

환원확산법에 의한 NdFeB계 합금분말 합성

(Synthesis of NdFeB alloy powder by Reduction and Diffusion Method)

석진규* · 서동수

충남대학교 재료공학과

1. 서 론

희토류 영구자석 재료는 1960년대 이후에 발전하게 된 새로운 기능재료로서 마이크로파 통신 기술, 음향영상 기술, 전기기계 공업, 계측기기 기술, 컴퓨터 기술, 자동화 기술, 자동차 공업, 석유화학 공업, 자기분리 기술, 생물공학과 자기 치료 및 건강기기 등 그 응용범위가 매우 넓다. 희토류 영구자석 재료는 이미 당대의 신기술의 중요한 기초 기술이 되었다.

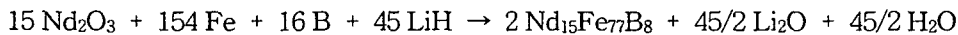
과거의 희토류 영구자석 재료의 제조방법은 크게 나눠 모합금을 만들고 그 모합금을 급냉해 ribbon을 제작 후 이것을 resin과 혼합하여 자석을 제조하는 본드자석(Bonded Magnet)과 모합금을 분쇄한 후 자장 하에서 press한 다음 소결하여 제조하는 소결자석(Sintered Magnet)으로 구분할 수 있다. 그러나 본드자석은 대량생산이 어렵고 특성이 떨어지고 소결자석은 미분쇄과정에서 산화위험성과 입자 분포의 균일화를 얻기 어렵다는 단점을 가지고 있으며, 두 공정 모두 희토류 metal powder를 사용함에 따라 원재료의 비용이 높다는 문제점을 안고 있다.

그리하여, 보다 쉬운 자석분말의 제조와 우수한 자기특성을 나타낼 수 있는 분말 입도 분포 및 형상을 가지고, 가격이 상대적으로 저렴하면서도 순도가 높은 Nd oxide를 이용하여 높은 자기특성을 갖는 자석을 제조할 수 있는 환원확산법에 대한 연구가 많은 나라에서 진행되고 있으며, 선진국에서는 이미 기술을 보유하고 있는 상태이다. 하지만 국내에서는 전량 수입에 의존하고 있어 합금분말 제조 기술 확립이 시급한 실정이다.

본 실험에서는 기존의 환원확산법을 이용함과 동시에 실험조건에 변화를 주어서 Nd-Fe-B 합금분말을 제조하고 그 물성을 측정하여 공정을 단순화하면서도 물성이 좋은 합금분말을 제조하는 공정에 초점을 맞춰서 연구를 수행하였다.

2. 실험방법

실험에 사용되는 시료로는 원재료의 값이 비싼 Nd metal powder 대신 가격이 저렴하면서도 환원 확산시 생성되는 주상인 Nd₂Fe₁₄B와 반응에 참여하지 못한 Nd-rich phase와의 상호관계에 의하여 Nd₁₅Fe₇₇B₈이라는 제 2상의 형태를 얻을 수 있는 Nd₂O₃를 사용하였으며 Fe와 B는 metal powder를 투입하였다. Nd₂O₃를 환원시키기 위해서 투입되는 환원제로는 환원력이 다른 시료들에 비해 월등히 우수한 LiH를 사용하였다. 반응에 필요한 시료들은 다음과 같은 반응식에 따른 당량비로 환산하여 평량하였다.



평량한 시료를 vibration mill에서 milling과 mixing을 한 후 0.5 ton의 하중으로 pressing하여 pellet을 제작하였다. 환원확산을 위한 반응로는 불활성 가스를 통과시킬 수 있는 튜브형 분위기로 하여 pellet을 Fe boat에 넣어 튜브 안에 삽입하고 밀폐시킨 후 Ar을 주입하면서 실험을 하였다.

환원확산반응은 LiH가 분해되면 환원이 시작되어 환원된 Nd metal이 Fe 표면에 wet되어 표면으로부터 Nd₂Fe₁₄B 형성되며 확산이 계속 진행되어짐에 따라 자석상인 Nd₂Fe₁₄B는 Fe의 내부까지 형성되어 하나의 Nd₂Fe₁₄B상을 형성하게 된다. 이러한 확산반응은 Fick's law의 지배를 받으며, 그 확산거리는 다음과 같다.

$$L = (D_0 \exp(-Q/RT) \times t)^{1/2}$$

T : 환원온도, D0 : 물질상수, Q : 활성화에너지, t : 환원시간

위 식을 바탕으로 정해진 실험변수는 크게 환원온도, 환원시간, 환원제양의 세부분으로 나누었으며, 환원온도는 950~1100℃, 환원시간은 4~8시간, 환원제양은 당량비의 1.1~1.5배로 설정하였다.

환원환산 후 pellet의 일부는 milling하고 powder를 0℃의 pure한 water에 1시간 정도 세척하여 drying oven에서 말린 후 Nd₂Fe₁₄B의 생성정도와 Nd₂O₃의 환원여부를 확인하기 위해 XRD 분석을 하였고, 자기적 특성을 살펴보기 위해 VSM 측정을 하였다. 아울러 milling하지 않은 시편을 가지고는 환산여부를 관찰할 수 있는 SEM, EDS 및 mapping을 하여 시료의 특성을 살펴보았다.

3. 실험결과 및 고찰

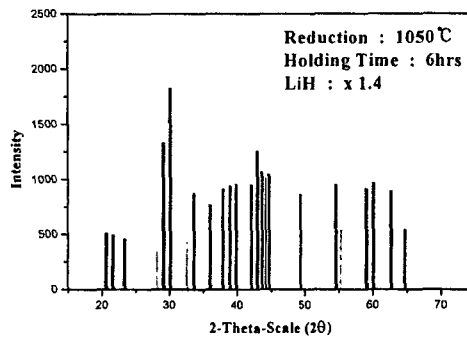


Fig. 1. The XRD pattern according to reduction temp.

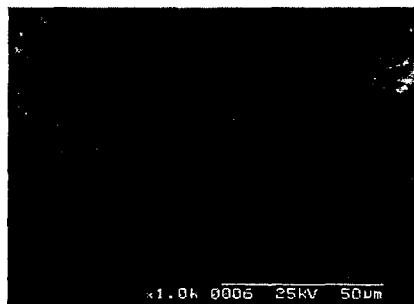


Fig. 2. SEM image of cross section by NdFeB

Fig. 1에서 보는 바와 같이 Nd₂Fe₁₄B의 생성과 Nd₂O₃의 환원정도는 환원온도가 1050℃, 환원시간이 6시간, 환원제의 양이 1.4배 이상에서 가장 우수한 물성을 보였다. Fig. 2의 SEM image에서 볼 수 있듯이 XRD peak 결과와 같은 조건에서 Nd-phase와 Fe-phase의 환산이 가장 잘 이루어졌다.

4. 결 론

투입되는 시료가 전량 Nd₂Fe₁₄B로 합금화되지는 않았으나 모든 단계에 걸친 실험에서 환원온도는 1050℃에서, 환원시간은 6시간, 환원제의 양은 1.4배 이상에서 대체로 많은 양의 환원과 좋은 물성이 나타남을 알 수 있었다.

5. 참고문헌

- 1) J.J.Croat and J.F.Herbst, R.W.Lee and F.E.Pinkerton, J. Appl. Phys., 69(8), 5835 (1998)
- 2) J.Kuma, N.Kitajima and H.Fukunage, J. Appl. Phys., 83(11), 6623 (1998)