ISSN (Print) 1598-5385
ISSN (Online) 2233-6648
≪해설논문≫ Journal of the Korean Magnetics Society 22(6), 221-227 (2012) http://dx.doi.org/10.4283/JKMS.2012.22.6.221

희토류 영구자석의 현황 및 개발 동향

남궁석 · 조상근 · 김진배*
LG전자, 소재부품연구소, 서울시 서초구 우면동 16, 137-724

(2012년 11월 8일 받음, 2012년 12월 3일 최종수정본 받음, 2012년 12월 3일 게재확정)

고특성 영구자석은 하이브리드 및 전기자동차의 구동모터와 풍력발전에 적용되면서 크게 주목을 받고 있다. Nd-Fe-B 영구자석은 가장 높은 최대자기에너지적을 가지고 있지만 고온(~200 °C)의 구동환경에서는 보자력이 급격히 감소하기 때문에 사용할 수 없는 단점을 가지고 있다. 그러므로 큰 보자력을 가지는 Nd-Fe-B 영구자석에 대한 개발이 요구되고 있다. Nd-Fe-B 소결자석에서 보자력을 증가시키기 위해서는 Nd를 Dy 또는 Tb으로 치환하면 쉽게 증가시킬 수 있다. 그러나 이들 원소는 Fe와 반강자성 결합을 하여 잔류자속밀도를 낮추고, 적은 매장량과 한정된 지역에 편재되어 있어 수요급증에 따른 자원수급 및 가격 급등의 문제를 가지고 있다. 따라서, Dy 및 Tb과 같은 중희토류를 사용하지 않거나 최소한의 양을 사용하여 보자력을 증가시키고자 하는 연구가 많이 진행되고 있다. 본 논문에서는 이러한 중희토류 원소의 저감 및 대체에 대한 연구들을 소개하고자 한다.

주제어 : Nd-Fe-B, 영구자석, 보자력, 희토류

I. 서 론

희토류 영구자석은 높은 자속밀도로 인해 넓은 응용분야에서 다양한 부품으로 이용되고 있다. 또한 제품의 소형화와 경량화에 필수적인 산업 소재로 놀라운 발전을 거듭하고 있다[1]. 최근에는 미래형 자동차, 전동기, 발전기, 그린 에너지 등 차세대 성장동력산업에서도 자성소재와 그 응용부품이 더욱 중요한 위치를 차지하고 있다. Fig. 1에 예시된 것과 같이 일반적으로 자성소재는 보자력($_iH_c$)의 크기에 의해 연자성[1 kA/m(13 Oe) 이하], 반경자성[1~40 kA/m(13~52 Oe)], 경자성[50 kA/m(65 Oe) 이상] 소재들로 구분된다[1]. 경자성 소재인 영구자석은 외부자장에 의해서 포화 자화값 이상으로 착자가 되면 외부자장을 제거해도 잔류자화에 의해 자성을 유지하는 특성을 가지고 있다.

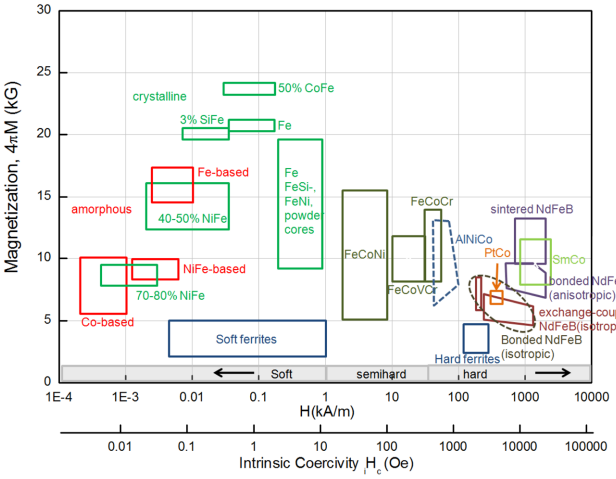

Fig. 1. (Color online) Magnetization versus coercivity of soft and hard magnetic materials [1].

Fig. 2는 영구자석의 개발 단계를 보여주고 있다[2]. 1916년에 KS-steel이 개발된 이후에, ferrite 및 alnico 자석을 포함한 10종 이상의 영구자석이 개발되었고, 희토류계 영구자석의 출현으로 영구자석의 성능은 매우 빠르게 발전되었다. 특히 Nd-Fe-B 영구자석은 최대자기에너지적[$(BH)_{max}$]이 KS-steel의 60배 정도에 달하는 높은 특성을 나타내고 있다. 희

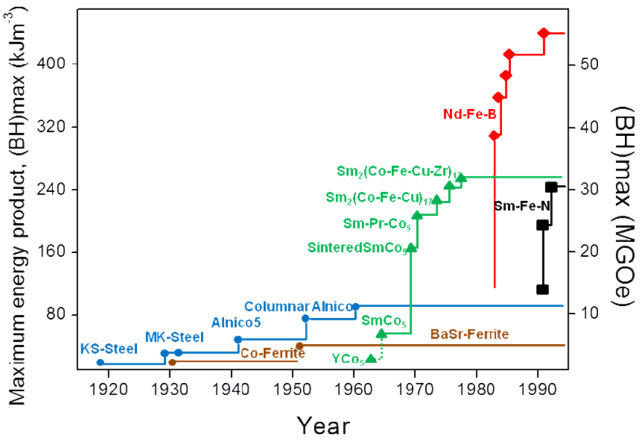

Fig. 2. (Color online) Progress of hard magnetic materials in the 20th century [1].

