

# Al/Cu 동시첨가를 통한 Nd-Fe-B 소결자석의 미세구조 및 자기적 특성 최적화 연구

김태훈<sup>1,\*</sup>, 이성래<sup>1</sup>, 김효준<sup>2</sup>, 이민우<sup>3</sup>, 장태석<sup>3</sup>

<sup>1</sup>고려대학교 신소재공학과, 서울특별시 성북구 안암동 고려대학교, 136-713

<sup>2</sup>자화전자 R&D 센터, 충청북도 청원군 자화전자, 363-922

<sup>3</sup>선문대학교 신소재공학과, 충남 아산시 탕정면 선문대학교, 336-708

## 1. 서론

Nd-Fe-B 소결자석에 Cu와 같은 Nd-rich 상의 용점을 낮출 수 있는 용점 강하 원소를 첨가하고 열처리 하면, Nd-rich 입계상의 균질도 및 연속성이 향상되어 보자력이 증가한다 [1, 2]. 또한, 500 °C 열처리 동안에 Nd-Cu 간의 공정분해반응으로 인해서 Cu가 Nd-rich 상에 과량 응집되는데 (20 ~ 45 at.% Cu, Cu<sup>high</sup>-rich), 이로 인해서 준안정 c-Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 상이 안정화 되고 Nd-rich 상의 비자성성이 향상되어 열처리 이후에 보자력이 증가한다 [1, 2]. 하지만, 상대적으로 Cu의 응집도가 낮은 Nd-rich 상 (5 ~ 15 at.% Cu, Cu<sup>low</sup>-rich)의 형성이 불가피하다. Cu<sup>low</sup>-rich 입계상은 연속성 및 비자성성이 좋지 않을 뿐만 아니라 안정한 h-Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>로 형성되기 때문에 보자력 향상에 기여하지 못한다 [2]. Cu와 함께 다른 용점 강하 원소 (Al)를 Nd-Fe-B 소결자석에 첨가하고 적절히 열처리 함으로써 Cu가 미량 응집된 Nd-rich 상의 구조/화학적 특성을 향상시키면, 열처리 이후의 소결자석의 보자력 향상 효과를 극대화 할 수 있다. 본 연구에서는 Al/Cu 또는 Mn/Cu 동시첨가에 의한 Nd-Fe-B 소결자석의 미세구조 및 자기적 특성의 변화를 연구 하였다.

## 2. 실험방법

기존의 최적 조성을 가지는 29.0Nd-3.0Dy-0.15Cu-0.2Al-bal.Fe-1.0B-2.0M (wt.%, M = Co, Nb)분말에 0.1 wt.%의 Al 분말과 0.15 wt.%의 Cu 분말을 동시에 혼합한 분말 [Al(0.1)/Cu(0.15) 첨가 자석]과 Cu 만 0.15 wt.% 혼합한 분말 [Cu(0.15) 첨가 자석]을 준비한 후 1050 ~ 1070 °C에서 4시간동안 소결하였다. 준비된 소결자석을 850 ~ 640 °C 에서 2시간동안 1차 열처리 하였다. 이후에, 530 °C에서 2시간, 500 °C에서 2시간 동안 2차, 3차 열처리를 진행하였다. 비교를 위해서, 기존의 공정 조건 (소결 : 1070 °C, 1차 열처리 : 850 °C, 2차 열처리 : 530 °C, 3차 열처리 : 500 °C)으로 제조된 conventional 자석을 준비하였다. BH-tracer를 이용하여 시편의 자기적 특성을 측정하였으며, 주사전자현미경 (JXA-8500F)과 투과전자현미경 (FEI Tecnaif20), EPMA (JXA-8500F Electron Probe Micro Analyzer), SADP (FEI Tecnaif20), DSC를 이용 하여 시편의 상변화 및 상분포를 관찰 하였다.

## 3. 결과 및 고찰

기존의 공정 조건 (소결 : 1070 °C, 1차 열처리 : 850 °C, 2차 열처리 : 530 °C, 3차 열처리 : 500 °C)으로 제조된 기존자석의 보자력은 20.6 kOe 이었다. Al(0.1)/Cu(0.15) 첨가 자석의 경우, 최적의 소결온도 및 1차 열처리 온도는 각각 1050 °C, 790 °C로 감소하였고 보자력은 22.2 kOe로 증가하였다. 미세구조 분석 결과, Al(0.1)/Cu(0.15) 첨가 자석 내의 Al은 Cu가 미량 응집된 Nd-rich 상 (Cu<sup>low</sup>-rich 상, 6 ~ 8 at.% Cu)에만 선택적으로 응집되어 있었다 (5 ~ 6 at.% Al). Cu<sup>low</sup>-rich 상에 대한 Al의 응집으로 Cu<sup>low</sup>-rich 상의 결정구조가 h-Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>에서 c-Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>로 변태 되었다. 이 결과, Cu<sup>low</sup>-rich 상과 주상간의 격자부정합이 감소하고 Cu<sup>low</sup>-rich 상의 비자성성이 향상되어 Al(0.1)/Cu(0.15) 첨가 자석의 보자력이 향상된다. Al(0.1)/Cu(0.15) 첨가 자석의 핵심적인 미세구조 변화는, Al이 Cu가 과량 응집된 Cu<sup>high</sup>-rich 상이 아닌, Cu<sup>low</sup>-rich 상에만 선택적으로 응집 되었다는 것이다. 즉, Nd-rich 상에 Al과 Cu가 분리되어 응집함으로써 Al에 의해 Cu<sup>low</sup>-rich 상의 미세구조가 개선되었다.

