

## RD process에 의한 Sm-Fe-N계 희토류영구자석의 제조

공주대학교 이준형\*, 조선미, 김근용, 강병민, 김용복, 송창빈

### The Production of Sm-Fe-N System Rare Earth Permanent Magnets by the Reduction and Diffusion Process

Kongju National University J.H.Lee\*, S.M.Joe, K.Y.Kim, B.M.Kang, Y.B.Kim, C.B.Song

#### 1. 서론

최근 전자제품의 소형, 경량화 추세에 따라 고성능 희토류 영구자석의 수요가 급증하고 있으며, 그 제조방법에 관한 연구도 활발하게 진행되고 있다. 그중의 하나인 환원확산법(이하 RD process라고 약한다.)은 희토류금속의 원료로서 비교적 저렴한 희토류산화물 혹은 할로겐화합물을 천이금속의 분말과 혼합하여 1000~1200 °C에서 Ca혹은 CaH<sub>2</sub>와 같은 환성물질로 환원함과 동시에 확산시켜 분말상의 목적합금을 얻어내는 제조법으로써, 이미 외국에서는 SmCo<sub>5</sub>계 및 Nd-Fe-B계 희토류 영구자석재료의 제조에 경제적·효율적인 프로세스로 대부분 채택하고 있다. 그러나 이 RD process에 관한 연구보고는 국내·외적으로 대부분 기초연구에 관한 것으로서 저자들의 것을 포함하여 몇몇의 보고가 있다. 그 중에서 Sm-Fe계의 Sm<sub>2</sub>Fe<sub>17</sub> 금속간화합물의 제조에 관한 연구는 Tanabe들이 Fe wire+Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+CaH<sub>2</sub>를 혼합한 pellet을 만들어 환원확산반응의 기초실험을 행한 데이터와, 저자들에 의한 고체 Fe중에 Sm의 확산과정의 보고가 전부이다<sup>1-3)</sup>. 따라서 본 연구는 그동안 저자들이 축적해 온 RD process의 기초적인 데이터를 토대로 Sm<sub>2</sub>Fe<sub>17</sub>N<sub>x</sub>계 영구자석의 제조를 위하여 행한 실험결과이다.

#### 2. 실험방법

실험에 사용한 시료는 순도 99.9%의 Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>분말, Fe분말(-325mesh), 그리고 98%의 칩상의 금속Ca를 사용하였다. 이하 RD실험에 사용한 Ca은 휘발되어 손실되는 양을 고려하여 이론당량의 1.5배, Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>분말의 초기조성은 Sm의 yield(actual content/target content)와 순도를 고려하여 1.07%과잉으로 첨가하였다<sup>1)</sup>. 분말시료는 소정량 천평하여 막자사발로 혼합한 후, Ca과 함께 Ta도가니에 넣고 Ar 가스분위기에서 소정온도·시간으로 RD실험을 행하였다.

RD반응 후, 얻어진 시료는 아게이트제의 막자사발로 100mesh 이하로 분쇄하여 XRD로 합금상을 관찰하였으며, 몇몇의 시료는 수지에 마운팅, 미세연마 및 에칭하여 광학현미경(OM) 및 EDAX 등으로 확산상태를 관찰하였다. 또한 일부의 시료에 대해서는 생성된 CaO를 제거하기 위하여 수선후, LECO에 의한 산소분석 및 ICP발광분석으로 합금조성의 정량분석을 행하였다.

질화처리는 고순도로 정제된 질소를 사용하여 250 °C~550 °C에서 4~16시간 행하였다. 질화처리한 분말시료는 ball mill을 이용해서 미분쇄한 후 VSM으로 자기적 특성을 조사하였다.

