

# 가스분무로 제조된 NdFeB 합금분말의 강소성변형을 통한 결정립 미세화 및 이방성 제어

조주영<sup>1†</sup> · 박상민<sup>2†</sup> · 자비드 후세인<sup>2</sup> · 송명석<sup>3</sup> · 김택수<sup>4,#</sup>

## Control of Grain Refinement and Anisotropy of NdFeB Alloy Powder by Severe Plastic Deformation Fabricated by the Gas Atomization Process

J. Y. Cho, S. M. Park, J. Hussain, M. S. Song, T. S. Kim

(Received April 15, 2022 / Revised May 11, 2022 / Accepted May 12, 2022)

<sup>†</sup> These authors made equal contributions as first author.

### Abstract

NdFeB magnets have been positioned as the core materials in advanced technologies such as MRI (magnetic resonance imaging), FA (factory automation system), robot, motors, and so on based on the highest magnetic properties. To effectively improve the refined microstructure, the plastic deformation has been known as the good alternatives by the recrystallization. However, it has been regarded as being impossible because of the few slip systems in the RE-Fe-B magnets at room temperature. The purpose of this study was to investigate the possibility of control of grain refinement and magnetic anisotropy of NdFeB alloy powder by the severe plastic deformation. The NdFeB magnet powder was fabricated by gas atomization process, and the powder was pre-compacted at high temperature. The pre-compacted billets were deformed by HPT (high pressure torsion), and then the deformed billets were observed microstructure and magnetic properties. After the HPT process at room temperature, the grain size decreased with increasing because of the melted Nd-rich phase, and the anisotropy of Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B phase was formed after the HPT process.

**Keywords:** Rare Earth permanent magnet, Severe Plastic Deformation, Gas Atomization, Grain Refinement, Magnetic Anisotropy

## 1. 서론

RE(rare earth)-Fe-B 희토류 영구자석은 1910년대 영구자석이 개발된 이래로 상용화 된 자석 중 가장 우수한 자기적 특성을 가지고 있으며 이에 따라 MRI(magnetic resonance imaging), FA (factory automation

system), 로봇, 모터, 하드디스크, 전기자동차, 풍력발전 등 다양한 산업에 널리 사용되고 있다. 특히 최근 탄소중립 이슈 등으로 인한 친환경 산업의 수요가 증가함에 따라 향후 그 수요는 더욱 늘어날 것으로 예상된다[1].

현재 희토류 영구자석에 관한 연구는 주로 결정립 미세화 혹은 결정립 개선을 통한 고풍속의 고품위 자석 제조 [2], La, Ce 등 자원이 풍부한 경희토류 대체 자석 제조 [3-4], 소성변형 등 기존 공정을 대체하는 자석 제조 등이 수행되고 있다 [5-8]. 이 중 소성변형 등을 이용한 공정대체 자석의 경우 RE-Fe-B 자석의 강자성상인 2-14-1 상은 적은 슬립시스템

1. 한라캐스트 연구소, 책임연구원  
2. 한국생산기술연구원 뿌리기술연구소, 학생연구원  
3. 한국생산기술연구원 뿌리기술연구소, 선임연구원  
4. 한국생산기술연구원 뿌리기술연구소, 수석연구원  
# Corresponding Author : Research Institute of Advanced Manufacturing & Materials Technology, Korea Institute of Industrial Technology.  
E-mail: tskim@kitech.re.kr  
ORCID : 0000-0002-0258-0526

(tetragonal 구조, 2 개)을 가지며 쌍정 등 소성변형을 가능하게 하는 기구들이 발생하지 않기 때문에 상온에서 소성변형이 불가능하다고 알려져 있다 [5].

