

사출성형에 의한 이방성 Nd-Fe-B계 레진본드자석의 자기적 특성

김윤배 · 정우상 · 정원용

한국과학기술연구원, 금속공정연구센터
서울 성북구 하월곡동 39-1

(1999년 2월 8일 받음, 1999년 3월 24일 최종수정본 받음)

본 연구에서는 이방성 Nd-Fe-B계 자성분말과 바인더로 polypropylene을 사용하여 compound를 제조한 후 사출성형에 의해 이방성 Nd-Fe-B 레진본드자석을 제조하여 자성분말의 함량, 인가자장 및 사출성형 온도에 따른 자기적 특성 및 유변학적 특성을 조사하였다. Torque sensor에 의해 측정된 본 연구에 사용된 이방성 Nd-Fe-B계 자성분말의 최대 분말함량은 70.7 vol.%이었다. Compound의 자성분말 함량이 증가함에 따라 레진본드자석의 잔류자속밀도와 최대자기에너지적은 증가하여 54 vol.%에서 최대값을 보인후 다시 감소하였고, 보자력은 변화가 없었다. 54 vol.% 자성분말 함량 이상에서 잔류자속밀도와 최대자기에너지적이 다시 감소하는 것은 사출성형시 자성분말의 배향도 저하에 기인한다. 이것은 compound의 자성분말 함량이 증가함에 따라 compound의 유동성이 저하되어 사출성형시 자성분말의 이방화를 어렵게 만들기 때문이다. 사출성형 온도가 증가함에 따라 레진본드자석의 자기적 특성은 증가하였다. 이는 성형온도가 증가함에 따라 compound의 유동성이 향상되어 자성분말의 배향도가 증가되었기 때문이다. 따라서 사출성형에 의해 이방성 Nd-Fe-B계 레진본드자석 제조시 자기적 특성을 향상시키기 위해서는 compound의 자성분말 함량 뿐만 아니라 compound의 유동성이 중요하게 고려되어야 한다.

I. 서 론

레진본드자석은 영구자석 분말을 바인더와 혼합하여 레진의 가공성과 자성분말의 기능성을 혼합시킨 복합재료 영구자석으로 압축, 사출 및 압출등의 성형방법으로 제조되고 있다. 고무를 바인더로 사용한 고무자석, 플라스틱을 바인더로 사용한 플라스틱자석 등이 광범위하게 사용되고 있다. 레진본드자석은 자성재료 이외에 바인더로 사용되는 고분자 물질이 혼입되기 때문에 자성재료만으로 만들어진 소결자석에 비해 자기적 특성이 떨어지고 사용온도가 낮다는 단점이 있지만, 다양한 방향으로 착자가 가능하고 후가공 없이 원하는 형태로 대량 생산 할 수 있는 장점이 있다[1]. 이러한 장점 때문에 레진본드자석은 기계적 부분과 전기적 부분과의 이중적 기능을 갖는 mechatronics 부품으로 용도가 개발되면서 그 이용범위와 사용량이 넓어지고 있다. 일반적으로 레진본드자석의 자기적 특성은 사용된 자성분말의 종류, 입도, 형태, 함량 그리고 자성분말의 방향성에 따라 달라진다. 레진본드자석은 등방성과 이방성으로 분류할 수 있다. 등방성 레진본드자석에서는 compound의 자성분말 함량을 증가시켜 자

기적 특성을 최대로 향상시킬 수 있다. 그러나 이방성 레진본드자석에서는 compound의 자성분말의 함량 이외에 성형시 인가자장 방향으로의 분말배향이 자기적 특성에 영향을 미치게 되며, 이 자성분말의 배향은 혼합물의 유변학적 특성과 밀접한 관련이 있다. 따라서 자기적 특성이 높은 이방성 레진본드자석을 제조하기 위해서는 자성분말 함량에 따른 혼합물의 유변학적 특성과 이에 따른 자성분말의 배향 및 자기적 특성이 고려되어야 한다. 본 연구에서는 polypropylene을 바인더로 사용하여 사출성형에 의해 이방성 Nd-Fe-B계 레진본드자석을 제조하여 compound의 자성분말 함량, 사출성형 온도 및 사출성형시 인가자장 변화에 따른 레진본드자석의 자기적 특성과 유변학적 특성을 연구하였다.