### 3. 실험결과 및 고찰

Fig.1은 Fe분말에 Sm의 확산상태를 파악하기 위하여 Fe분말+Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>분말+Ca칩을 혼합하여 (a)1000℃\*6h, (b)1100℃\*3h의 RD반응후 시료를 수지에 마운팅하여 그 단면을 OM으로 관찰한 결과이다. 회색이나 검게 관찰되는 부분은 CaO이며, 밝은 부분은 Fe분말에 Sm이 확산되어 Sm<sub>2</sub>Fe<sub>17</sub>금속간화합물이 성장되었음을 확인하였다. 한편 환원반응의 경우에 Ca의 용점보다 약간 높은 850℃ 및 900℃에서는 1시간의 가열에도 종료되지 않지만, 1000℃이상의 고온이 되면 수분정도에 완료됨을 확인하였다. 또한 Fe중에 Sm의 확산은 1100℃이상인 되면 환원과 동시에 빠르게 시작되지만, Fe분말의 중심까지 혹은 분말전체에 걸친 확산반응의 종료는 1100℃에서도 3h정도의 RD반응이 필요하였다. 따라서 이들의 RD반응은 확산반응이 율속단계(RDS)임을 확인하였다.

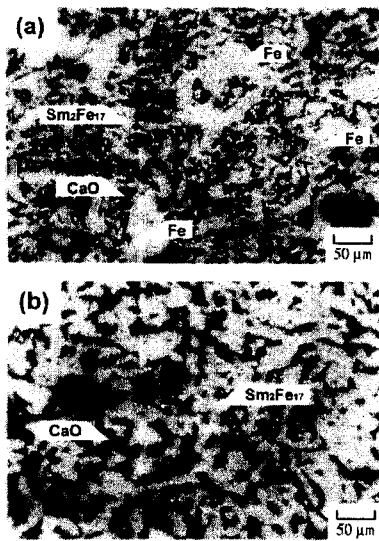


Fig.1 Photomicrographs of samples after the RD reaction ; (a) at 1000℃ for 6h, (b) at 1100℃ for 3h.

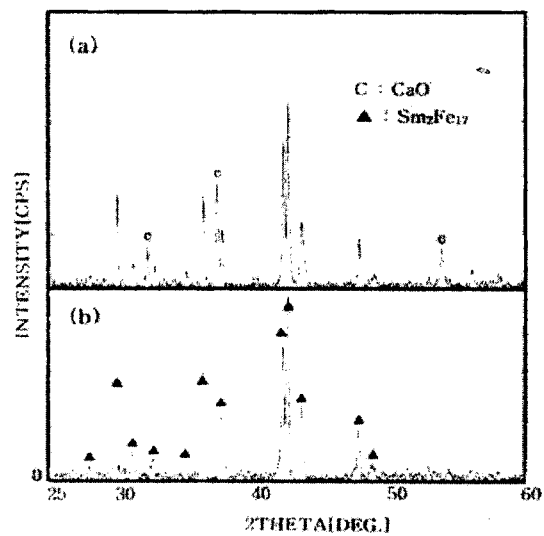


Fig.2 XRD patterns of samples after the RD reaction at 1100℃ for 3h ; (a) before washing (b) after washing.

Fig.2의 (a)는 1100℃에서 3시간 RD반응시킨 분말시료의 XRD pattern으로서 CaO peak를 제외한 나머지는 ASTM카드로부터 Th<sub>2</sub>Zn<sub>17</sub> structure의 단상의 Sm<sub>2</sub>Fe<sub>17</sub>금속간화합물이 얻어짐을 확인할 수 있었으며, (b)는 RD반응후 분말시료의 수선후 측정된 결과로서 RD반응에서 생성한 CaO가 완전히 제거되었음을 알 수 있었다.

이하 그밖의 질화처리조건 및 자기적 특성 등에 관한 실험결과들은 지면상 발표당일에 보고한다.

### 4. 참고문헌

- [1] 宋昌彬·小川 修 : 資源·素材學會誌, Vol.106, No.12, 761~767, (1990)
- [2] Tanabe, T., Hirose, S and Asaki, Z. : Proc. Int. Sympto. on Processing of Rare metals, 307~310, Kokura, Japan,(1990)
- [3] 宋昌彬·小川 修 : 資源·素材學會誌, Vol.108, No. 5, 407~411, (1992)