© The Korean Magnetics Society. All rights reserved.
*Corresponding author:
Tel: +82-2-526-4428, e-mail: jinbae.kim@lge.com

토류 영구자석은 3d와 4f 원소의 합금으로 이루어진 강자성 합금으로 3d 원소는 높은 포화 자화값과 적절한 큐리온도를 제공하고, 4f 원소는 Alnico 자석의 형상이방성 보다 큰 결정자기이방성을 제공한다.

최초의 고특성 희토류계 영구자석은 1966년에 개발된 $CaCu_5$ 구조의 $SmCo_5$ 영구자석으로 큰 결정자기이방성과 높은 포화 자화값으로 최대자기에너지적은 160 kJ/m^{3}을 갖는다[3]. 또한 높은 큐리온도(747 °C)를 가지는 자기적 특성으로 인해서 내열 안정성을 요구하는 조건에 적합한 영구자석이다. $SmCo_5$ 영구자석은 더 높은 포화 자화값을 갖는 조성을 만들기 위해서 Co의 함량을 높인 Sm_2Co_{17} 조성이 개발되었다. 이는 $SmCo_5$ 조성에 비해 높은 포화 자화값을 가지나, 자기이방성 및 Curie 온도는 $SmCo_5$에 비해 작은 값을 갖는다. 그 이후에 Sm_2Co_{17} 조성에 Fe, Cu 및 Zr 등을 첨가하여 최대자기에너지적이 264 kJ/m^{3}로 향상된 영구자석들이 개발되었다[4].

높은 자기적 특성과 열적 안정성을 가지고 있는 Sm-Co계 영구자석의 가장 큰 단점은 Sm과 Co 원소의 적은 매장량으로 인한 높은 가격과 불안정한 수급으로 인해 발생되는 문제들로, 이를 개선하기 위해서 비슷한 특성을 갖는 Fe계의 $Nd_2Fe_{14}B$ 영구자석이 개발되었다[5, 6]. 1984년에 melt-spinning 방법과 분말야금공정을 이용하여 새롭게 개발된 $Nd_2Fe_{14}B$ 영구자석은 Sm-Co계 영구자석에 비해 저가의 소재이며, 높은 포화 자화값으로 자성소재 중 최대자기에너지적(290 kJ/m^3)이 가장 우수한 특성을 갖게 되어 Sm-Co 자석을 빠르게 대체하게 되었다. 하지만 낮은 Curie 온도(312 °C)를 가지는 자기적 특성으로 인해 고온 응용분야에서는 제한적으로 사용되게 되었다. 상용 Nd-Fe-B 영구자석은 합금조성, ingot 제조법, 자장성형 및 표면 코팅 등의 개선을 통해 최대자기에너지적이 474 kJ/m^{3}에 이르는 강력한 영구자석이 개발되었다[7].

희토류계 영구자석의 개발은 자석산업 전반에 대해서 매우 빠른 성장을 가져왔으며, 동시에 다양한 소재 개발 및 대량생산 공정의 개선을 이루어 왔다. 현존하는 자석 중에 가장 높은 최대자기에너지적을 갖는 Nd-Fe-B 영구자석은 2000년대 중반까지는 부품의 소형화, 경량화 및 에너지 효율 향상을 위한 방향으로 연구가 주로 진행되어 왔다. 최근에는 고특성 영구자석의 응용분야가 고효율 모터를 필요로 하는 전기자동차 분야로 확대되고 있다. 하이브리드 및 전기 자동차에서의 구동모터는 고온(~200 °C) 환경에서도 안정적으로 동작하면서 효율을 극대화 하는 방향으로 연구가 진행되고 있으며, 이러한 분야에 적용하기 위해서 고온 내열성을 가진 Nd계 영구자석에 대한 연구가 활발히 이루어지고 있다. 본 논문에서는 희토류계 영구자석의 대표적인 소재인 Nd-Fe-B 소결자석의 연구개발 동향에 대해서 기술하고자 한다.

II. Nd-Fe-B 영구자석의 연구동향

1. Nd-Fe-B 소결자석의 제조 공정

286 kJ/m^{3}의 최대자기에너지적을 가지는 Nd-Fe-B 영구자석의 개발 이후로 지난 26년간 최대자기에너지적을 비약적으로 증가시켜서, 현재에는 474 kJ/m^{3}의 최대자기에너지적을 가지는 고특성 영구자석으로 개발되었다. Nd-Fe-B 영구자석에서 최대자기에너지적을 향상시켰던 요인은 주상인 $Nd_2Fe_{14}B$의 높은 자기적 특성과 제조 공정상의 발전에 기인한다. 그러나 Nd-Fe-B 영구자석은 반자기 특성에 의해서 고온에서 쉽게 감자되는 특성을 가지고 있으며, 이를 개선하기 위해서는 이방성 자계를 높여서 고보자력을 가지도록 해야 한다. Nd-Fe-B 영구자석에서 보자력을 향상시키기 위해서는 $Nd_2Fe_{14}B$ 결정립에서의 결함으로부터 발생되는 역방향 자구의 핵생성을 고려해야 된다. 이러한 형태의 보자력 기구에서는 결정립 내부의 결함이 역방향으로 자화 된 자구를 쉽게 생성하고 자구벽의 이동이 연쇄적으로 이루어져 자화반전이 전체적으로 일어나게 된다. 따라서 $Nd_2Fe_{14}B$ 결정립 표면의 결함은 최대한 억제해야 한다. 한편으로는 자구벽을 고착시킬 수 있는 크기의 결함이 결정립에 존재할 경우에는 외부자장에 의한 자구벽의 이동이 방해를 받게 된다. 따라서 포화가 이루어지려면 자구벽이 결함을 통과하여 지나갈 수 있을 만큼의 높은 외부자장이 필요하게 된다.

