

Nd-Fe-B 희토류 소결자석의 제조 및 응용

김세훈 · 김영도 · 장태석^a

한양대학교 신소재공학과

^a선문대학교 하이브리드공학과

Production and Application of Nd-Fe-B Sintered Magnets

Se Hoon Kim, Young Do Kim and Taesuk Jang^a

Division of Materials Science and Engineering, Hanyang University, Seoul 133-791, Korea

^aDepartment of Hybrid Engineering, Sunmoon University, Asan 336-708, Korea

1. 서 론

2005년 2월부터 지구환경 보호를 위한 교토의정서가 발효되어 CO₂가스 배출을 줄이기 위한 고효율 · 친환경 신기술의 개발이 요구되고 있다. 때문에 산업 전반에서 기존의 화석에너지 사용을 줄이기 위하여, 자동차 및 산업기기들의 핵심 작동 부품들이 고효율 · 친환경 부품들로 바뀌어 가고 있는 추세이다. 그 중에서도 대기오염의 주범인 자동차에서의 변화가 급격한데 2040년까지 하이브리드 및 수소연료 자동차로 교체가 예정됨에 따라 기존에 사용되던 내연기관을 전기에너지를 이용하는 고성능 구동 모터 및 발전기 등으로 대체하기 위한 연구개발이 진행되고 있다. 또한 차세대 자동차에 들어가는 작동모터의 수가 기존의 50~100개에서 100~120개로 증가할 것으로 예상됨에 따라 모터의 핵심부품인 고특성 영구자석의 수요가 더욱 증가할 것으로 보인다[1]. 이런 이유로 현재 생산되고 있는 영구자석 중에서 자기 특성이 가장 우수하여 컴퓨터 관련 제품, 각종 가전제품, 음향기기, 의료용기기를 시작으로 일상생활 및 산업전반에 사용되고 있는 기능성 재료인 Nd-Fe-B 소결자석이 그 대상이 되고 있다. 따라서 본 고에서는 영구자석의 역사에서부터 영구자석의 활용분야를 소개하고 나날이 그 중요성을 더해가는 Nd-Fe-B 소결자석의 제조 및 응용 현황에 대해서 기술하고자 한다.

2. 영구자석의 역사

일반적으로 자성체라 하는 것은 자성을 띠는 것이 가능한 물질을 말하며 이러한 물질에 강한 자장을 걸어 개개의 자성체의 자기방향을 동일 방향으로 정렬시켜 자기 방향이 원상태로 회복하기 어렵게 만든 자석을 영구자석이라 한다. 인류가 처음 자석을 사용하기 시작한 기록은 정확하진 않다. 기원전 천연 자철광(磁鐵礦)을 중국에서 발견한 것으로 생각되나, 나침반 등의 방향을 잡는 용도로 사용된 것은 기원 전 후로 추정된다. 이후 11세기 중국에서 유럽으로 나침반의 원리가 전해지게 된다. 자극의 존재는 1269년 프랑스의 P. 펠레그리누스가 발견하였으나, 전기력과 자기력과의 차이가 명확히 구분된 것은 16세기 말경이며, 영국의 윌리엄 길버트가 자기의 기본현상을 실험적으로 밝혔다. 이후 1820년 덴마크의 외르 스테드가 전류의 자기작용을 발견하였으며, 1831년 영국의 폐러데이가 전자기유도를 발견함으로써 자기현상과 전기현상의 밀접한 관계가 밝혀진 후 전자기학이 성립되었다. 그러나 1800년대 중반까지 거의 대부분이 천연자석을 사용하였으며, 인공자석의 경우도 연철, 탄소강, 크롬강철, 텅스텐강철 등이 사용되었고, 1917년 일본의 혼다 고타로에 의해 KS 강철(Fe-Co-Cr-W)이 발명되어 현대적인 자석의 시초가 되었다[2]. 1983년 일본의 M. Sagawa와 미국의 J. Croat에 의하여 Nd계 희토류 영구자석이 개발됨에