한편 현재까지의 희토류 영구자석의 제조 방법은 크게 두가지로 첫째, 스트립 캐스팅을 통해 스트립을 제조한 후 이를 수소 파쇄 및 jet mill 공정을 이용하여 분말화 한 뒤 자장성형 하여 이방화 및 가성형한 후 소결하는 방식, 두번째로 멜트스피닝 공정을 통해 리본을 제조한 뒤 이를 분쇄한 분말을 이용하여 고온에서 가성형 및 다이업셋 함으로써 고밀도화 및 이방성을 부여하는 방식으로 제조하고 있다 [5]. 희토류 영구자석은 주로 소결방식을 통해 제조되며 연자성상인  $\alpha$ -Fe 상의 제거를 위해 급냉 및 파쇄를 통한 분말화가 필수적이다.

금속분말 제조 공정 중 하나인 가스분무법 (gas atomization)의 경우 제조된 형상이 구형이기 때문에 파쇄 공정을 생략할 수 있고 파쇄된 분말 대비 높은 충전성 (packing density)을 가지며 표면에 나노단위의 산화막이 존재하여 취급이 용이하다는 장점으로 인해 희토류 영구자석으로 제조하기 위한 연구가 일부 수행되었으나 [6-8] 냉각속도가 기존 스트립 또는 리본 제조 공정에 비해 다소 느리기 때문에 결정립이 상대적으로 크고 생성된 구형 분말 내 강자성상이 등방성으로 형성되므로 자성특성이 상대적으로 낮아 많은 연구가 진행되지 못하고 있는 실정이다.

한편 최근 가스분무로 제조된 NdFeB 합금 분말의 결정립 미세화 및 이방성 형성을 가능하게 하기 위해 고온 소성변형을 통해 소결자석을 제조하는 연구가 수행되었으며 소성변형을 통한 NdFeB 소결 자석 제조의 가능성을 확인하였다 [9-11]. 그러나 강소성변형 (severe plastic deformation)의 경우 극한의 하중을 가하여 금속을 소성변형함으로써 낮은 온도에서 합성이 가능하며 비정질화, 나노결정화, 결정립 미세화 등 다양한 효과를 가진다고 보고되기 때문에 [12-14] 일반적인 상온에서의 소성변형이 아닌 강소성변형법을 통해 가스분무 분말을 소성변형한다면 상온에서도 치밀화된 자석을 제조할 수 있는 새로운 방법을 제시할 수 있을 것으로 판단된다.

따라서 본 연구에서는 가스분무된 NdFeB 합금 분말을 활용, 가성형한 뒤 상온에서 강소성변형 방법 중 하나인 HPT (high pressure torsion) 방법을 통해 소성변형을 수행하였고 Nd 함량에 따른 치밀화 정도

및 결정립 미세화, 이방성 형성 가능성을 확인하였다.

## 2. 실험방법

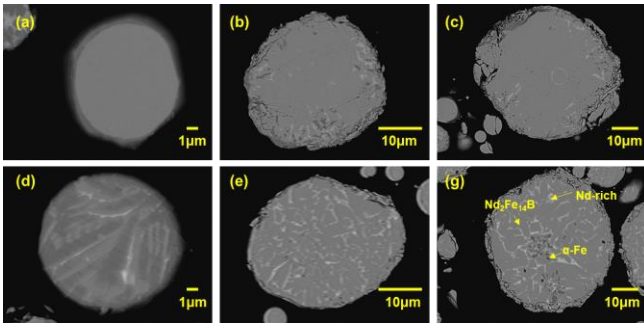
NdFeB 합금 분말은  $Nd_xFe_{94-x}B_6$  ( $x=12, 14$ ) 조성으로 제조되었으며 알루미늄 ( $Al_2O_3$ ) 도가니에서 유도 용해 후 약 1500 °C 에서 가스분무 장치 (model : DTIH-0050MF, Dongyang Induction Melting Furnace Corporation, Korea)를 이용하여 직경 5  $\Phi$ 의 BNC (boron nitride composite)의 오리피스를 통해 금속 스트립 생성 뒤 40 bar 의 고순도 Ar 가스로 분무하였다.