일반적인 Nd-Fe-B 소결자석은 $Nd_2Fe_{14}B$, Nd-rich 및 B-rich의 3가지 상으로 구성된다. Nd-rich 상은 665 °C 이상에서는 액상으로 존재하기 때문에 액상소결이 가능하게 되어 소결시에 치밀화를 향상시키는 작용을 하게 된다. 또한 액상의 Nd-rich 상은 입계를 따라서 형성이 이루어지기 때문에 $Nd_2Fe_{14}B$ 결정립 표면의 결함을 감소시키고, 이를 통해 역방향 자구의 생성이 억제되어 보자력을 향상시키는 효과도 얻을 수 있다. 또한, 비자성상인 Nd-rich 상은 $Nd_2Fe_{14}B$ 결정립 주위에 얇은 계면층을 형성하여 자기절연 효과를 나타내고, 주상간의 자기상호교환을 제한하여 보자력을 증가시키게 된다. 따라서 Nd-Fe-B 영구자석에서 Nd-rich 상은 필수적이다. 하지만, Nd-rich 상은 산화되기 쉬운 특성을 가지고 있어서 주상의 계면에서 Fe와 같은 연자성상의 석출을 야기하여 보자력을 감소 시키는 원인이 된다. 따라서 Nd-Fe-B 소결자석의 자기특성 향상을 위해서는 Nd-rich 상의 산화를 최대한 억제하는 동시에 부피 분율은 최소화하고, 소결자석의 조성은 $Nd_2Fe_{14}B$의 화학양론적 조성에 근접하게 설계해야 한다.

반면에 $Nd_2Fe_{14}B$의 Ingot을 화학양론적 조성에 근접한 조성으로 제조하게 되면, Fe 상이 석출되어 역방향 자구가 생성되는 요인으로 작용하게 된다. 따라서, Fe 상의 석출을 억제하고 조성비에 맞게 제조하기 위해서는, 유도가열을 이용하

여 모재를 1600 °C 이상으로 가열한 후에 Cu wheel에 급속 냉각하는 방식의 strip casting을 이용하면 조성비에 맞게 제조가 가능하다. Strip casting을 이용하면 $Nd_2Fe_{14}B$와 Nd-rich 상으로 구성된 4~6 μm 정도의 주상구조를 갖는 strip을 얻을 수 있다.

Nd-Fe-B strip은 조분쇄를 위해서 수소처리공정(hydrogen decrepitation)을 진행하게 되고 이를 통해서 부서지기 쉬운 형태의 입자크기가 큰 분말을 얻게 된다[8]. 수소처리공정은 Nd-Fe-B strip에 수소가 흡착되는 과정에서 $Nd_2Fe_{14}BH_{2.1}$ (4.8 %)과 NdH_3(16.4 %)의 서로 다른 부피 팽창을 이용하여 조분쇄를 하는 공정이다[9]. 조분쇄 후에 약 3~5 μm의 크기의 분말을 제조하기 위한 미분쇄 공정으로는 jet-mill을 이용하게 된다. 분말들을 고속의 가스 흐름속에서 충돌시켜서 미분쇄하는 공정으로 압축 불활성 가스를 사용하여 미분쇄를 진행하기 때문에 추가적인 오염이나 산화를 억제할 수 있다.

결정 자기이방성을 가진 재료는 특정 방향으로 자화가 잘 되는 이른바 자화용이축을 갖는다. 결정 자기이방성을 갖는 소재가 외부 자장에 의하여 자화용이축으로부터 자화 방향이 벗어나기 위해서는 그 만큼의 에너지가 필요하다. 따라서 미분쇄된 분말을 이용한 자장 중 성형은 영구자석에서 자기적 특성을 결정하는 중요한 공정이다. 최근의 자장 성형은 펄스 자장과 고압을 이용하여 $Nd_2Fe_{14}B$의 결정립들을 c-축의 한 방향으로 정렬을 시키는 공정들이 진행되고 있다. 또한, 최종 공정 단계인 소결 및 열처리 공정에서는 분위기의 조절을 통한 대기중의 노출을 최대한 억제하는 방향으로 진행되고 있다. 소결 후에 열처리를 실시하게 되면 입계조직의 발달과 구조변화를 일으켜 강자성 결정립을 자기적으로 절연시켜 주게 되며, 이러한 미세구조의 개선을 통해 역방향 자구가 생성될 수 있는 요인들이 감소함으로써 보자력이 향상된다[10, 11]. 후가공 공정에서는 Nd-Fe-B 자석이 대기 중에서 쉽게 부식되는 단점을 보완하기 위해서, 일반적으로 Ni 또는 Al 등의 금속을 이용한 도금을 하거나 도료를 이용한 전착도장을 실시한다.