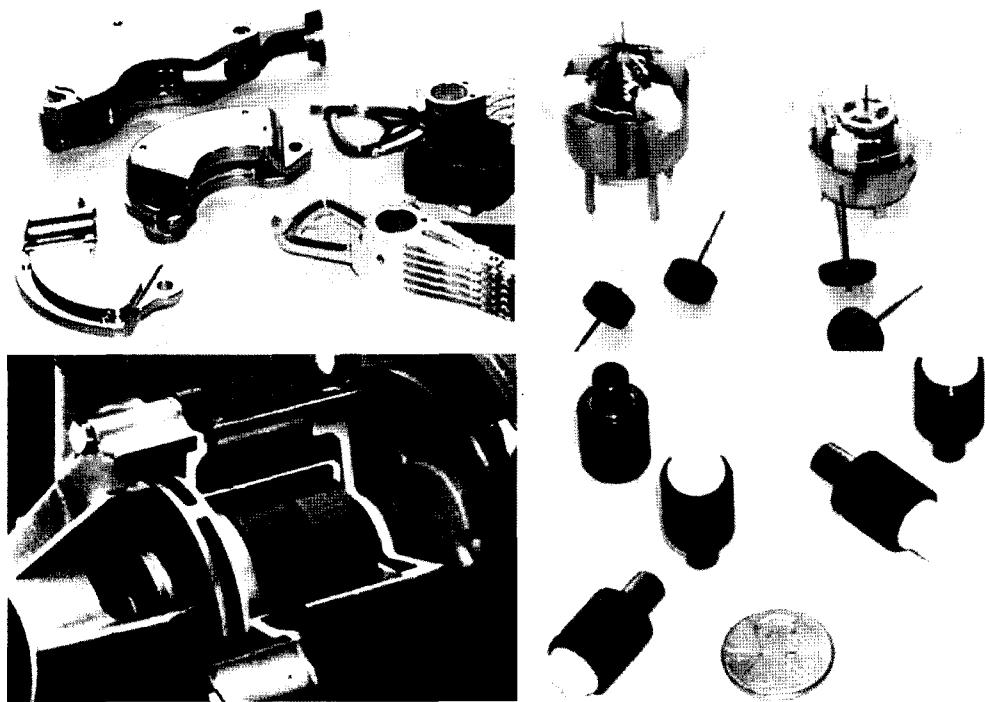


Fig. 1. Examples of rare-earth permanent magnets.

따라 영구자석의 활용성이 높아져 매년 20% 이상의 성장을 보이며 시장이 커지고 있다[3-5].

3. 영구자석의 종류 및 응용

일반적으로 자석은 전자석과 영구자석으로 구분할 수 있으며, 모든 자석은 외부로 강한 자계를 발생하

며, 전자석은 전원이 제거되면 잔류자기가 없어야 하므로 보자력이 (H_c)이 낮고 포화자화 (M_s)가 높은 연자성체가 쓰이고 영구자석은 자계가 오래 남아야 하므로 보자력과 잔류자화 (B_r)이 높은 강자성체를 사용한다. 연자성체의 소재는 규소강, 순철 등이 있으며, 강자성체의 소재는 주조자석, 페라이트 자석, 희토류자석, 기타자석으로 나눌 수 있다. 주조자

Table 1. Applications of various permanent magnets[4]

| 소재 형태 | 재료종류 | 용도 |
|--------------------------|--------------------------------------|--|
| 합금자석 (주조자석) | 알니코(Alnico) | 계측기기, 음향기기, 전력계 |
| | Fe-Co-Cr, Fe-Co-V Cu-Ni-Fe, Mn-Al | 계측기, 전화기, 우주항공기 |
| 희토류자석 (소결 및 본드자석) | Nd-Fe-B계 | 각종 구동모터, Actuator류 (OA, FA, HA용 및 가정용품) 비디오/오디오용 Drive |
| | Sm-Co계 | 고온용 자석 : 특수용도의 기기 (의료기기, 과학장비, 우주항공) |
| 경질 페라이트자석 (소결 및 본드자석) | Ba-ferrite | 각종 소형 구동(AC, DC)완구류 |
| | Sr-ferrite | 산업장비, 오디오/비디오용 Drive |
| 수지 자석 (희토류, 라이트) | 페라이트 고무자석 | 캐스켓용(냉장고, 생활기기 등) |
| | 희토류 고무자석 | 완구류, 문구류, 장식 등 |

