

펄스자장을 이용한 고이방화 Nd-Fe-B 자석의 종축자장성형방법

김동환* · 강병길 · 장동열 · 김승호 · 김상면

자화전자연구소, 충북 청주시 송정동 161-10, 361-290

장태석

선문대학교 재료화학공학부, 충남 아산시 탕정면 선문대학교, 336-708

(2003년 8월 4일 받음, 2003년 8월 20일 최종수정본 받음)

펄스자장종축성형법(pulse die press, PDP)을 이용하여 32 wt%RE-67 wt%TM-1 wt%B(RE: 희토류원소, TM: 3d전이금속) 조성을 갖는 소결자석을 제조함에 있어서 자장성형시 분말의 탭밀도, 성형밀도, 인가자장세기 및 인가방법의 변화에 따라 얻어지는 자석의 배향율과 감자곡선상의 각형성 변화를 조사하였다. 출발합금 제조방법으로서 strip casting process에 의하여 α -Fe 편석없이 미세하고 균일한 조직을 갖는 합금 flake가 얻어졌고, 합금 flake를 수소처리한 후 고압가스를 이용한 건식분쇄방법(jet mill)에 의하여 평균입도, 표준편차가 각각 3.65 μ m, 1.39인 미세하고 균일한 입도의 분말로 제조하였다. 제조된 분말은 30~50 kOe의 고 펄스자장에 의하여 분말을 배향시키고 동일한 펄스자장을 인가하면서 종축성형을 실시함으로써 배향율을 향상시킬 수 있었다. 결과적으로 32 wt%RE 조성의 분말을 이용하여 종전의 자장성형방법인 TDP(transverse die press)와 본 연구에서 제안된 PDP에 의하여 제조된 자석의 최대자기에너지적은 각각 42.0 MGOe 및 44.8 MGOe가 얻어져, PDP가 분말의 배향율과 감자곡선상의 각형성을 향상시키는데 효과적인 자장성형방법임을 알 수 있었다.

주제어 : 펄스자장종축성형방법, strip casting process, jet mill, 펄스자장, 배향율

I. 서 론

최근 모터, 액츄레이터, 의료기기 등에 대한 설계기술 발달과 부품 및 소재의 소형화, 고기능화 추이에 따라 영구자석 재료의 주된 연구방향도 잔류자속밀도(B_r)를 극대화 하여 고에너지적($(BH)_{MAX}$)을 갖는 자석을 개발하고자 하는 방향으로 진행되고 있다.

많은 연구자들에 의하여 널리 알려진 바와 같이, 현재 가장 우수한 경자기특성을 나타내는 Nd-Fe-B계 소결자석의 경우, 최대자기에너지적은 잔류자속밀도 및 비투자율(μ_r)과 다음의 관계식을 갖는다[1, 2].

$$(BH)_{MAX} = B_r^2/4\mu_r$$

여기서, 비투자율은 자기이력곡선의 2상한 감자곡선의 각형성(squareness)을 반영해주는 인자로서, Nd-Fe-B계 소결자석의 자화반전은 역자구 생성 여부에 지배를 받게 되므로 균일하고 미세한 조직형성과 표면결함 제거에 의하여 개선될 수 있고, 각형성은 주어진 잔류자속밀도에 대한 이론적인 최대자기에너지적($(BH)_{MAX,theo}$)과 얻어진 최대자기에너지적의 비율로서 다음과 같이 표현된다.