2. Nd-Fe-B 소결자석의 기술 동향

Nd-Fe-B 영구자석이 하이브리드 자동차용 구동모터 등과 같은 고온 환경이 요구되는 분야에 적용되기 위해서는 높은 열적 능력을 필요로 한다. 그러나 Nd-Fe-B 소결자석은 큐리 온도가 낮고, 보자력의 온도계수(≒ 0.55 %/°C)가 커서 높은 온도에서 보자력이 급격히 감소하여 자기적 특성이 급격하게 열화되는 단점이 있다. 따라서, Nd-Fe-B 자석에서 높은 열적 안정성을 확보하기 위해서는 상온에서 보자력이 약 2.4 MA/m가 유지되어야 한다. 이러한 보자력 특성을 충족시키기 위해서는 이방성자장이 매우 큰 Dy 또는 Tb과 같은 중희토류 원소를 첨가하여 Nd를 치환하는 것이 일반적이다. 이러한 중희토류 원소의 첨가로 보자력 특성은 개선이 되지만, 자기 모멘트는 $R_2Fe_{14}B$(R: 희토류) 조성에서 Fe와 반대로 정렬되는 반강자성 결합을 하게 되어 포화자화값을 낮추게 되고, 최대 자기에너지적의 감소가 동시에 나타나게 된다. 또한 Nd에 비해 적은 부존량과 지역적으로 자원이 편중되어 있어 수급과 가격에 있어서 불안요소를 가지고 있다. 그러므로 고보자력을 가지면서도 Dy-free 또는 Dy 저감의 Nd-Fe-B 소결자석 개발이 강하게 요구되고 있다.

3. Dy 저감의 Nd-Fe-B 소결자석

2005년에 Shin-Etsu Chemical에서 GBDP(Grain Boundary Diffusion Process)라 불리는 새로운 공정을 보고하였다[12, 13]. GBDP는 Nd-Fe-B 소결자석의 결정립계를 따라서 Dy를 분포시키는 공정으로 잔류자화의 감소 없이 보자력은 증가된다. 입계 확산을 위한 열처리 공정 중에 중희토류(Dy, Tb) 원소들은 Nd-rich 상에서 Nd에 의해 치환되고 결정립계를 따라 확산되어 간다. 이러한 확산은 결정립 주변으로 중희토류 원소의 함량이 높은 shell을 형성하는 결과를 가져온다. Fig. 3은 Nd-Fe-B 자석의 GBDP를 실시한 경우와 실시하지 않은 일반적인 binary alloy 영구자석의 감자곡선을 나타낸다[14]. GBDP 공정은 일반적인 binary alloy 방법과 비교하여 Dy의 확산온도가 낮아 결정립 내부로 확산되는 중희토류의 양이 적게 된다. 결국, 결정립내의 중희토류 함량을 낮출 수 있어 잔류 자화값의 감소도 줄이면서 보자력를 증가시킬 수 있는 결과를 가져오게 된다. GBDP에서 TbF_3 처리된 Nd-Fe-B 자석의 보자력은 환산전과 비교하여 400 kA/m 이상 증가가 가능하고, 약 3 mm 두께의 자석까지 적용이 가능한 것으로 보고가 되고 있다[13].

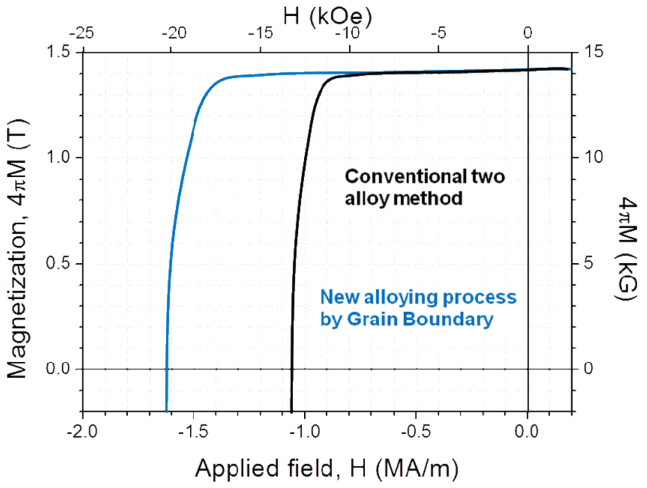

Fig. 3. (Color online) Demagnetization curves of the conventional two-alloy and GBDP magnets [14].

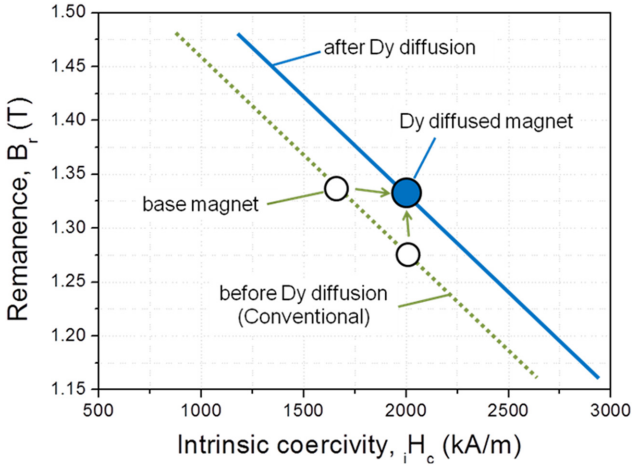

Fig. 4. (Color online) Magnetic properties of Dy diffused magnet [16].