II. 실험방법

레진본드자석 제조에 사용된 이방성 Nd-Fe-B계 자성 분말은 수소분쇄(Hydrogen Decrepitation) 및 HDDR (Hydrogenation, Disproportionation, Desorption, Recombination)공정에 의해 제조하였다[2-7]. 사출성형을 위한

compound 제조시 바인더로는 대립 Co의 polypropylene-141을 사용하였다. Polypropylene은 pellet 형태이며, 밀도는 0.91 g/cm³, 용융지수는 25 g/min.이고, DSC에 의해 측정된 녹는점은 168.7 °C이다. 본 실험에서는 Nd-Fe-B계 자성분말과 바인더와의 혼련전에 커플링제를 사용하여 Nd-Fe-B계 자성분말을 표면처리하였다. 커플링제는 자성분말과 바인더와의 결합력을 높여 사출성형시 결합체가 분리 또는 segregation되는 것을 방지해주는 역할을 한다. 커플링제는 A174 실란계를 사용하였고, 첨가량은 0.5 wt.%였다. 커플링처리한 Nd-Fe-B계 자성분말과 polypropylene 바인더는 회분식 혼합기를 사용하여 polypropylene의 용융온도 보다 약 10 °C 높은 180 °C에서 혼련하였다. 혼련된 compound는 랩식 사출기를 이용하여 외부에서 가해주는 자장의 세기를 0~6.4 kOe까지 변화시키면서 자장중 사출성형하였다. Polypropylene의 TGA 결과에 의하면 polypropylene은 약 240 °C부터 분해가 시작되기 때문에 사출성형시 성형온도는 240 °C 이하에서 변화시켰고, 이 사출온도에서 배럴 내에 compound가 머물러 있는 시간을 가능한 짧게 하여 polypropylene이 분해되는 것을 방지하였다. 사출성형시 사출금형의 온도는 상온이었다. 사출성형한 Nd-Fe-B계 레진본드자석의 자기적 특성은 pulse magnetizer를 이용하여 90 kOe에서 착자한 후 직류자화 이력곡선 측정장치를 사용하여 측정하였다. Compound의 최대 자성분말 함량은 Sensor Development Inc.사의 01224-023 회전축 torque sensor를 이용하여 토크변화를 측정하여 결정하였다. 유동성의 척도인 compound의 겉보기 점도는 Rosand사의 RH14-C 모세관 레오미터를 사용하여 사출성형온도 범위 내에서 측정하였다. 다이의 모세관 직경은 1 mm, 길이는 16 mm이다.

III. 결과 및 고찰

본 연구에서는 레진본드자석 제조를 위한 이방성 Nd-Fe-B계 자성분말을 수소분쇄(Hydrogen Decrepitation) 및 HDDR(Hydrogenation, Disproportionation, Desorption, Recombination)공정에 의해 제조하였다[2-7]. Nd-Fe-B계 합금 ingot를 수소분쇄 후 200 μm이하의 분말을 선별하여 HDDR 처리하였다. Fig. 1은 실험에 사용된 HDDR공정에 의해 제조한 이방성 Nd-Fe-B계 자성분말의 morphology로 fisher sub-sieve sizer로 측정 한 분말의 평균입도는 약 34 μm이었으며, 제조된 이방

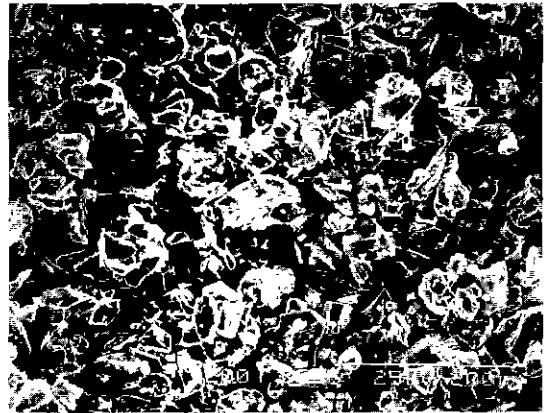


Fig. 1. Morphology of HDDR treated Nd-Fe-B type powder (×200).

성 Nd-Fe-B계 자성 분말의 분말비향도는 최대 77 %를 나타내었다.