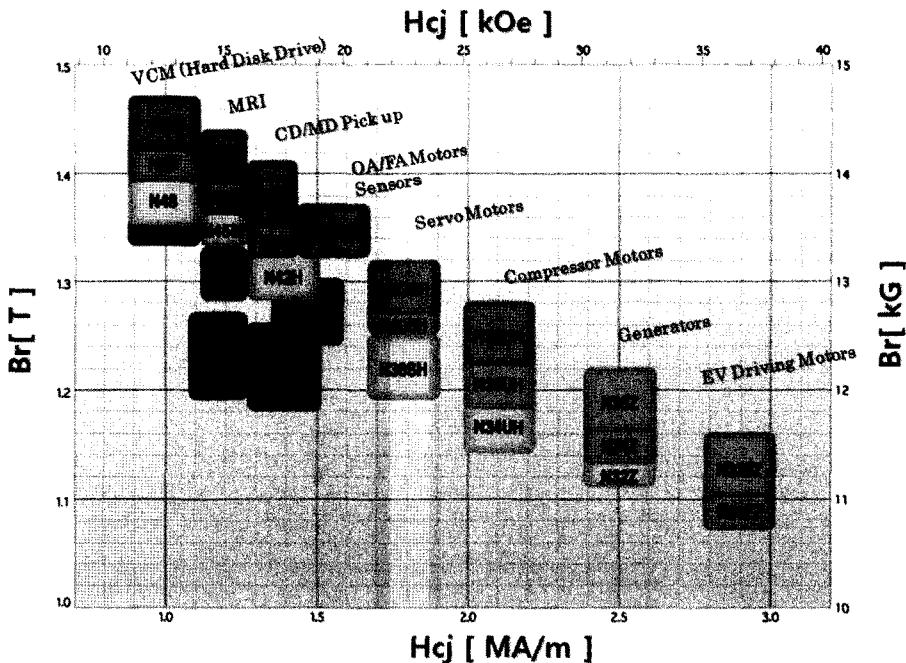


Fig. 2. Magnetic properties and its application fields for Nd-Fe-B permanent magnets[8].

석인 AlNiCo의 경우 큐리온도(T_c)가 높고, 온도안정성이 좋아 희토류 영구자석이 개발되기 이전까지 생산량이 많은 자석 중의 하나였으나 Ni, Co 등 전략 금속의 다량 함유로 인해 희토류 영구자석 개발 이후 그 생산량이 감소하고 있다. 페라이트 자석은 자기 성능 자체는 우수하지 않으나 원료 자원이 매우 풍부하여 가격이 싸다는 장점으로 인해 자동차, 음향 통신, 가전기기 등에 광범위하게 가장 많이 사용되고 있는 영구자석이다. 희토류 자석 중 Sm-Co계 영구자석은 높은 큐리온도와 온도안전성으로 정밀과학기기, 우주항공용으로 사용되고 있으나 희토류 금속 중에서도 가격이 높은 Sm과 전략 금속인 Co로 인해 가격이 매우 비싸 특수분야에서만 사용되고 있다 [3, 6, 7]. Nd-Fe-B계 영구자석의 경우 전략금속이 포함되어 있지 않아 상대적으로 가격이 싸고 그 자기적 성능이 매우 우수하기 때문에 매년 20~30%의 높은 성장률로 시장이 확대되고 있으며 차세대 자동차나 로봇의 정밀 모터 등에 응용이 예상됨에 따라 그 수요가 더 클 것으로 보인다[1-3]. 다음 그림 1과 표 1에 희토류계 영구자석의 종류 및 용도를 나타냈으며, 희토류계 영구자석의 잔류자화와 보자력 특성에 따른 응용제품을 그림 2에, 응용분야에 따른

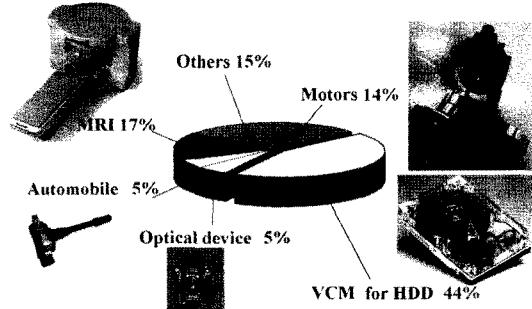


Fig. 3. Market share of Nd-Fe-B permanent magnets[6].

점유율을 그림 3에 각각 표시하였다.