Hitachi Metals은 진공증착기술을 이용한 GBDP 방법으로 진공 내에서 Dy를 기화시켜 Dy 원자를 결정립계로 확산시키는 기술을 적용하고 있다[15]. 일반적인 Nd-Fe-B 소결자석에 이 방법을 적용시키면 잔류자속밀도는 유지하면서 보자력은 320 kA/m 이상으로 향상된 자석을 얻을 수 있다. 또한, 이 방법을 통해 보자력은 유지하면서 40 mT 이상의 잔류자속밀도를 증가시킬 수 있다[15]. Fig. 4는 GBDP를 이용한 Nd-Fe-B 소결자석의 특성을 나타내고 있다[16]. 이 기술을 통하여 제조된 Nd-Fe-B 소결자석의 Dy 사용량은 일반적으로 제조된 소결자석에 비해 1/10 수준으로도 보자력 향상을 이룰 수 있으며, Dy의 농도 및 분포를 제어할 수 있다.

TDK는 two-alloy 방법을 개선하여 Nd-Fe-B 자석의 소결이 진행되는 동안 Dy의 분포를 제어함으로써 결정립계 부근의 나노구조를 최적화하였고, 이를 H-HAL(Homogeneous High Anisotropy field Layer) 공정이라고 하였다. H-HAL 공정은 분말제조과정에서 약 1.5 μm의 직경을 갖는 Dy-Fe 합금 분말을 Dy의 소스로 공급하여, Nd-Fe-B 합금분말과 고속의 jet-mill 공정을 통해 분쇄와 동시에 균일하게 혼합시키는 것을 특징으로 한다. Fig. 5는 H-HAL 공정을 이용하여 제조된 소결자석의 mapping 이미지로 Dy가 입계 부분에 균일하게 분포되어 있는 것을 확인할 수 있다[17]. H-HAL 공정을 통해서 8 % 이하의 Dy를 첨가한 소결자석에서 보자력 2.4 MA/m 이상의 값을 나타내었고, 이는 20 %의 Dy 저감 효과를 보여주는 결과이다.

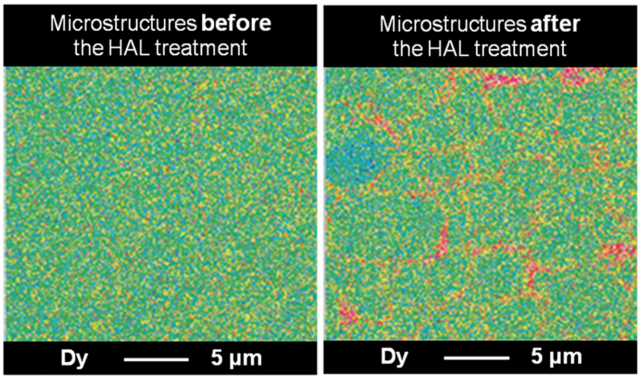

Fig. 5. (Color online) Dy compositional images taken from magnets using the HAL process [17].

4. Dy-free Nd-Fe-B 소결자석

Fig. 6은 미세구조에 따라 보자력을 증가시킬 수 있는 방법들을 나타내고 있다[18]. 첫 번째 방법은 결정립 크기를 미세화 함으로써 소결자석 결정립의 다자구 상태를 단자구 상태로 만들어 결정자기이방성의 효과를 최대한 높이는 방법이다. 이는 $Nd_2Fe_{14}B$ 분말의 크기를 줄이는 방법으로 미세분말들의 강한 산화반응을 억제할 수 있는 기술이 요구되고 있다. 두 번째 방법으로는 $Nd_2Fe_{14}B$과 Nd-rich 상의 입계 미세구조를 제어함으로써 $Nd_2Fe_{14}B$ 결정립 표면에서의 결함으로부터 생기는 역자구의 생성과 성장으로 인한 자화반전의 발생을 최대한 억제하는 방법이다. 일반적인 자성소재에서 결정립 내부에 결함이 존재하지 않고 자구와 자구벽 만이 존재할 경우, 외부자장을 걸어주면 자구벽이 쉽게 움직이면서 외부자장과 같은 방향으로 자구가 정렬하게 되어 낮은 자장에서 포화가 이루어진다. 포화가 이루어진 상태에서 반대방향으로 자장을 걸어주면 어느 정도의 자장에서 자구들은 180° 회전하게 될 것이고, 이때의 외부 자장값은 보자력이 되는 것이다.

일반적으로 결정립이 작으면 다자구보다 단자구로 존재하는 것이 에너지적으로 안정하다. 다자구 상태의 영구자석에서는 작은 에너지로 인접한 자구로의 자화반전이 도미노처럼 쉽게 전파되어 보자력이 작아진다. 그러나, 단자구 상태에서는 더 큰 에너지에 의해 자화반전이 발생함으로 감자되는 것을 제한할 수 있고 보자력이 높아진다. 이러한 원리를 이용하여 Nd-Fe-B 소결자석에서 결정립 크기를 줄이기 위한 방법으로 Intermetallics의 Sagawa에 의해 PLP(Press-less Process)가 보고되었다[19]. PLP는 고속의 헬륨가스를 이용한 jet-mill 공

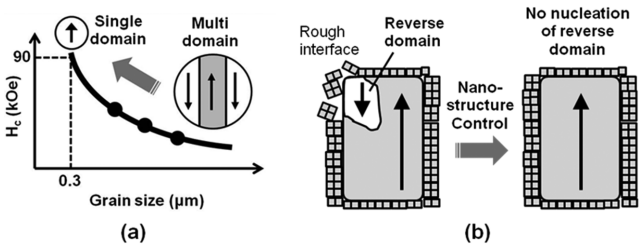

Fig. 6. (a) Grain refinement and (b) interfacial control methods for the preparation of high coercivity sintered Nd-Fe-B magnet [18].