Al(0.1)/Cu(0.15) 첨가 자석의 DSC 분석 결과, 약 530 °C 부근에서 새로운 peak이 관찰 되었다. Al-Cu 이원계 상평형도를 살펴보면, 약 530 °C 부근에서  $L \leftrightarrow Al + Al-Cu$ 의 공정 분해 반응이 일어난다. 따라서, Al-Cu 간의 공정분해반응으로 인해서 Al(0.1)/Cu(0.15) 첨가 자석 내의 Al이  $Cu^{low}$ -rich 상에만 선택적으로 응집된다. 흥미로운 점은, Al-Cu 간의 공정분해반응 온도 (530 °C)는 소결자석의 2차 열처리 온도 (530 °C)에 해당하는 온도이다. 사전 연구결과에 의하면 [1], Cu(0.15) 첨가 자석의 보자력 향상에 가장 중요한 공정단계는 Nd-Cu 간의 공정 분해 반응 온도에 해당하는 3차 열처리 (500 °C) 이다. 3차 열처리 이후에 Cu(0.15) 첨가 자석 내에 cubic 결정구조 ( $c-Nd_2O_3$ )를 가지는  $Cu^{high}$ -rich 상이 형성되어 보자력이 증가한다. Al(0.1)/Cu(0.15) 첨가 자석의 경우, 2차 열처리 동안에 이미 Al-rich 상과  $Cu^{high}$ -rich 상이 분리되어 형성되기 때문에 3차 열처리 동안의 Nd-Cu 간 공정분해반응이 자석의 보자력 향상에 영향을 미치지 않을 수 있다. 그림 1은 Cu(0.15) 첨가 자석과 Al(0.1)/Cu(0.15) 첨가 자석의 공정 진행에 따른 보자력의 변화를 나타낸다. Cu(0.15) 첨가 자석의 경우 3차 열처리 이후에 보자력이 급증하지만 (19 → 21.5 kOe), Al(0.1)/Cu(0.15) 첨가 자석의 경우, 2차 열처리 이후에 보자력이 급증한다 (18.7 → 22.1 kOe). 3차 열처리는 Al(0.1)/Cu(0.15) 첨가 자석의 보자력에 영향을 미치지 않는다. 따라서, Nd-Fe-B 소결자석에 Al과 Cu를 동시에 첨가하면 기존의 3차 열처리를 생략하고도 기존보다 더 높은 보자력 (20.6 → 22.1 kOe) 을 가지는 소결자석을 제조 할 수 있다.

## 5. 결론

Al과 Cu를 동시에 첨가한 Nd-Fe-B 소결자석의 미세구조 및 자기적 특성변화에 대하여 연구하였다. Al-Cu 간의 공정 분해 반응으로 인해서 Al(0.1)/Cu(0.15) 첨가 자석 내 Al이  $Cu^{low}$ -rich 상에만 선택적으로 응집되어  $Cu^{low}$ -rich 상의 결정구조가  $c-Nd_2O_3$ 로 변태 되었다. 또한, Al의 응집으로 인해서  $Cu^{low}$ -rich 입계상의 비자성성 및 연속성이 향상 되었다. 흥미로운 점은, Al과 Cu를 동시에 첨가하면 Al-Cu 간의 공정분해반응온도 (530 °C)에서의 2차 열처리를 통해서 Nd-Cu 간의 공정분해반응온도 (500 °C)에 해당하는 기존의 3차 열처리 공정을 생략 할 수 있다. 결론적으로, Al(0.1)/Cu(0.15) 동시 첨가를 통해서 기존의 3차 열처리 공정을 생략하고도, 용점 강하 원소 첨가를 통한 Nd-rich 상의 미세구조 개선 효과가 극대화되어 7.3%의 보자력이 향상된 소결자석을 제조 할 수 있다.

## 6. 참고문헌

- [1] Tae-Hoon Kim, Seong-Rae Lee, Seok Namkung, and Tae-Suk Jang, *J. Alloy. Comp.* 537, 261 (2012).
- [2] Tae-Hoon Kim, Seong-Rae Lee, Min-Woo Lee, Tae-Suk Jang, Jin woo Kim, Yound Do Kim, and Hyo-Jun Kim, *Acta Mater.* 66, 12 (2014).

## 7. 감사의 글

본 연구는 지식경제부 지원의 기술 혁신사업(No.10043780)의 연구비 지원으로 수행되었습니다.

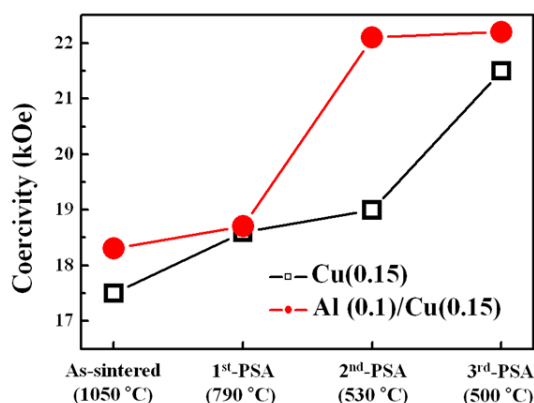


그림 1. 공정 진행에 따른 Nd-Fe-B 소결자석의 보자력 변화.