사출성형을 위한 compound의 최대 자성분말 함량은 회전축 torque sensor를 이용하여 자성분말과 바인더를 혼합할 때 토크변화를 측정하여 결정하였다. 최대 분말함량은 compound제조시 적정의 분말 함량과 혼합물의 점도를 예측하는데 필요하며, 이를 위해 여러 측정 방법 등이 제안되어져 왔다[8-10]. Fig. 2는 회분식 혼합기에 정량된 Nd-Fe-B계 자성분말을 넣은 후 바인더로 polypropylene을 일정량 첨가하면서 연속적으로 토크의 변화를 측정 한 결과이다. 바인더로는 고분자, 오일, 물 등을 사용할 수 있으며, 바인더를 먼저 넣은 후 자성분말을 첨가하면서 토크의 변화를 관찰할 수도 있다[11].

연속적으로 torque의 변화를 측정할 때 바인더의 첨

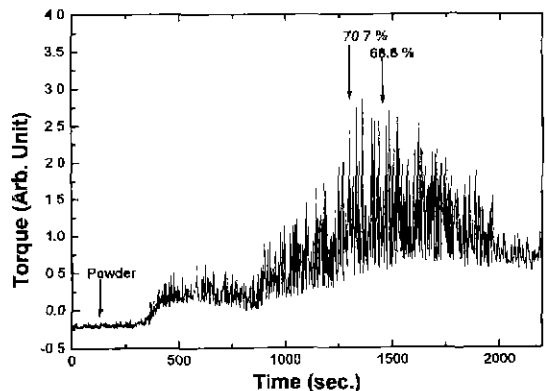


Fig. 2. Determination of maximum powder loading with torque sensor.

가량이 증가함에 따라 혼합물의 자성분말 함량은 상대적으로 감소하게 된다. 최대 자성분말 함량 이상에서는 바인더가 연속상을 형성하기에 부족하기 때문에 바인더가 첨가되면 초기에 혼합토크가 증가하였다가 바인더가 용융되어 자성분말 사이로 분산되면 다시 혼합토크가 안정된다. 이런 상태가 최대 자성분말 함량 이상에서는 계속 반복되게 된다[11]. Fig. 2에서 보듯이 본 연구에서는 70.7 vol.%의 자성분말 함량에서 혼합토크가 최대값을 나타내었다. 이 때 바인더인 polypropylene이 연속상을 형성하면서 Nd-Fe-B계 자성분말과 바인더가 단일 혼합체를 형성하게 된다. 자성분말의 함량이 70.7 vol.% 이하로 바인더가 첨가되면 잉여의 바인더가 자성분말 표면에 윤활층을 형성하면서 혼합토크는 감소되고 안정화된다. 혼합토크 변화 측정에 의하면 compound제조시 본 연구에 사용된 이방성 Nd-Fe-B계 자성분말의 최대 분말함량은 70.7 vol.%이다. 따라서 사출용 compound 제조시 Nd-Fe-B계 자성분말의 함량은 최대 분말 함량인 70.7 vol.%이하에서 변화되어야 한다. 본 연구에서는 compound 제조시 이방성 Nd-Fe-B계 자성분말의 함량을 50 vol.%에서 시작하여 자성분말 함량을 2 vol.%의 간격으로 변화시켜 자성분말 함량에 따른 자기적 특성 및 유변학적 특성을 조사하였다. 또한 레진본드자석 제조시 인가자장의 변화 및 사출성형 온도를 변화시켜 이들이 레진본드자석의 자기적 특성과 유변학적 특성에 미치는 영향을 조사하였다.

Fig. 3은 compound의 자성분말 함량에 따른 Nd-Fe-B계 레진본드자석의 잔류자속밀도(B_r)와 최대자기에너지적($(BH)_{max}$)의 변화를 나타낸 것이다. Compound에서 자성분말의 함량이 증가하면 상대적으로 결합제

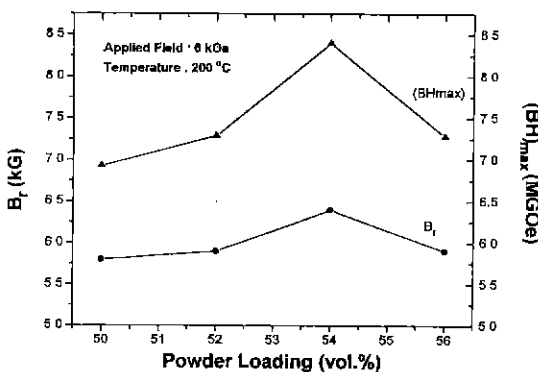


Fig. 3. Variation of remanence and maximum energy product with powder loading.