$$Squareness = \frac{(BH)_{MAX,theo}}{(BH)_{MAX}} = \frac{B_r^2/4}{(BH)_{MAX}}$$

또한, 잔류자속밀도는 경자성상($Nd_2Fe_{14}B$ phase)의 포화자속밀도(B_s)와 부피분율(v_ϕ), 자석의 상대밀도(ρ/ρ_0) 및 조직의 자기배향율(f_ϕ)에 의하여 결정되어 $B_r = B_s \rho/\rho_0 v_\phi f_\phi$ 의 관계를 [2] 갖게 되는데, $Nd_2Fe_{14}B$ 의 $B_s = 16$ kG로 알려져 있고 나머지 인자들은 합금인코트 제조, 분말제조, 자장성형, 소결 등 자석의 제조공정에 의하여 조절되게 된다. 특히, 언급한 잔류자속밀도 결정인자들 중에 미세조직의 자기배향율은 주로 분말을 자장중에 배향/성형하는 과정에서 결정되므로, 잔류자속밀도 및 에너지적 향상에 중요한 역할을 한다. 예를 들어, 상기 수식들을 이용하여 동일 조성의 합금분말에 대하여 자기배향율의 차이에 따른 에너지적의 변화를 계산해 보면, 1%의 배향율 향상에 의하여 약 1 MGOe의 에너지적이 증가됨을 알 수 있다. 현재까지 자기배향율 향상에 대하여 발표된 연구결과를 살펴보면, 출발합금 제조시 기존의 book mold casting 대신 strip casting process를 이용함으로써 합금조직의 미세화, 균질화 및 이방화를 가능하게 하였고[2, 3], 분쇄된 분말을 50-70 kOe의 펄스자장으로 정렬한 후 CIP 또는 RIP (Rubber Isostatic Pressing)로 정수압성형을 함으로써 조직이방화의 극대화를 이루려는 시도가 진행되고 있다[4-6]. 또한, W. Rodewald 등에 의하면 분쇄된 분말을 횡축정자장성형하고 80 kOe의 고펄스자장으로 재정렬을 수행함으로써 98% 이상의 배향도가 얻어진 것으로 보고되고 있다[7].

한편, 본 저자 등에 의하여 펄스자장종축성형법(PDP)이라고 명명된 새로운 형태의 자장성형방법은[8, 9] 30~70 kOe의

*Tel: (02)920-0720, E-mail: iwpark@kbsi.re.kr

고펄스자장을 이용하여 분말을 완전히 배향한 후 성형시에도 동일한 펄스자장이 인가되기 때문에 배향틀어짐을 최대한 억제할 수 있는 것을 특징으로 하고 있다. 따라서, 본 논문에서는 향후 Nd-Fe-B계 소결자석 자장성형방법으로 널리 활용되리라 예상되는 펄스자장 종축성형법을 이용하여 분말의 탭밀도, 성형밀도, 인가자장세기 및 인가방법에 따른 자석의 배향율과 각형성의 변화에 대한 조사를 하였다.

II. 실험방법

Strip casting process에 의하여 제조된 32 wt%RE-67 wt%TM-wt%IB조성의 합금잉곳트를 이용하여 수소압력 2 기압, 상온~200 °C의 분위기에서 2~3시간 동안 수소처리를 실시한 후, 분쇄가스압력 6.5 bar, classifier 5500 rpm의 조건으로 Jet Mill(Alpine,100)을 수행함으로써 평균입도 및 표준편차가 각각 3.65 μm, 1.39인 미세하고 균일한 입도의 분말을 제조하였다.

분쇄된 분말은 그림 1에서 보는 바와 같이 실린더 형상의 비자성 금속금형에 균일하게 충전하여 슬레노이드 혹은 비터코일의 중심에 위치하게 하고, 30~50 kOe(Magnetizer: 2800 μF, 2500 V)의 펄스자장을 수 차례 인가함으로써 분말을 자장방향으로 정렬한 후, 비자성 금속금형의 상/하면에 강자성재료인 펀치를 밀착시키고 다시 펄스자장을 인가하면서 성형을 수행하였다. 이때, 성형과정은 펄스자장 인가시 펀치를 구성하고 있는 강자성재료가 자장코일의 중심 쪽으로 이동하려는 힘을 받게되는 원리를 이용하기 때문에 별도의 기계식 혹은 유압식 힘이 부가되지 않아도 압축성형이 가능하고, 펀치의 강자성 부분의 부피분율을 변화시킴으로써 성형압력을 조절

할 수 있다. 성형체는 진공분위기에서 1000~1100 °C×2 hr 조건에서 소결하였고, 500~600 °C의 범위에서 열처리함으로써 자기특성의 변화를 관찰하였다.