얻어진 분말은 체거름기로 분급 후 25~38  $\mu m$  크기의 분말을 선별하여 SPS 장비 (spark plasma sintering (model : SPS-20, Welltech Co., Korea)) 를 통해 10  $\Phi$  의 내경을 갖는 graphite 몰드에서 750 °C, 의 온도, 20 MPa 압력으로 가성형 하였다. 이 후 가성형된 빌렛을 직경 10  $\Phi$ , 높이 1.5mm 로 기계가공 하였으며 소성변형 이후 하중에 따른 미세조직 변화 및 이방성 형성을 확인하기 위해 HPT 장비에 장입하여 2 turn, 1~6 GPa 범위에서 매 1 GPa 씩 하중을 변화시켜 강소성변형을 수행하였다. 강소성변형 이후 관형 시편의 밀도측정은 비중계를 활용하였으며 FE-SEM (model : Jeol, JSM-7100F, Japan) 을 통해 미세조직을 관찰함으로써 결정립 미세화 여부를 관찰하였다. 이후 미세조직의 화상분석 (Image J software)을 통해 기공률 및 종횡비를 측정함으로써 강소성변형 이후 치밀화 및 형상이방성 형성 여부를 확인하였다. 강소성변형 이후 자성특성은 VSM (vibrating sample magnetometer, model : VersaLab VSM, USA) 을 통해 측정하였으며 강소성변형을 통한 상온에서의 자석 제조 가능성을 확인하였다.

## 3. 실험결과 및 고찰

### 3.1 가스분무 분말의 특성

가스분무 이후 Nd 함량 및 분말 크기에 따른 단면 미세조직을 Fig. 1 (a~f) 에 나타내었다. 분말의 미세조직에서 주로 관찰되는 상은 Fig. 1 (f) 에서 보는 바와 같이 강자성 상인  $Nd_2Fe_{14}B$  상 (기지상, 회색 영역), Nd-rich 상 (밝은 영역),  $\alpha$ -Fe 상 (어두운 회



**Fig. 1** Microstructure of gas atomized  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{94-x}\text{B}_6$  powder with composition and powder size. (a)  $x=12$ ,  $10\mu\text{m}$ , (b)  $x=12$ ,  $30\mu\text{m}$ , (c)  $x=12$ ,  $50\mu\text{m}$ , (d)  $x=14$ ,  $10\mu\text{m}$ , (e)  $x=14$ ,  $30\mu\text{m}$ , (f)  $x=14$ ,  $50\mu\text{m}$ .

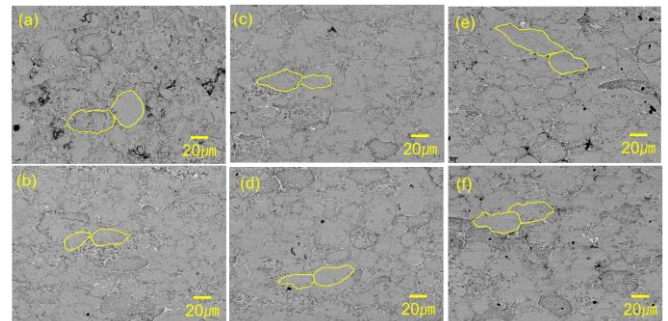
색 영역) 였다.  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  상은 강자성상이며 Nd-rich 상은 강자성상 사이 결정립계를 형성하여 decoupling 효과로 보자력을 향상시키는 역할을 한다.  $\alpha\text{-Fe}$  상은 연자성상으로 희토류 영구자석 내에 존재 시 일반적으로 자성특성을 저하시키기 때문에 제거되어야 하며 이를 위해서는 냉각속도가  $10^3$  K/sec 이상이 되어야 한다고 보고되고 있다[5].  $\text{Nd}_{12}\text{Fe}_{82}\text{B}_6$  조성의 경우 화학양론비 조성에 해당하며  $10\mu\text{m}$  크기의 분말에서는 빠른 냉각속도로 인해 강자성상인  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  상만 관찰되는 것을 확인할 수 있다 (Fig. 1 (a)). 그러나 이후  $30, 50\mu\text{m}$  크기의 분말에서는 (Fig. 1 (b, c))  $\alpha\text{-Fe}$  상의 형성이 확인되었으며 이는 질량효과로 인해 분말이 커질수록 냉각속도가 저하됨으로 인해 냉각 시  $\alpha\text{-Fe}$  상이 생성되었기 때문으로 판단된다.