정을 통해서 1 μm의 초미세 분말을 제조한 후 Nd-Fe-B 분말의 산화 방지를 위해 고농도의 불활성 가스로 채워진 몰드 내에 장입하고 충진 밀도를 높이기 위해 가볍게 누르는 정도의 tapping을 실시한 뒤, 강한 펄스 자장을 인가하여 $Nd_2Fe_{14}B$ 결정립들을 자장방향으로 정렬을 하도록 유도한다. 분말이 장입되어 있는 몰드는 자장 정렬 후에 소결 및 열처리를 진행한다. 일반적인 공정에서는 미세 분말을 사용할 경우에 자장 성형시 고압이 필요하지만 PLP의 경우에는 자장 성형시 고압이 필요하지 않으며, 미세 분말을 사용하는 공정에 적합하다고 보고되고 있다[19]. PLP로 제조된 Dy-free의 Nd-Fe-B 소결자석은 보자력 1.36 MA/m, 최대자기에너지적 약 400 kJ/m^{3}의 결과를 나타내는 것으로 보고가 되고 있으며, 이는 일반적으로 제조된 자석과 비교하여 20~30 %의 Dy를 절감한 효과이다.

주상의 결정립을 미세화 하기 위한 다른 방법으로는 물리적으로 파쇄하지 않고 화학반응을 이용한 HDDR(Hydrogenation, Disproportionation, Desorption and Recombination) 공정이 있다[20]. 이 공정은 $Nd_2Fe_{14}B$ 합금을 30 kPa의 수소압력하에서 열처리를 하여 수소와 반응시키는 hydrogenation 공정, 수소와의 반응에 의해 NdH_2, Fe, Fe_2B 상으로 분해가 일어나는 disproportionation 공정, 이후 진공 중에서 추가 열처리를 진행하여 수소가 제거됨으로써 Nd, Fe, Fe_2B 상이 형성되는 desorption 공정, 그리고 재결합이 일어나 50~300 nm 크기의 $Nd_2Fe_{14}B$ 결정립이 생성되는 recombination 공정으로 구성된다. Melt-spinning 방법과 비교하였을 때, HDDR 공정이 갖는 장점은 수소 분압 및 온도 제어에 의해 $Nd_2Fe_{14}B$ 상이 Fig. 7에서와 같이 c-축으로 정렬된 이방성 분말을 만들 수 있다는 것이다[21-23]. 이와 같이 제조된 HDDR 분말은

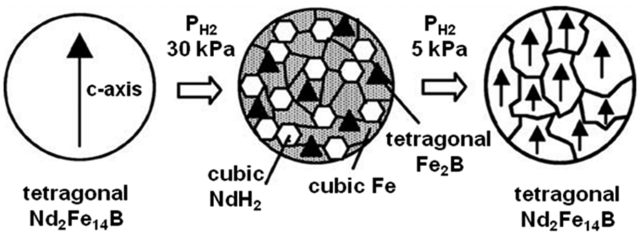

Fig. 7. Schematic illustration of the d-HDDR process showing the texture memory effect [22].

주로 레진과 혼합되어 이방성 본드자석으로 제조가 되며, 최대자기에너지적은 200 kJ/m^{3}의 값을 나타내는 것으로 알려져 있다.

근래에는 HDDR 처리를 한 Nd-Fe-B 분말의 열적 특성을 향상 시키기 위해서 Dy와 Tb를 사용하지 않고 보자력을 높이는 공정으로 HDDR 처리된 분말을 Nd-Cu-Al 또는 Nd-Cu 분말과 함께 혼합하여 약 600 °C에서 열처리하는 기술이 이용되고 있다. 600 °C에서 Nd-Cu-Al 또는 Nd-Cu 분말은 액상으로 되어 HDDR 분말의 결정립계를 따라 확산되어 가고, 그로 인해 $Nd_2Fe_{14}B$ 결정립은 Nd-rich 상에 의해 고립이 되어 결정립간의 자기적 결합을 차단하는 기능과 결정립 계면의 결함을 최소화 하여 역자구의 생성을 최소함으로써 보자력의 증가를 가져오게 된다[24-26]. 이러한 방법을 통하여 Dy을 첨가하지 않고 Nd 합금의 혼합 전과 비교하여 320 kA/m의 보자력이 증가하는 것으로 알려져 있다[27].