자석의 자기특성은 30 kOe의 펄스자장으로 착자한 후, B-H loop tracer를 이용하여 측정하였으며, 성분분석, 입도분포, 미세구조 및 산소분석은 각각 ICP(Leeman Lab,IntegreXL), Particle size analyser(TSI,Aerosizer), SEM-EDS(Hitachi, 3000N), Oxygen analyzer(북경납극분석, IRO-I)를 이용하여 조사하였다.

III. 실험결과

형상 및 자장배향율의 향상을 고려하여 자석을 제조하기 위해서는 자장성형방법의 선택이 중요한데, 현재 널리 활용되고 있는 자장성형방법에는 종축자장성형방법(axial die press, ADP)과 횡축자장성형방법(transverse die press, TDP)이 있다. ADP의 경우 최종제품의 near-net shape으로 성형 및 소결이 가능하며 butterfly, disk 혹은 coin 형태의 자석을 제조하는데 잇점이 있으나 분말의 자장정렬 후 성형단계에서 성형밀도가 증가함에 따라 배향의 틀어짐 현상이 증가하므로 배향율향상에 한계가 있어 $(BH)_{MAX}+iH_c = 54$ (여기서, $(BH)_{MAX}:MGOe, iH_c:kOe$) 이상의 자석은 제조되기 어렵다. TDP의 경우 고이방화 자석의 제조가 가능하나 복잡한 형상의 제품을 직접 성형할 수 없어 일반적으로 block 혹은 cylinder 형태로 성형/소결한 후 여러 단계의 가공공정을 거쳐야 하므로 재료의 손실뿐만 아니라 고가의 가공비용이 소요되므로 경제적인 문제점을 갖게 된다. 반면에 PDP는 30~50 kOe의 펄스자장을 이용하여 분말의 정렬 및 성형을 동시에 수행함으로써 TDP보다 향상된 배향율이 얻어질 수 있고, 자장인가와 성형방향이 평행한 종축성형의 형태이므로 복잡한 형성의 자석을 near-net shape으로 제조가 가능하여 경제적인 잇점이 있다.

자장정렬 및 성형시 분말의 배향틀어짐은 금형 내부에 자장분포가 불균일하거나 낮은 인가자장으로 인하여 분말이 자장방향으로 배향하는 회전력이 충분하지 못한 요인 및 정렬된 분말의 일방향성형시 성형전/후의 형상비율의 차이가 발생하여 기계적으로 배향이 틀어지는 요인으로 나누어진다. 특히 후자의 경우 배향틀어짐의 가장 중요한 요인이 되는데 이를 해결하기 위해서 정수압성형을 하거나 성형시 높은 자장을 인가하면 배향틀어짐의 정도를 개선할 수 있다. 본 실험에서는 상기의 두 가지 요인을 해결하기 위하여 30~50 kOe의 높은 펄스자장으로 분말을 정렬을 하였으며, 성형전/후의 형상비율을 감소시키기 위하여 분말의 탭밀도를 2.2~3.4 g/cc 범위까지 증가시키고 성형에는 탭밀도 증가로 인해 분말배향율이 감소되는 것을 방지하기 위하여 30~50 kOe의 펄스자장을 인가하면서 성형밀도=3.8 g/cc를 갖는 성형체로 성형하였다.

