm 전후의 유효 두께 범위는 본 연구에서 사용한 합금 조성, 장비 구성, 냉각 휠 상태 및 노즐 형상 등의 실제 열전달 조건 하에서 도출된 경험적 기준이므로, 장비 사양이나 공정 환경에 따라 달라질 수 있다.

IV. 결 론

본 연구에서는 멜트스피닝 공정의 휠 속도, 분사압, 노즐

직경, 노즐-휠 간격 및 용탕 온도가 Nd-Ce-Fe-B 리본의 두께와 상구조를 제어하는 주요 공정 변수임을 확인하였다. 이들 변수는 용탕 유량, 용탕 풀의 체적과 안정성, 냉각 휠로의 열추출 조건을 변화시킴으로써 최종 리본 두께와 상형성에 영향을 미쳤다. 특히 리본 두께가 증가할수록 휠 접촉면과 자유 표면 사이의 냉각속도 구배가 커져, 자유 표면 부근에서 부분 결정화가 촉진되는 경향을 보였다. XRD 분석 결과, 비정질 리본은 휠 속도 30~40 m/s, 분사압 20~40 kPa, 노즐-휠 간격 4~10 mm, 노즐 직경 0.2~0.4 mm 및 용탕 온도 1,050~1,100 $^{\circ}\text{C}$ 조건에서 확보되었다.

본 연구에서 사용한 합금 조성 및 멜트스피닝 장비 조건에서는, 비정질 리본 형성과 연속적인 리본 수득을 동시에 만족하는 유효 두께 범위가 약 20 μm 전후로 해석되었다. 따라서 Ce 치환 Nd-Ce-Fe-B 열간변형 자석용 비정질 전구체를 안정적으로 수득하기 위해서는 단순히 냉각속도를 높이기 위해 리본을 최대한 얇게 제조하는 것이 아니라, 리본의 비정질화와 형상 안정성을 동시에 만족할 수 있도록 공정 변수를 조절하여 최종 리본 두께와 두께 균일성을 제어하는 것이 중요하다.

또한 최적화된 비정질 전구체를 이용하여 제조한 열간변형 자석은 결정질 전구체를 사용한 경우보다 우수한 자기특성을 나타내었다. 이는 멜트스피닝 공정에서의 비정질 전구체 확보가 후속 열간변형 과정에서 CeFe_2 등 이차상 형성을 억제하고, 균일한 미세조직 형성에 기여하여 최종 자기특성 향상으로 이어질 수 있음을 보여준다. 따라서 본 연구에서 제시한 멜트스피닝 공정 변수-리본 두께-상구조 간의 상관관계는 고성능 Ce 치환 Nd-Ce-Fe-B 열간변형 자석 제조를 위한 실질적인 전구체 공정 설계 지침으로 활용될 수 있다.

감사의 글

This work was partly supported by the Nano & Material Technology Development Program through the National Research Foundation of Korea (NRF) funded by Ministry of Science and ICT (RS-2023-00282096) and the Korea Evaluation Institute of Industrial Technology through grants funded by the Ministry of Trade, Industry & Energy (Korea) (Nos. 00445668).

References

- [1] O. Gutfleisch, M. A. Willard, E. Brück, C. H. Chen, S. G. Sankar, and J. P. Liu, *Adv. Mater.* **23**, 821 (2011).
- [2] Y. Matsuura, *J. Magn. Magn. Mater.* **303**, 344 (2006).
- [3] K. Hono and H. Sepehri-Amin, *Scr. Mater.* **67**, 530 (2012).