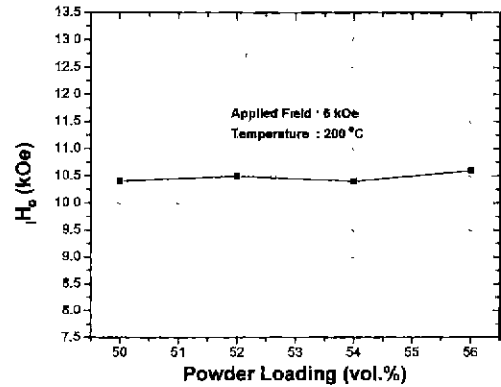


Fig. 4. Variation of coercivity with powder loading.

인 polypropylene의 양은 감소하게 된다. 이때 사출온도는 200 °C였다. 잔류자속밀도는 자성분말의 함량이 증가함에 따라 증가하여 54 vol.%의 자성분말 함량에서 최대값을 보이고 다시 감소하였다. 최대자기에너지적도 잔류자속밀도와 같은 경향을 보여 54 vol.%의 자성분말 함량에서 최대값을 보였다. Fig. 4는 자성분말 함량에 따른 보자력(H_c)의 변화를 측정된 것이다. 보자력은 자성분말의 함량이 증가하여도 일정한 값을 보여 보자력은 자성분말 함량에 무관한 것으로 사료된다. 등방성 레진본드자석의 경우 자기적 특성은 compound의 자성분말 함량에만 의존하지만, 이방성 레진본드자석의 경우에는 compound의 자성분말 함량 이외에 자성분말의 배향도가 자기적 특성에 영향을 미친다. 따라서 본 연구에서는 인가자장에 평행한 방향($B_{//}$)과 수직인 방향(B_{\perp})에서 측정된 잔류자속밀도 값을 이용하여 자성분말의 배향도를 조사하였다. Fig. 5는 사출성형한 레진본드자석에서 자성분말 함량에 따른 분말의 배향도

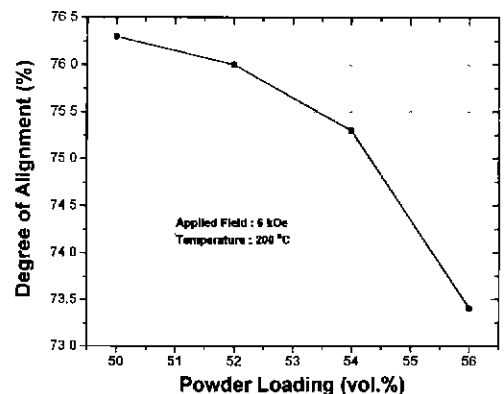


Fig. 5. Variation of degree of powder alignment with powder loading.

변화를 나타내었다. 자성분말의 배향도는 다음의 식에 의해 계산하였다.

$$\text{배향도}(\%) = \frac{Br(\parallel)}{Br(\parallel) + Br(\perp)} \times 100$$

여기서 50 %의 분말 배향도는 등방성을 의미하고, 100 %는 분말이 완전히 이방화 되었음을 나타낸다. Fig. 5에서 보는바와 같이 50 vol.%의 자성분말 함량에서 인가자장이 6 kOe일 때 최대 76.3 %의 분말 배향도를 나타내었다. 76.3 %의 분말 배향도는 본 연구에서 HDDR 처리에 의해 제조된 Nd-Fe-B계 자성분말 자체의 배향도와 거의 유사한 값이다. 따라서 50 vol.% 자성분말 함량의 레진본드자석에서 얻어진 배향도는 본 연구에서 제조한 Nd-Fe-B계 자성분말로 제조한 레진본드자석에서 얻을 수 있는 최대값으로 생각되며, 자성분말의 함량이 50 vol.% 보다 작아져도 배향도는 더 이상 증가하지 않을 것이다. 따라서 사출성형된 레진본드자석의 배향도를 향상시키기 위해서는 compound의 제조나 사출공정의 개선 보다는 Nd-Fe-B계 자성분말 자체의 방향성을 향상시키는 것이 보다 중요한 것으로 사료된다. 56 vol.% 자성분말 함량의 경우 분말의 배향도는 약 73.4 %로 50 vol.%의 자성분말 함량에 비해 분말의 배향도가 약 3 % 정도 감소하였다. 따라서 Fig. 3에서 자성분말의 함량이 증가함에 따라 잔류자속 밀도와 최대자기에너지적이 증가하다 56 vol.% 자성분말 함량에서 다시 감소하는 것은 사출성형시 분말의 배향도가 저하된 것에 기인한 것이다.