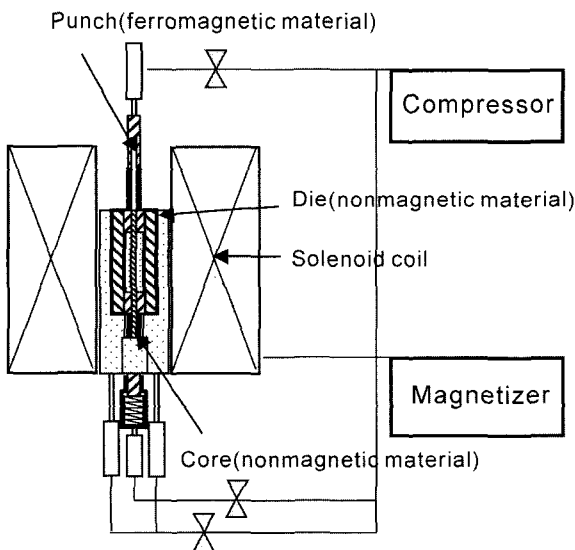


Fig. 1. Schematic diagram of pulse die pressing device.

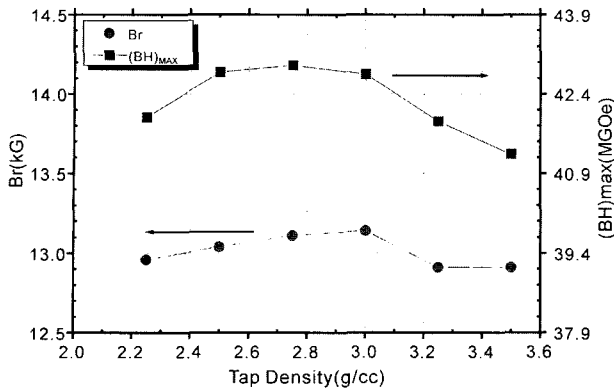


Fig. 2. The variation of B_r and $(BH)_{MAX}$ as a function of tap density of 32RE-67TM-1B magnet ($H_{appl} = 30$ kOe).

그림 2는 32 wt%RE-67 wt%TM-1 wt%B조성의 분말에 대하여 탭밀도를 2.2~3.4 g/cc 범위로 변화시키면서 펄스성형을 수행한 경우, 탭밀도 변화에 따른 잔류자속밀도와 최대자기에너지적의 변화를 보여주는 그림이다. 이때, 인가된 펄스자장의 세기는 30 kOe이고, $\pm 5\%$ 이하의 균일한 자장분포를 갖는 영역에서 정렬 및 성형을 수행하였다. 그림에서 보는 바와 같이 탭밀도가 증가함에 따라 잔류자속밀도 및 최대자기에너지적이 증가하여 2.8~3.0 g/cc 부분에서 각각 13.20 kG, 43.2 MGOe으로 최대를 이루고, 그 이상으로 탭밀도를 증가시키면 급격히 자기특성이 감소함을 볼 수 있다. 자장세기=20 kOe 이하의 정자장을 이용하는 TDP 혹은 ADP의 경우에도 유사한 경향을 보이고 있고 약 2.2 g/cc의 탭밀도에서 최적의 자기특성을 나타내는 결과와 비교해 보면, 인가자장을 증가시키에 따라 최적의 충전밀도가 증가하고, 시간에 따라 자장세기가 일정한 정자장 보다는 짧은 순간에 자장이 인가되는 펄스자장이 분말의 자장방향 회전력을 증가시키는데 효과적임을 알 수 있다. 탭밀도 3.0 g/cc 이상에서 잔류자속밀도가 감소하는 것은 분말과 분말사이의 공간이 부족하여 인가자장 대비 분말의 회전력이 미약한 것에 기인하는 것이다. 또한, 정렬시 펄스자장은 3~5회 정도 반복적으로 인가하는데 인가하는 방법은 한쪽 방향으로 인가하는 것 보다는 펄스자장의 방향을 계속 바꾸어 주면서 인가하는 것이 배향을 향상에 효과적이었다. 펄스자장의 인가횟수를 증가시키면 그림 3에서 나타난 것과 같이 분말의 배향율이 향상되어 잔류자속밀도가 점차 증가하는 결과가 얻어졌다. 이와 같은 결과는 Yuji Kaneko[2] 및 W.Rodewald[7] 등이 얻은 결과와 유사한 경향으로서 펄스자장의 인가횟수가 증가하면 서로 agglomeration 되어있는 분말들이 점차 해쇄되면서 자장방향으로 자유롭게 회전할 수 있는 것에 기인한다.