- [4] K. Hioki, *Sci. Technol. Adv. Mater.* **22**, 72 (2021).
- [5] R. W. Lee, *Appl. Phys. Lett.* **46**, 790 (1985).
- [6] J. G. Lee, J. H. Yu, H. J. Kim, and T. S. Jang, *J. Kor. Magn. Soc.* **22**, 58 (2012).
- [7] H. R. Cha, Y. K. Baek, J. G. Lee, and D. H. Kim, *J. Kor. Magn. Soc.* **29**, 98 (2019).
- [8] H. Chen, W. Q. Liu, Z. Z. Guo, T. Yang, H. Wu, Y. Qin, Y. Li, H. Zhang, and M. Yue, *Acta Mater.* **235**, 118102 (2022).
- [9] G. Y. Kim, H. R. Cha, Y. K. Baek, Y. K. Kim, D. H. Kim, Y. D. Kim, and J. G. Lee, *J. Magn.* **25**, 197 (2020).
- [10] G. Y. Kim, T. H. Kim, H. R. Cha, S. H. Lee, D. H. Kim, Y. D. Kim, and J. G. Lee, *J. Mater. Sci. Technol.* **126**, 71 (2022).
- [11] I. Poenaru, A. Lixandru, K. Güth, A. Malfliet, S. Yoon, I. Škulj, and O. Gutfleisch, *J. Magn. Magn. Mater.* **478**, 198 (2019).
- [12] X. Tang, H. Sepehri-Amin, A. Bolyachkin, T. Ohkubo, and K. Hono, *Acta Mater.* **228**, 117747 (2022).
- [13] X. Tang, H. Sepehri-Amin, M. Matsumoto, T. Ohkubo, and K. Hono, *Acta Mater.* **175**, 1 (2019).
- [14] J. F. Herbst, *Rev. Mod. Phys.* **63**, 819 (1991).
- [15] J. Jin, Z. Zhang, L. Zhao, B. Peng, Y. Liu, J. M. Greneche, and M. Yan, *Scr. Mater.* **170**, 150 (2019).
- [16] H. R. Cha, T. H. Kim, and J. G. Lee, *J. Korean Magn. Soc.* **32**, 72 (2022).
- [17] R. Chen, X. Xia, X. Tang, and A. Yan, *Mater.* **16**, 4789 (2023).
- [18] G. Y. Kim, T. H. Kim, H. R. Cha, and J. G. Lee, *Proceedings of the Korean Magnetism Society Conference* **33**, 118 (2023).
- [19] G. Y. Kim, T. H. Kim, H. R. Cha, S. H. Lee, D. H. Kim, Y. D. Kim, and J. G. Lee, *Scr. Mater.* **214**, 114676 (2022).
- [20] R. Sabbaghizadeh, R. Shamsudin, N. Deyhimihaghighi, and A. Sedghi, *Dig. J. Nanomater. Biostruct.* **11**, 1239 (2016).
- [21] T. Saito, *J. Alloys Compd.* **505**, 23 (2010).
- [22] K. Gandha, X. Liu, W. Tang, and I. C. Nlebedim, *J. Appl. Phys.* **128**, 153901 (2020).
- [23] J. F. Herbst, M. S. Meyer, and F. E. Pinkerton, *J. Appl. Phys.* **111**, 07A718 (2012).
- [24] I. Shchetinin, P. Aggrey, I. Bordyuzhin, A. Savchenko, M. Gorshenkov, M. Zhelezniy, V. Menushenkov, and P. Mogil'nikov, *Metals* **9**, 497 (2019).
- [25] Z. Y. Zhang, L. Z. Zhao, X. C. Zhong, D. L. Jiao, and Z. W. Liu, *J. Magn. Magn. Mater.* **441**, 429 (2017).
- [26] Y. Zhong, J. Wang, Z. Yuan, R. Liu, M. Zhu, Z. Liu, X. Chen, W. Li, and Z. Guo, *J. Rare Earths* **42**, 690 (2024).
- [27] B. Karpe, B. Kosec, and M. Bizjak, *J. Achiev. Mater. Manuf. Eng.* **46**, 88 (2011).
- [28] M. Srinivas, B. Majumdar, G. Phanikumar, and D. Akhtar, *Metall. Mater. Trans. B* **42**, 370 (2011).
- [29] A. Zaluska, Y. Xu, Z. Altounian, J. O. Ström-Olsen, R. Allem, and G. L'Espérance, *J. Mater. Res.* **6**, 724 (1991).
- [30] R. E. Napolitano and H. Meco, *Metall. Mater. Trans. A* **35**, 1539 (2004).
- [31] P. H. Steen, J. K. Carpenter, and H. Yu, *AIChE J.* **34**, 1673 (1988).
- [32] V. I. Tkatch, A. I. Limanovskii, S. N. Denisenko, and S. G. Rassolov, *Mater. Sci. Eng. A* **323**, 91 (2002).
- [33] S. Madireddi, *Eng. Sci. Technol. Int. J.* **23**, 1162 (2020).