4. Nd계 희토류 소결자석 제조공정

4.1. Nd-Fe-B 원료의 조성 및 합금설계

Nd-Fe-B계 소결자석 재료의 자기 성능은 $Nd_2Fe_{14}B$ 기지상에 의하여 주로 결정된다. 포화자화강도(M_s)와 이방성장(H_A)은 $Nd_2Fe_{14}B$ 상의 화학성분에 크게 영향을 받으며 잔류자화(B_r), 보자력(H_c) 및 자기에너지 적($(BH)_m$)은 미세조직에 따라 좌우되지만 B_r 의 극한값이 M_s 이고 H_c 의 최대값은 H_A , 그리고 최대자기력에

너지적 $((BH)_{\max})^2 / (M_s^2/4\pi)$ 가 때문에 합금 성분의 설계가 매우 중요하다[5]. Nd₂Fe₁₄B의 조성에서 Nd 함량 또는 B 함량이 증가하면 Nd-rich상 또는 B-rich상을 각각 형성하게 된다. Nd-Fe-B 합금 내에 존재하는 Nd-rich상과 B-rich상은 비자성상으로 합금의 포화자화와 잔류자화가 감소하게 되나 보자력 크기 등에 영향을 미치게 되므로 그 최적 함량은 실험을 통하여 결정하게 된다[3].

4.2. 합금의 용해공정

희토류 영구자석 재료를 용해할 때에 가장 중요하게 지켜야 할 것은 성분을 정확히 지키고, 균질하게 용해하고, 이물질이 혼입되지 않도록 하는 것이다. 높은 자화강도를 가지는 영구자석을 제조하기 위해서는 보자력의 감소 없이 Nd량을 최소화하고 전이 금속의 양을 최대화하는 방향으로 합금설계를 하여야 한다. Nd 함량을 감소시키면 Nd₂Fe₁₄B 부피 분율이 증가하고, Nd-rich상의 부피 분율이 감소하기 때문에 자화강도가 높은 자석을 제조할 수 있으나 보자력은 높지 않다. 반대로 Nd 함량을 증가시키면 Nd-rich상이 Nd₂Fe₁₄B 결정립을 둘러싸기 때문에 높은 보자력을 가지게 된다. 또한 Nd-Fe-B 합금 조성에서 α -Fe free 합금스트립을 제조하기 위하여 특수 용해기술을 적용한다. 특수용해공정에서는 용탕주입 온도, 양, 속도 및 훨씬 전속도와 냉각수 온도를 제

어하고, 노즐 형상, 노내의 분위기 등등 여러 가지 공정조건을 최적화 함으로써 α -Fe 생성이 없이 미세 이방구조를 갖는 Nd-Fe-B 합금 스트립을 제조할 수 있다[3, 9].

4.3. 분말 제조공정

우수한 특성의 자석을 얻기 위한 자성 분말의 조건은 다음과 같다. 분말의 크기가 3~4 μm 로 작아야 하고 입도분포가 좁은 범위에 있어야 한다. 또 1 μm 보다 작거나 7 μm 보다 큰 분말이 존재하지 않고 모두 단결정체이어야 한다. 분말이 구형일수록 좋으며 분말의 결정 결합이 가능한 한 적어야 한다. 또한 분말 표면에 흡착된 오염 물질과 기체가 가능한 한 적어야 한다. 이러한 조건을 가장 만족시킬 수 있는 방법 중 한 가지는 jet milling이다. Jet milling은 고속의 제트기류의 진동에 따라 분말과 용기 내 벽 사이에 진동식 충격이 일어나게 하는 것으로 분말을 미세화할 수 있다. 효율도 높고 분말 형상이 구형에 가깝고 표면이 광택을 띠며 결합도 적다. Jet milling으로 분말제조 시 미분(1 μm 이하)과 조분(7 μm 이상)이 제거된 균일한 입도 분포를 가지는 분말을 얻기 위하여 grinding chamber condition(노즐, 분쇄압력), classifier의 구조 및 rpm condition, cyclone 구조 및 각각 chamber 간의 압력분포 제어가 필요하다[3, 4].