그림 4는 32 wt%RE-67 wt%TM-1 wt%B조성의 분말을 이용하여 종전의 성형방법인 TDP 및 본 연구가 제안하는 PDP

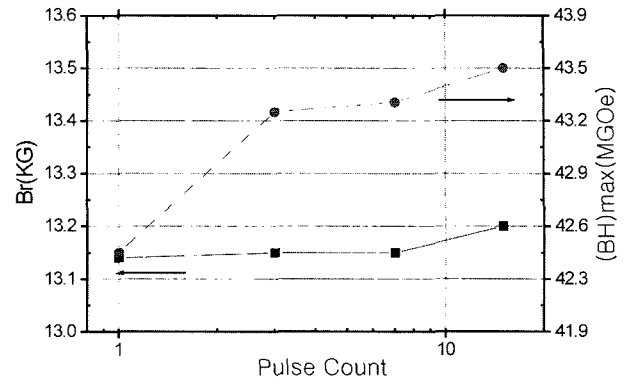


Fig. 3. The variation of B_r and $(BH)_{MAX}$ as a function of pulse count for 32RE-67TM-1B magnet ($H_{appl} = 30$ kOe).

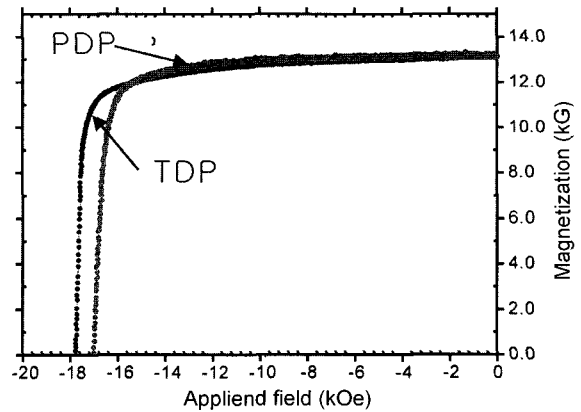


Fig. 4. Demagnetization curves of 32RE-67TM-1B magnet produced by TDP and PDP.

에 의하여 각각 자장성형을 수행하여 얻어진 자석의 2상한 감자곡선이다. 결과적으로 PDP는 분말의 배향도를 증가시킬 뿐만 아니라 각형성(squareness)을 향상시켜 높은 에너지적의 자석을 제조하는데 효과적인 자장성형방법임을 알 수 있다. 반면에, PDP에 의하여 제조된 자석은 TDP와 비교하여 보자력이 약 0.7 kOe 감소하는 현상이 발생하였는데, 이와같은 현상에 대한 원인을 알아보기 위하여 별도의 연구를 진행중에 있다.

그림 5는 펄스자장세기에 따른 자기특성변화를 알아보기 위하여 펄스자장을 30 kOe에서 50 kOe로 증가시키고 탭밀도를 3.2~3.6 g/cc 범위로 변화시키면서 자장배향 만을 수행하여 얻어진 자석의 잔류자속밀도와 최대자기에너지적의 변화를 보여주는 그림이다. 그림에서 보는 바와 같이 펄스자장의 세기가 증가함에 따라 최적의 성형밀도가 3.4 g/cc까지 증가하였고, 3.2 g/cc 이상의 밀도를 갖는 정렬체는 별도의 성형없이도 소결이 가능하였다. 그림2의 펄스자장=30 kOe의 경우와 비교해 보면 동일한 조성의 분말에 대하여 최적의 탭밀도가 2.8~3.0 g/cc에서 3.4 g/cc로 증가하였고, 이때 얻어진 자석의