Nd 함량이 14 % 일 때의 경우  $30\mu\text{m}$  크기까지  $\alpha\text{-Fe}$  상이 거의 관찰되지 않았으며 (Fig. 1 (e)) 이후  $50\mu\text{m}$  크기의 분말에서  $\alpha\text{-Fe}$  상이 관찰되었다 (Fig. 1 (f)). 이를 볼 때 Nd 함량이 12 %에서 14 % 로 늘어남에 따라 Nd 함량 증가로 인해  $\alpha\text{-Fe}$  상 생성이 억제되는 것을 확인할 수 있다. Image J 소프트웨어를 통해 분급된 분말 크기별 상 분율을 측정하였고  $\alpha\text{-Fe}$  상의 경우 Nd 함량 12 %, 14 % 에서 각각 4.5, 0.3% 였으며 Nd-rich 상은 각각 1.2, 10.8 % 였다.

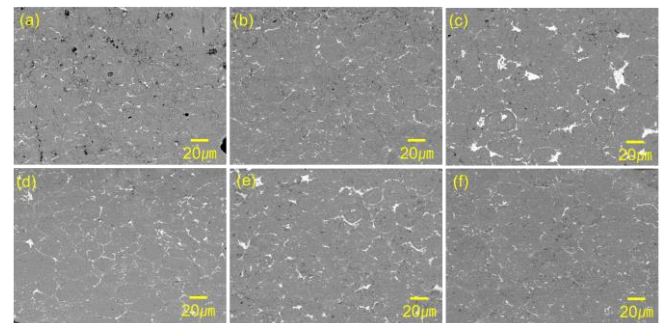
### 3.2 HPT 하중에 따른 미세조직 변화

이 후  $25\sim 38\mu\text{m}$  크기의 분말을 분급하여 각 조성별로 고온에서 가성형하였고 기계가공 및 HPT 를 통해 강소성변형을 수행하였다. 강소성변형 이후

$\text{Nd}_{12}\text{Fe}_{82}\text{B}_6$  조성의 하중별 단면 미세조직을 Fig. 2 (a~f)에,  $\text{Nd}_{14}\text{Fe}_{80}\text{B}_6$  조성의 하중별 단면 미세조직을 Fig. 3 (a~f)에 각각 나타내었다. Fig. 2 와 Fig. 3 을 볼 때 Nd 12, 14% 에서 하중이 증가할수록 내부 기공이 줄어드는 것을 확인할 수 있으며 미세조직적으로 형상이방성이 형성됨을 확인할 수 있다. 특히 Nd 14 % 에서는 분말상태일 때 분말 내 결정립계를 형성하던 Nd-rich 상이 powder boundary 쪽으로 이동함을 확인할 수 있는데 이를 볼 때 HPT 공정 중 상온 공정임에도 불구하고 Nd-rich 상의 유동성이 생성되었다는 것을 알 수 있으며 보고된 바에 따르면 극한의 하중 하에서는 마찰열에 의해 소재에 따라 nano seconds 단위의 시간동안  $\mu\text{m}$  범위에서 수천 K 까지 온도가 상승할 수 있다고 알려져 있다. 따라서 Nd-rich 상은 마찰열에 의해 용해될 수 있으며 HPT 공정이 계속됨에 따라 토크 및 유동에 의해 결정립 개선 효과를 발생시킨 것으로 판단된다 [15].