이와 같이 HDDR 분말은 대개 본드자석용 분말로 사용하지만, HDDR 처리 이후 분말의 결정립이 작아지는 이점을 이용하여 벌크화 하려는 연구도 진행 중에 있다. Hono 그룹에 의하면 HDDR 처리한 분말을 spark plasma sintering을

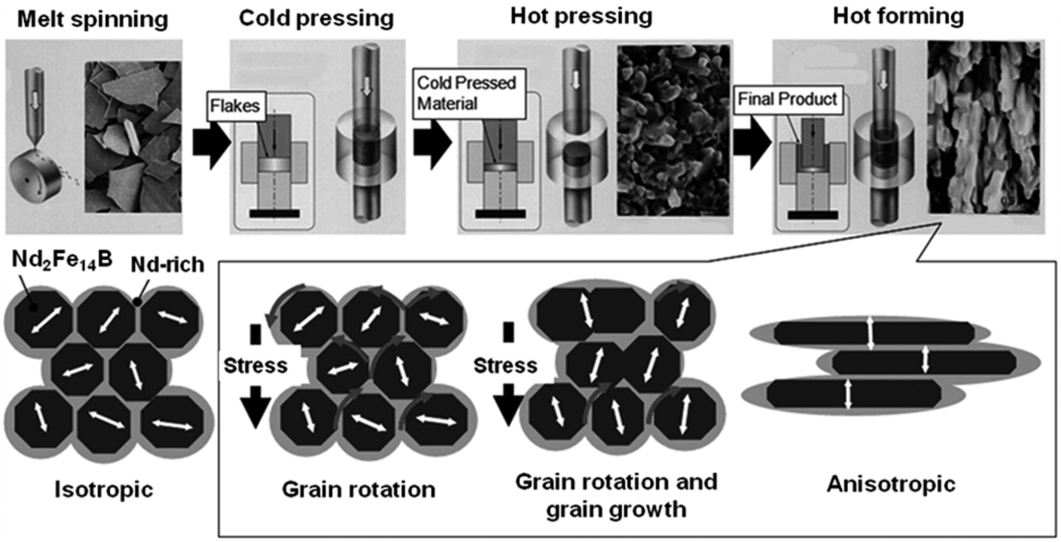

Fig. 8. A schematic illustration of fabrication process of Nd-Fe-B die-upset magnets [31].

이용하여 소결함으로써 210 kJ/m^{3}의 최대자기에너지적을 나타내는 것으로 보고된 바 있다[28].

미세한 결정립을 얻을 수 있는 다른 방법으로는 melt-spinning을 이용한 급속냉각법이 있다. Melt-spinning 방법은 용해된 합금을 불활성 분위기에서 빠르게 회전하는 냉각 휠에 분사하는 것으로 최종적으로 리본이나 flake를 얻을 수 있다. 이렇게 제조된 리본으로부터 열처리를 통하여 20~50 nm 크기의 나노결정 구조를 갖는 결정립을 얻을 수 있다. Melt-spinning에 의해 제조된 분말의 결정립들은 무작위 배열을 하고 있어서 등방성 구조를 갖게 된다. 따라서 이렇게 제조된 분말들은 일반적으로 폴리머와 혼합하여 본드자석용으로 사용된다. 그러나 hot-pressing 이후 열간가공을 하게 되면, 소성가공에 의해 결정립이 한방향으로 배향이 이루어지면서 이방성 구조를 갖게 된다[29]. 또한, 이러한 소성공정은 backward extrusion 과정을 거치게 되어, 대체로 링 형상을 갖는 영구자석 제조에 사용된다. Fig. 8에서는 소성가공에 의해 이방성 구조를 갖게 되는 공정을 도시하였다. 이러한 공정을 거친 최종 결정립의 형상은 c-축이 짧은 형상을 갖고 있기 때문에 반자장 계수값이 커지게 된다[30]. 또한, melt-spinning에 의해 제조된 분말은 입계를 따라서 이루어지는 Nd-rich 상의 형성이 제대로 주상의 결정립을 감싸지 못하기 때문에 앞서 언급한 $Nd_2Fe_{14}B$ 상의 자기적 절연이 효과적으로 이루어 지지 않는다. 따라서 더 높은 보자력을 얻기 위해서는 반자장 계수값을 낮추고, 결정립계를 개선하는 것이 중요하다.

III. 결 론

소형화, 경량화, 고효율화가 요구되고 있는 첨단부품산업에서는 고특성의 영구자석을 이용한 모터의 사용이 폭발적으로 증가하고 있다. 또한, 에너지 저감 및 환경친화형 녹색성장사업에서 화두가 되고 있는 하이브리드 및 전기자동차의 구동모터에서도 Nd-Fe-B 소결자석 등과 같은 고특성의 영구자석 소재가 본격적으로 사용되고 있다. Nd-Fe-B 소결자석은 하이브리드 및 전기자동차의 구동 중에 발생하는 열에 의해 열화되지 않기 위하여 고보자력의 영구자석이 필요하게 되었으며, 이에 대한 해결방안으로 이방성 자장이 큰 중희토류 원소를 첨가하고 있다. 하지만 중희토류 원소는 적은 매장량과 광산개발에 따른 환경오염 및 자원편중에 의한 불안정한 수급의 문제로 인해서 중희토류 원소의 사용을 줄이거나 전혀 포함하지 않는 희토류 영구자석의 개발이 진행되고 있다. 이러한 결과들로는 최소량의 중희토류 원소를 사용한 입계 확산 방법과 two-alloy 방법을 응용한 H-HAL 방법이 있으며, 중희토류 원소를 전혀 사용하지 않는 PLP 방법과 HDDR, melt-spinning을 이용하여 소결자석을 제조하는 공정이 보고되고 있다.