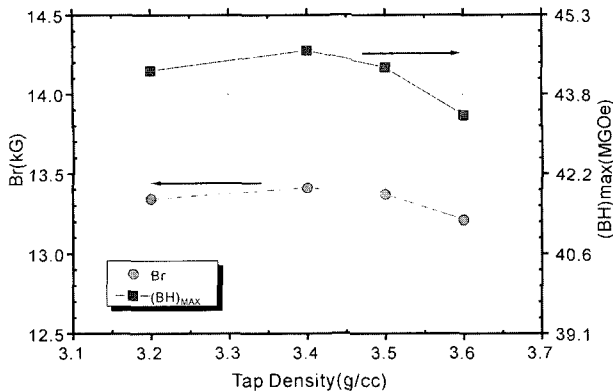


Fig. 5. The variation of B_r and $(BH)_{MAX}$ as a function of tap density of 32RE-67TM-1B magnet ($H_{appl} = 50$ kOe).

배향율은 더욱 향상되어 에너지적이 약 1 MGOe 증가하였다. 한편, 탭밀도=3.4 g/cc로 정렬한 것과 이 정렬체를 다시 성형밀도=3.8 g/cc로 펄스성형하고 동일한 조건에서 소결 및 열처리한 후 자기특성을 비교해본 결과, 잔류자속밀도 및 에너지적이 각각 13.35 kG에서 13.46 kG, 44.4 MGOe에서 44.8 MGOe로 성형에 의하여 배향율이 오히려 향상되는 결과가 얻어졌다. 이와같은 결과는 앞서 예측한 것과 달리 성형 이후 배향율이 향상된 것을 의미하는데, 원인으로서는 분말배향시 순간적인 자장변화에 의하여 분말에 원주방향의 와전류가 흐르고, 동시에 분말이 내측에서 외측으로 움직이려는 힘(로렌즈 힘)을 받게되기 때문인 것으로 사료된다. 즉, 펄스자장을 이용한 분말정렬시 로렌즈 힘에 의하여 정렬체의 내/외측 밀도 차이가 야기되고 결과적으로 소결수축시 배향틀어짐을 발생시키게 되는데, 적절한 성형밀도를 갖도록 성형을 하면 성형에 의한 배향틀어짐 증가부분 보다 소결시의 배향틀어짐 감소부분이 우세하기 때문이다. Table I은 32RE-67TM-1B 조성의 분말에 대하여 자장성형방법을 달리하면서 얻어진 자석의 자기특성을 비교해 주는 결과이다. PDP에 의하여 제조된 자석과 종전의 성형방법인 ADP와 TDP에 의하여 제조된 것의 에너지적을 비교해 보면 각각 11.3 및 2.8 MGOe 향상되었다. 따라서, PDP는 복잡한 형상의 자석을 near-net shape으로 제조가 가능한 종축성형 방식이며 분말의 배향율을 향상시켜 고에너지적의 자석을 제조하는데 잇점이 있는 자장성형방법임을 알 수 있었다.

Table I. Comparison of magnetic properties of 32RE-67TM-1B magnet produced by ADP, TDP and PDP

Pressing method	B_r (kG)	iH_c (kOe)	$(BH)_{MAX}$ (MGOe)	squareness
ADP	11.73	18.5	33.5	1.03
TDP	13.15	17.7	42.0	1.03
PDP	13.46	17.0	44.8	1.01