**Fig. 2** Microstructure of  $\text{Nd}_{12}\text{Fe}_{82}\text{B}_6$  plates after HPT process (a) 1 GPa, (b) 2 GPa (c) 3 GPa, (d) 4 GPa, (e) 5 GPa and (f) 6 GPa



**Fig. 3** Microstructure of  $\text{Nd}_{14}\text{Fe}_{80}\text{B}_6$  plates after HPT process (a) 1 GPa, (b) 2 GPa (c) 3 GPa, (d) 4 GPa, (e) 5 GPa and (f) 6 GPa

강소성변형 이후 Nd 함량 및 HPT 하중별 기공률 변화를 Fig. 4 (a) 에, 형상이방성 변화를 Fig. 4 (b) 에 각각 나타내었다. Nd<sub>12</sub>Fe<sub>82</sub>B<sub>6</sub> 조성의 경우 1 GPa 의 하중에서 기공율이 2.95 %로 나타났으나 이후 하중이 증가함에 따라 각각 0.95 %, 0.84 %, 0.8 %, 0.91 %, 0.81 %로 적은 양의 Nd-rich 상에도 불구하고 99% 이상의 밀도를 얻을 수 있었다. Nd<sub>14</sub>Fe<sub>80</sub>B<sub>6</sub> 조성의 경우 기공율은 1 GPa 에서 1.75 % 이었고 이 후 2~6 GPa 로 하중이 증가함에 따라 각각 0.17, 0.23, 0.12, 0.14, 0.08 % 로 Nd<sub>12</sub>Fe<sub>82</sub>B<sub>6</sub> 조성보다 훨씬 치밀해짐을 보였다. 이는 Nd-rich 상의 마찰열로 인한 용해로 인해 유동성이 생기며, 높은 에너지를 가진 기공 방향으로 우선적으로 채워지기 때문인 것으로 판단된다. 반면에 Nd<sub>12</sub>Fe<sub>82</sub>B<sub>6</sub> 조성은 Nd-rich 상이 상대적으로 적어서 기공을 채울 수 있는 양이 충분하지 않기 때문에 상대적으로 높은 기공률을 가진다고 판단된다.

형상이방성의 경우 중형비를 통해 측정된 결과 Nd<sub>12</sub>Fe<sub>82</sub>B<sub>6</sub> 조성의 경우 1 GPa 에서 6 GPa 로 하중이 증가함에 따라 각각 1.38, 2.01, 2.37, 2.43, 2.38, 2.30

이었고 Nd<sub>14</sub>Fe<sub>80</sub>B<sub>6</sub> 조성의 경우 1 GPa 에서 6 GPa 로 하중이 증가함에 따라 각각 1.29, 1.42, 1.45, 1.47, 1.43, 1.50 로 변화되었다. 반면 결정립 미세화의 경우 Nd 함량 12 % 에서는 적은 Nd-rich 상분율로 인해 미세화 효과가 거의 나타나지 않았으며 이미지 분석을 통해 분석 한 결과 Nd 함량 14 % 의 경우 하중이 1~6 GPa 로 상승함에 따라 각각 78, 84, 83, 87, 88, 91 % 로 미세화 된 것을 확인하였다.