일반적으로 등방성 레진본드자석의 제조시 자기적 특성을 향상시키기 위해서 자성분말의 함량을 가능한 최대로 높여야 한다. 그러나 이방성 레진본드자석에서는 Fig. 5에서 보듯이 임계 자성분말의 함량 이상에서는 compound내에 자성분말의 양이 증가해도 분말의 배향도가 저하되어 자기적 특성은 다시 감소하게 된다. 사출성형시 자성분말의 배향도는 compound의 유동성과 직접적인 관련이 있다. 본 연구에서는 자성분말 함량 증가에 따른 배향도 저하의 원인을 조사하기 위해 모세관 레오미터를 사용하여 Nd-Fe-B/polypropylene compound의 유동성을 조사하였다. 유체의 흐름에 영향을 주는 가장 중요한 factor는 점도이며 점도는 흐름에 대한 저항을 나타내는 것으로, 점도가 높으면 성형이 어려워진다. Compound의 점도 측정시 배럴의 온도를 일정하게 유지한 후 compound의 온도평형을

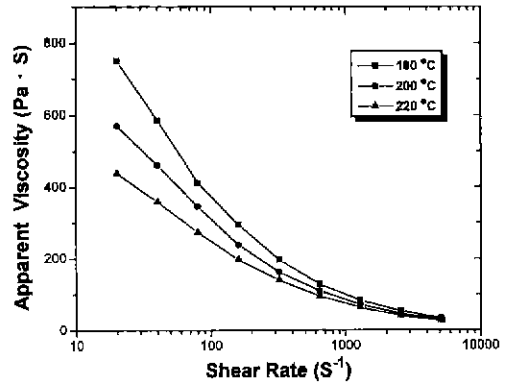


Fig. 6. Apparent viscosity of polypropylene at different shear rate measured by capillary rheometer.

위해 2 분간 유지 후 압출하였다. Fig. 6은 사출성형용 compound제조시 바인더로 사용된 polypropylene의 전단속도에 따른 점도변화를 측정된 결과이다. 점도 측정시 배럴의 온도는 각각 180 °C, 200 °C, 220 °C였고, 전단속도는 10000 S⁻¹ 까지 변화시켰다. 일반적으로 전단속도가 증가하면 겔보기 점도는 감소한다. 전단속도가 1000 S⁻¹ 일 경우 polypropylene의 겔보기 점도는 측정온도 범위에서 약 100 Pa · S를 나타내었다. Fig. 7은 Nd-Fe-B/polypropylene compound에서 자성분말 함량에 따른 겔보기 점도를 측정된 결과이다. 이때 전단속도는 1000 S⁻¹로 유지하였고 180, 200, 220 °C의 온도에서 각각 측정하였다. 이 온도범위는 본 연구의 사출성형조건과 같은 온도범위이다. 180 °C의 온도에서 50 vol.% 자성분말 함량의 겔보기 점도는 약 210 Pa · S이고 자성분말 함량이 증가할수록 겔보기 점도가 증가하여 56 vol.%의 자성분말 함량에서는 약 320 Pa · S의

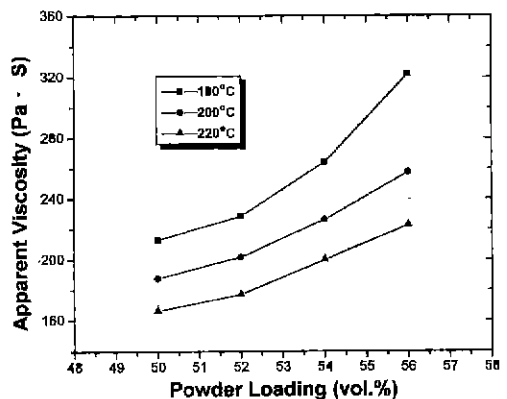


Fig. 7. Variation of apparent viscosity with powder loading in compound.