참고문헌

[1] O. Gutfleisch, M. A. Willard, E. Brück, C. H. Chen, S. G. Sankar, and J. P. Liu, Adv. Mater. **23**, 821 (2011).
[2] J. M. D. Coey, IEEE Trans. Magn. **47**, 4671 (2011).
[3] K. J. Strnat, IEEE Trans. Magn. **6**, 182 (1970).
[4] R. K. Mishra, G. Thomas, T. Yoneyama, A. Fukuno, and T. Ojima, J. Appl. Phys. **52**, 2517 (1981).
[5] J. J. Croat, J. F. Herbst, R. W. Lee, and F. E. Pinkerton, Appl. Phys. Lett. **44**, 148 (1984).
[6] M. Sagawa, S. Fujimura, N. Togawa, H. Yamamoto, and Y. Matsuura, J. Appl. Phys. **55**, 2083 (1984).
[7] D. Harimoto and Y. Matsuura, Hitachi Met. Tech. Rev. **23**, 69 (2007).
[8] I. R. Harris, C. Noble, and T. Bailey, J. Less-Common Met. **106**, L1 (1985).
[9] K. Oesterreicher and H. Oesterreicher, Phys. Status Solidi A **85**, K61 (1984).
[10] R. S. Mottram, A. J. Williams, and I. R. harris, J. Magn. Magn. Mater. **234**, 80 (2001).
[11] F. Vial, F. Joly, E. Nevalainen, M. Sagawa, K. Hiraga, and K.T. Park, J. Magn. Magn. Mater. **242**, 1329 (2002).
[12] H. Nakamura, K. Hirota, M. Shimao, T. Minowa, and M. Honshima, IEEE Trans. Magn. **41**, 3844 (2005).
[13] K. Hirota, H. Nakamura, M. Shimao, T. Minowa, and M. Honshima, IEEE Trans. Magn. 42, 2909 (2006).
[14] http://www.shinetsu-rare-earth-magnet.jp/e/rd/grain.html.
[15] http://www.hitachi-metals.co.jp/e/eh2009/p04.html.
[16] N. Mitsutoshi, Hitachi Met. Tech. Rev. **8**, 28 (2012).
[17] TDK, Technical Journal 4 (2011).
[18] S. Sugimoto, J. Phys. D: Appl. Phys. **44**, 064001 (2011).
[19] M. Sagawa, Proc. 22th Int. Workshop on Rare Earth Permanent Magnet and Their Applications, 3 (2012).
[20] T. Takeshita and R. Nakayama, Proc. 11th Int. Workshop on Rare Earth Permanent Magnet and their Applications, 49 (1990).
[21] T. Takeshita and K. Morimoto, J. Appl. Phys. **79**, 5040 (1996).
[22] O. Gutfleisch, K. Khlopkov, A. Teresiak, K. H. Müller, G. Drazic, C. Mishima, and Y. Honkura, IEEE Trans. Magn. **39**, 2926 (2003).
[23] Y. Honkura, C. Mishima, N. Hamada, G. Drazic, and O. Gutfleisch, J. Magn. Magn. Mater. **290**, 1282 (2005).
[24] C. Mishima, K. Noguchi, M. Yamazaki, H. Mitarai, and Y. Honkura, Proc. 21st Int. Workshop on Rare-Earth Permanent Magnets and their Applications, 253 (2010).
[25] H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, T. Nishiuchi, S. Hirosawa, and K. Hono, Scripta Mater. **63**, 1124 (2010).
[26] K. Hono, T. Ohkubo, and H. Sepehri-Amin, J. Jpn. Inst. Met. **76**, 2 (2012).
[27] C. Mishima, K. Noguchi, M. Yamazaki, and Y. Honkura, Proc. 21st Int. Workshop on Rare Earth Permanent Magnet and Their Applications, 253 (2010).

[28] K. Suresh, T. Ohkubo, Y. K. Takahashi, K. Oh-ishi, R. Gopalan, K. Hono, T. Nishiuchi, N. Nozawa, and S. Hirosawa, J. Magn. Magn. Mater. **321**, 3681 (2009).
[29] R. W. Lee, Appl. Phys. Lett. **46**, 790 (1985).
[30] K. D. Drust and H. Kronmuller, J. Magn. Magn. Mater. **68**, 63 (1987).
[31] T. Yabumi, 2008 BM News (The Japan Association of Bonded Magnetic Materials) **40**, 42 (2008).

Current Status and Research Trend of Rare-earth Permanent Magnet

Seok Namkung, Sang-Geun Cho, and JinBae Kim*
LG Electronics, 16, Woomyeon-dong, Seocho-gu, Seoul 137-724, Korea

(Received 8 November 2012, Received in final form 3 December 2012, Accepted 3 December 2012)

High performance permanent magnets have become the subject of considerable attention because of the potential applications in the traction motors of hybrid and electric vehicles and wind generators. Nd-Fe-B magnets have attracted considerable interest due to a large maximum energy product. However, Nd-Fe-B magnet cannot be used in high temperature (~200 ^{o}C) applications due to the thermal degradation of coercivity. Therefore, the development of high coercivity Nd-Fe-B permanent magnet is a challenging issue. In case of high coercivity Nd-Fe-B permanent magnet, an increment in the intrinsic coercivity can be easily achieved by substituting Nd atoms with Dy or Tb atoms. However, these heavy rare-earth elements are known to cause a decrease in remanence due to the antiferromagnetic coupling between Dy and Fe atoms. In addition, Dy is relatively expensive and being limited in quantity. Hence, a new technology that can increase the coercivity of Nd-Fe-B sintered magnet using only a small amount, or even, no amount of heavy rare-earth elements is being investigated. This article describes the research trend in reducing the heavy rare-earth elements in Nd-Fe-B magnets.

Keywords : Nd-Fe-B, permanent magnets, coercivity, rare-earth