### 3.3 하중에 따른 자성 특성 분석

자성특성의 경우 Nd 함량 12 % 일 때는 α-Fe 상의 존재, 낮은 Nd-rich 상분율로 인한 de-coupling 기구 부재 등으로 인해 모든 하중에서 보자력 1 kOe 이하, 잔류자화 3 kG 이하의 결과를 얻었으며 Nd 함량 14 % 에서는 하중이 1, 4, 6 GPa 로 상승함에 따라 보자력은 각각 1.87, 2.08, 2.3 kOe, 잔류자화는 각각 3.78, 4.16, 4.83 kG 였다. 하중이 증가할수록 보자력과 잔류자화값이 상승함을 보였는데 일반적으로 보자력은 결정립 크기, 이방성 자계, 포화자화, 결정립 de-coupling 효과와 연관이 있으며 잔류자화는 포화자화값, 밀도의 비, 비자성상의 상분율, 이방성과 연관이 있다. 같은 조성에서 나머지 값이 동일하므로, 하중이 증가함에 따라 결정립 미세화 효과로 인해 보자력이 증가했다고 판단할 수 있으며, 밀도 개선 및 이방성 형성으로 인해 잔류자화 값이 향상되었다고 판단할 수 있다. 자성특성의 경우 일반적인 NdFeB 자석과 비교할 때 낮은 값을 가졌는데 이는 강소성변형 중 응축된 응력으로 인한 결과로 보이며 향후 열처리를 통한 응력제거, 결정립계 개선 및 합금 첨가원소 개선 등으로 자성특성 향상이 가능할 것으로 판단된다.

## 4. 결론

본 연구에서는 강소성변형 방법 중 HPT 공정을 이용, 가스분무된 NdFeB 합금 분말을 강소성변형하여 자석을 제조하였으며 결정립미세화 및 이방성 형성 효과, 자성특성을 확인함으로써 상온에서의 강소성변형을 통한 희토류 영구 소성변형 자석 제조가 가능한지 여부를 판단하였고 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) 상온에서 NdFeB 합금을 강소성변형 한 결과 마찰열로 인해 Nd-rich 상의 용해가 발생되어 액상

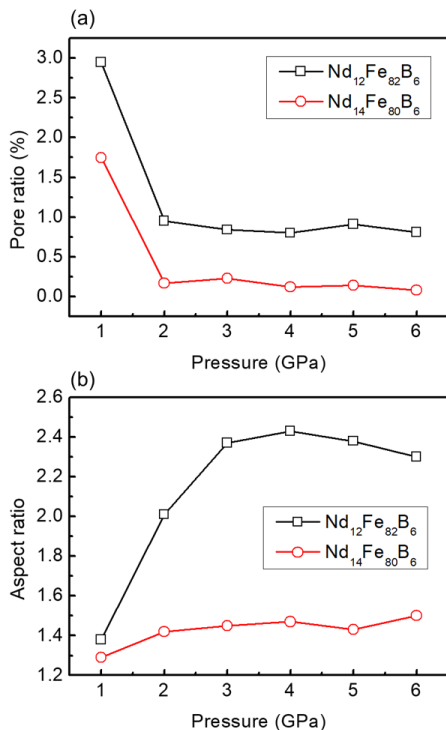


Fig. 4 Pore ratio and aspect ratio after HPT process with Nd composition (a) pore ratio, (b) aspect ratio.

Nd-rich 흐름을 통해 결정립 미세화 및 치밀화가 발생함을 확인하였다.

(2) 자성특성을 볼 때 하중에 따라 보자력 및 잔류자화 값이 개선되어 결정립 미세화 효과 및 이방성이 형성됨을 확인하였다.

(3) 향후 열처리를 통한 응력제거, 결정립계 개선 및 첨가원소 개선 등을 통해 자성특성 향상이 가능할 것으로 판단된다.

## 후 기

이 연구는 2022 년도 산업통상자원부 및 산업기술평가관리원 (KEIT) 연구비 지원에 의한 연구임 (20000970).