겉보기 점도를 나타내어, 자성분말 함량이 증가할수록 compound의 유동성이 떨어지고 있음을 보여주고 있다. 다른 두 측정 온도에서도 마찬가지로 compound의 자성분말 함량이 증가함에 따라 겉보기 점도가 증가하였다. 이 결과는 임계 자성분말 함량 이상에서 이방성 레진본드자석의 자기적 특성이 저하되는 이유를 설명해 준다. 즉 compound의 자성분말 함량이 증가함에 따라 레진본드자석의 자기적 특성이 증가하지만 임계 자성분말 함량 이상에서는 compound의 점도가 높아져 유동성이 저하된다. Compound의 유동성이 저하되면 자장중 사출성형시 자성분말의 이방화를 어렵게 만들어 배향도가 떨어지게 되고 따라서 자기적 특성이 감소하게 된다. 그러므로 이방성 레진본드자석 제조에 있어서는 등방성 레진본드자석의 제조와는 달리 compound의 자성분말 함량 이외에 자성분말의 배향도가 자기적 특성에 큰 영향을 미치기 때문에 compound제조시 자성분말의 배향도가 함께 고려된 적정의 공정 조건을 선정하는 것이 중요하다.

Fig. 8은 사출성형 온도에 따른 레진본드자석의 잔류자속밀도 변화를 측정한 것이다. 사출성형 온도는 170~220 °C 까지 변화시켰고 인가자장은 6.4 kOe였다. 바인더로 사용된 polypropylene의 TGA 분석에 의하면 약 240 °C에서 분해가 시작되기 때문에 230 °C 이상에서는 사출하지 않았다. 사출성형 온도가 증가함에 따라 레진본드자석의 잔류자속밀도는 증가하여 54 vol.%의 자성분말 함량의 경우 210 °C의 사출성형 온도에서 최대 6.5 kG의 특성을 나타내었다. Fig. 9는 50 vol.%의 자성분말 함량에서 사출성형 온도에 따른 자성분말

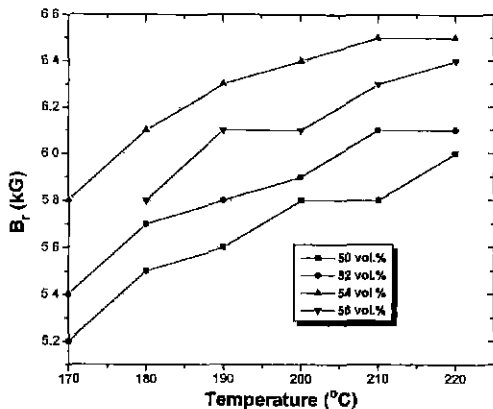


Fig. 8. Variation of remanence with injection molding temperature (applied magnetic field : 6.4 kOe).

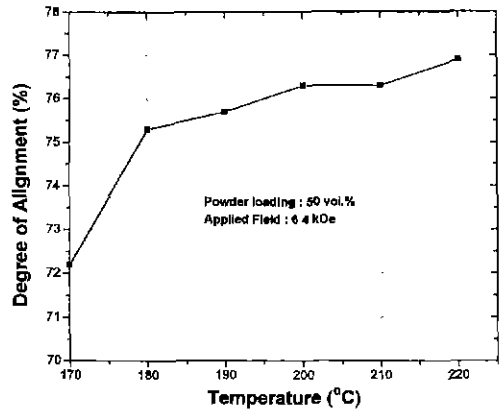


Fig. 9. Variation of degree of powder alignment with injection molding temperature.

의 배향도를 측정한 결과로 잔류자속밀도의 변화와 마찬가지로 사출온도가 증가함에 따라 자성분말의 배향도가 향상됨을 보여주고 있다. 이는 Fig. 7의 점도 측정 결과에서 보듯이 사출성형 온도가 증가할수록 compound의 점도가 낮아져 자장중 사출성형시 자성분말의 이방화가 용이하게 이루어지는 것을 의미한다. 즉 50 vol.%의 자성분말 함량의 경우 180 °C에서 compound의 겉보기 점도는 약 210 Pa·S이고 온도가 증가함에 따라 감소하여 220 °C에서는 약 165 Pa·S를 나타내어, 온도가 증가함에 따라 혼합물의 유동성이 향상되는 것을 알 수 있다. 이 결과는 52, 54, 56 vol.%의 자성분말 함량의 compound에서도 같은 경향을 나타내었다. 56 vol.% 자성분말 함량 compound의 경우 170 °C의 사출성형 온도에서는 compound의 점도가 높아 사출이 불가능하였다. Fig. 10은 자성분말의 함량이

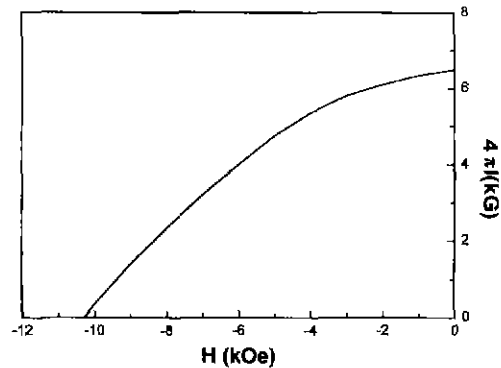


Fig. 10. Demagnetisation curve for resin bonded magnet with 54 vol.% powder loading (applied magnetic field : 6.0 kOe, temperature : 220 °C).