IV. 결 론

향후 Nd-Fe-B계 소결자석 자장성형방법으로 널리 활용되리라 예상되는 펄스자장 종축성형법을 이용하여 분말의 탭밀도, 성형밀도, 인가자장세기 및 인가방법에 따른 자석의 배향율과 각형성의 변화를 조사해본 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 자장정렬시 인가자장을 증가시키에 따라 최적의 자기특성을 얻기 위한 충전밀도는 증가하였고, 정자장 보다는 짧은 순간에 자장이 인가되는 펄스자장이 분말의 자장배향을 향상에 효과적이었다.
2. 펄스자장의 인가방법은 교변에 의하여 반복적으로 인가하는 것이 배향을 향상에 효과적이며, 인가횟수가 증가함에 따라 배향 및 자기특성은 점차 향상된다.
3. 32 wt%RE-67 wt%TM-1 wt%B조성의 분말에 대하여 PDP를 이용하여 정렬/성형한 후 자석을 제조한 결과, 잔류자속밀도, 보자력 및 최대자기에너지적은 각각 13.46 kG, 17.0 kOe and 44.8 MGOe가 얻어졌다.
4. PDP는 복잡한 형상의 자석을 near-net shape으로 제조가 가능한 종축성형 방식이며, ADT나 TDP 보다 분말의 배향율을 향상시켜 고에너지적의 자석을 제조하는데 잇점이 있는 자장성형방법임을 알 수 있었다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 국가지정연구실사업의 지원으로 이루어진 것으로 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

- [1] Y. Kaneko, K. Tokuhara and N. Ishigaki, Jpn. J. Powder and Powder Metallurgy, **41**, 695(1994).
- [2] Y. Kaneko, Proceeding of the 16th workshop on rare earth magnets and thier applications, **2**, 83(2000).
- [3] J. Bernardi, J. Fidler, M. Sagawa and Y. Hirose, J. Appl. Phys., **83**(11), (1998).
- [4] Y. Hirose, H. Hasegawa, S. Sasaki and M. Sagawa, Proceeding of the 15th workshop on Rare earth magnets and their applications, **1**, 77(1998).
- [5] H. Nagata and M. Sagawa, Proceeding of the 17th workshop on rare earth magnets and thier applications, 354p (2002).
- [6] F. Vial, J. Calvert and M. Sagawa, Proceeding of the 17th workshop on rare earth magnets and their applications, 372p (2002).
- [7] W. Rodewald, B. Wall, M. Katter, K. Ustuner and S. Steinmetz, Proceeding of the 17th workshop on rare earth magnets and their applications, 25p (2002).
- [8] 김동환, 특허출원 10-2003-0020869, 희토류자석제조의 고이방화 종축성형법업 및 그 장치(2003).
- [9] 김동환, 강병길, 장동열, 특허출원 10-2003-0062696, 고성능 희토류자석을 제조하기 위한 펄스자장 종축성형방법(2003).

Axial Pressing Method Using Pulse Magnetizing Field for the Preparation of Nd-Fe-B Sintered Magnets

Donghwan Kim*, Byungkill Kang, Dongyoul Jang, Andrew S. Kim, Sangmyun Kim, and T. S. Jang¹

R & D Center, Jahwa Electronics Co. 160-10 Songjung-dong, Hungduck-gu, Cheongju 361-290, Korea

¹Division of Materials and Chemical Engineering, Sunmoon University 100 Kalsan Li, Tangjung Myon, Asan City, Choongnam 336-708, Korea

(Received 4 August 2003, in final form 20 August 2003)

A new axial pressing method using pulse magnetizing field was studied to improve the remanence of Nd-Fe-B sintered magnets. In order to make near-net shape green compacts of butterfly, disk, or coin magnets, conventional axial-type pressing has been normally used. However, compared to the transverse-type pressing, it is not possible to obtain higher remanence by this method because the magnetic alignment of powder begins to deteriorate when the density of green compacts increases over a critical value. On the other hand, we found that an axial pressing under pulse magnetizing field was very effective to increase the degree of magnetic alignment of powder, yielding remanences even higher than those obtained by the transverse pressing. In this study, it was revealed that appropriate tapping density and how to apply pulse magnetic field were important to improve the grain alignment and thus remanence of Nd-Fe-B sintered magnet.

Keywords : new axial pressing method, pulse magnetizing field, Nd-Fe-B sintered magnets, near-net shape, alignment.