## REFERENCES

- [1] H. Y. Yasuda, M. Kumano, T. Nagase, R. Kato and H. Shimizu, 2011, Tensile deformation behavior of Nd-Fe-B alloy, *Scripta Mater.*, Vol. 65, No. 8, pp. 743.  
<https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2011.07.027>
- [2] S. M. Kim, H. S. Lee and W. Y. Lee, 2018, Current status and prospect of rare earth magnet, *Journal of the Kor., Magnetics Soc.* Vol. 28, No. 6, pp. 248,  
<https://doi.org/10.4283/JKMS.2018.28.6.248>
- [3] J. Jin, T. Ma, Y. Zhang, G. Bai, and M. Yan, Chemically Inhomogeneous RE-Fe-B Permanent Magnets with High Figure of Merit: Solution to Global Rare Earth Criticality, *Scientific Reports* 6, pp. 32200
- [4] J. Jin, G. Bai, Z. Zhang, and M. Yan, 2018, Coercivity enhancement for Nd-La-Ce-Fe-B sintered magnets by tailoring La and Ce distributions, *J. Alloys Compounds* Vol. 763, No. 30, pp. 854~860.  
<https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2018.06.019>
- [5] S. G. Yoon, *Transfer, Super Strong Permanent Magnets*, 1999, UUP, Ulsan.
- [6] V. V. Savin, A. V. Evstafenko, V. V. Buldygin, A. M. Bovda, V. A. Bovda and L. V. Onischenko, 2004, *Proceedings of the Euro PM 2004*.
- [7] V. V. Savin, A. V. Evstafenko, V. V. Buldygin, A. M. Bovda, V. A. Bovda and L. V. Onischenko, 2004, *Proceedings of the Euro PM 2004*.
- [8] T. Tomse et al., 2018, Properties of SPS-processed permanent magnets prepared from gas-atomized Nd-Fe-B powders, *J., of alloys and compounds*, Vol.744, No. 5, pp. 132~140.  
<https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2018.01.411>
- [9] J. H. Lee, J. Y. Cho, S. W. Nam, S. F. Abbas, K. M. Lim and T. S. Kim, 2017, Effect of deformation on the magnetic domain orientation of rapidly solidified Nd-Fe-B powders using pulsed current assisted sintering, *Sci., of Advanced Mater.*, Vol. 9, pp. 1859~1862,  
<https://doi.org/10.1166/sam.2017.3195>.
- [10] J. Y. Cho, S. F. Abbas, Y. H. Choa and T. S. Kim, 2019, Effect of powder size on the microstructure and magnetic properties of Nd-Fe-B magnet alloy, *Arch. Metall. Mater.* Vol. 64, No. 2, pp. 625~628.  
<https://doi.org/10.24425/amm.2019.127589>.
- [11] J. Y. Cho, Y. H. Choa, S. W. Nam, R. M. Zarar and T. S. Kim, 2020, Effect of temperature on the plastic deformability of gas atomized NdFeB anisotropic magnets, Vol. 65, No. 4, pp. 1293~1296.  
<https://doi.org/10.24425/amm.2020.133687>.
- [12] S. H. Joo and H. S. Kim, 2010, Ultrafine Grained Bulk Al Matrix Carbon Nanotube Composites Processed by High Pressure Torsion, *Proc. Kor. Soc. Tech. Plast. Conf.*, Vol. 19, No. 7, pp. 423~428.  
<https://doi.org/10.5228/KSTP.2010.19.7.423>.
- [13] K. J. Kim, 2012, Finite element analysis of half channel angular extrusion as a new severe plastic deformation process, *Proc. Kor. Soc. Tech. Plast. Conf.*, Vol. 21, No. 3, pp. 164~171.  
<https://dx.doi.org/10.5228/KSTP.2012.21.3.164>.
- [14] S. T. Kim et al., 2018, Microstructural changes of OFC according to the processing number of multi-axial diagonal forging, *Proc. Kor. Soc. Tech. Plast. Conf.*, Vol. 27, No. 6, pp. 347~355,  
<https://doi.org/10.5228/KSTP.2018.27.6.347>.
- [15] J. J. Lewandowski, A. L. Greer, 2006, Temperature rise at shear bands in metallic glasses, *Nature materials*, Vol. 5, pp. 15-18.