54 vol.%일 때 220 °C의 온도에서 사출성형한 레진본드자석의 demagnetisation curve로 잔류자속밀도 6.5 kG, 보자력 10.3 kOe, 최대자기에너지적 9.3 MGOe의 자기적 특성을 나타내었다.

IV. 결 론

HDDR 공정에 의해 제조한 이방성 Nd-Fe-B계 자성분말과 바인더로 polypropylene을 사용하여 사출성형에 의한 이방성 Nd-Fe-B계 레진본드자석 제조에 관한 연구 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 본 연구에서 HDDR 공정에 의해 제조된 Nd-Fe-B계 자성분말을 사용하여 사출성형을 위한 compound제조시 torque sensor에 의해 측정된 최대 분말 함량은 70.7 vol.% 이었다. 따라서 compound 제조시 70.7 vol.% 이상의 자성분말 함량은 불가능하다.

2. Compound의 자성분말 함량이 증가함에 따라 레진본드자석의 잔류자속밀도와 최대자기에너지적은 증가하여 극대값을 보인 후 다시 감소하였고, 보자력은 변화가 없었다. 본 연구에서는 54 vol.%의 자성분말 함량에서 극대값을 보였다. 54 vol.% 자성분말 함량 이상에서 자기적 특성이 다시 감소하는 것은 자장중 사출성형시 자성분말의 배향도 저하에 기인하며, 이것은 compound의 자성분말 함량이 증가함에 따라 compound의 유동성이 떨어지기 때문이다.

3. 사출성형 온도가 증가함에 따라 레진본드자석의 자기적 특성이 증가하였다. 이는 성형온도의 증가에 따라 compound의 유동성이 향상되어 자장중 사출성형시 자성분말의 배향도가 향상되었기 때문이다.

4. 본 연구에서 HDDR 공정에 의해 제조된 이방성 Nd-Fe-B계 자성분말과 바인더로 polypropylene을 사용하여 사출성형에 의해 제조한 레진본드자석은 잔류자속밀도 6.5 kG, 보자력 10.3 kOe, 최대자기에너지적이 9.3 MGOe의 자기적 특성을 나타내었다.

참 고 문 헌

- [1] M. Hamamo, *Plastic age*, May, 127(1988).
- [2] T. Takeshita, R. Nakayama, Proc. 12th Int. Workshop on RE Magnets & Their Applications, Canberra, July, 2, 670(1992).
- [3] I. R. Harris, O. M. Ragg, G. Keegan, H. Nagel, Proc. of 3rd Int. Symposium on Physics of Magnetic Materials, 2, 638(1995).
- [4] I. R. Harris and P. J. McGuinness, *J. Less-Common Met.*, 172, 1273(1991).
- [5] T. Takeshita, R. Nakayama, Proc. 10th Int. Workshop on RE Magnets & Their Applications, Kyoto, May, 1, 551(1989).
- [6] R. Nakayama, T. Takeshita, *J. Appl. Phys.*, 74, 2719 (1993).
- [7] T. Takeshita, R. Nakayama, Proc. 11th Int. Workshop on RE Magnets & Their Applications, Pittsburgh, October, 1, 49(1991).
- [7] R. Nakayama, T. Takeshita, *J. Alloys and Compounds* 193, 259(1993).
- [8] H. A. Gardner and R. E. Coleman, *Farben Ztg.*, 32, 966(1927).
- [9] G. P. Bierwagen, *J. Paint Tech.*, 44, 46(1972).
- [10] C. J. Markhoff, B. C. Mutsuddy and J. W. Lennon, *Advances in Ceramics. Am Ceram. Soc., Columbus, OH*, 9, 246(1984).
- [11] 이석희, 최준환, 문탁진, 정원용, 한국자기학회지, 8, 150(1998).