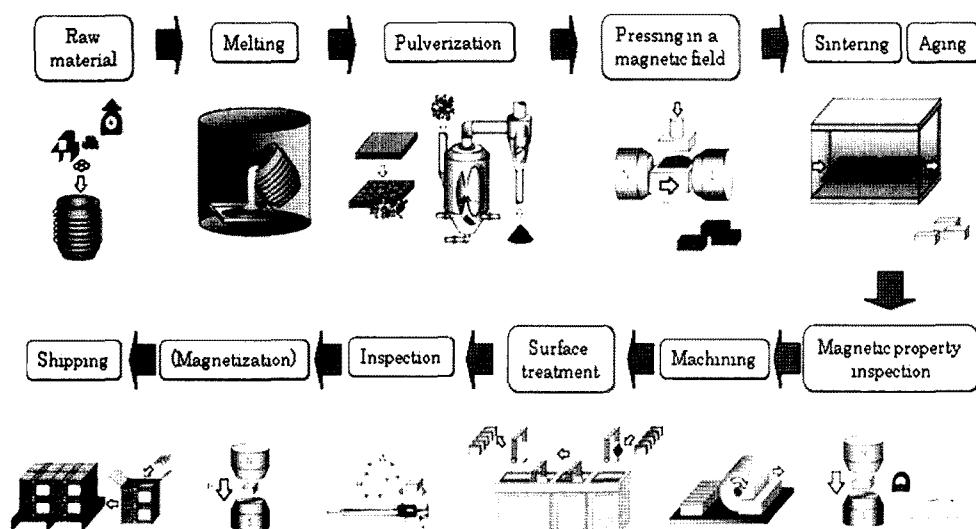


Fig. 4. Fabrication process of Nd-Fe-B permanent magnets[8].

4.4. 분말의 자장성형

자장성형기술은 제조된 이방성 단결정 분말을 일정한 모양의 금형에 균일하게 충진시키고, 10~20 kOe의 자장을 인가하면서 분말의 $Nd_2Fe_{14}B$ 결정의 c-축과 자장방향을 일치시킨 후, 정렬된 분말을 압축하여 성형하는 방법이다. 현재 Nd-Fe-B 소결자석의 자장성형에는 일반적으로 두 가지 형태의 자장성형이 사용되는데, 자장방향과 성형방향이 직각을 유지하면서 성형하는 방법을 직교형 자장성형법(Transverse Die Press; TDP)이라고 하며, 자장방향과 성형방향이 평행을 유지하는 성형방법을 수평형 자장성형법(Axial Die Press; ADP)라고 한다. 통상적으로 직교형 자장성형법은 분말의 이방화 배향이 용이하기 때문에 고성능자석 제조에 사용되고 있으나, 이 성형법은 복잡한 형태로 성형이 불가능하기 때문에 링형상, 디스크형상 등의 복잡한 형태의 자석제조에는 수평형 자장성형방법을 이용하고 있다[3, 4]. 그러나 이 두 방법 모두 분말 이방화율이 90~95%에 불과하기 때문에 최근에는 분말 이방화율을 99% 이상 얻기 위해 습식 자장성형법 및 펄스 자장증축성형 방법과 같은 새로운 개념의 자장성형방법이 개발되어 적용 단계에 있다.

4.5. 소결 및 열처리

Nd-Fe-B계 자석의 소결은 기본적으로 액상소결을 이용한다. Nd-Fe-B계 자성 성형체의 Nd-rich상은 주

상의 결정립 표면에 부착되어 있거나 내부 또는 독립적으로 존재할 수 있는데 이는 주조 상태의 조직과 밀접한 관계가 있다. 자장 중에 이방화된 분말성형체는 950°C부터 Nd-rich상이 용융되고 액상의 유동에 의하여 소결체는 신속하게 치밀화되기 시작하여, 1000~1100°C의 온도범위에서 치밀화가 완료된다. Nd-Fe-B 분말이 산소와 반응하게 되면 액상소결에 필수적인 Nd-rich상의 부족현상이 발생하여 소결치밀화에 어려움이 생기게 되므로 전 제조공정에 대하여 산소오염을 최대한 억제하는 것이 중요하다 [3, 4, 9, 10]. 소결 후 보자력의 향상을 위하여 500~600°C 온도 구간에서 열처리하는데, 이와 같은 열처리에 의하여 Nd-rich상의 Fe 함량을 감소시킬 수 있고, Nd-rich상도 보다 완벽하게 비자성화하여 보자력을 더욱 증가시킬 수 있다.

5. 희토류 영구자석의 성장성

현재 상용 Nd-Fe-B계 소결자석의 자기에너지적은 이론 최대값인 509 kJ/m^3 (약 64 MGOe)의 80~95%정도이며, 특히 구동모터용 영구자석의 중요한 특성인 보자력의 경우 6368 kA/m(약 80 kOe)인 이론 최대치에 비해 20~50% 전후 밖에 개발되어 있지 않기 때문에 그 성능의 개선 잠재력이 매우 크다. 또한 그림 5에서 나타낸 바와 같이 희토류 금속의 수요 및 공급량은 해마다 증가하고 있으며 이 중에서

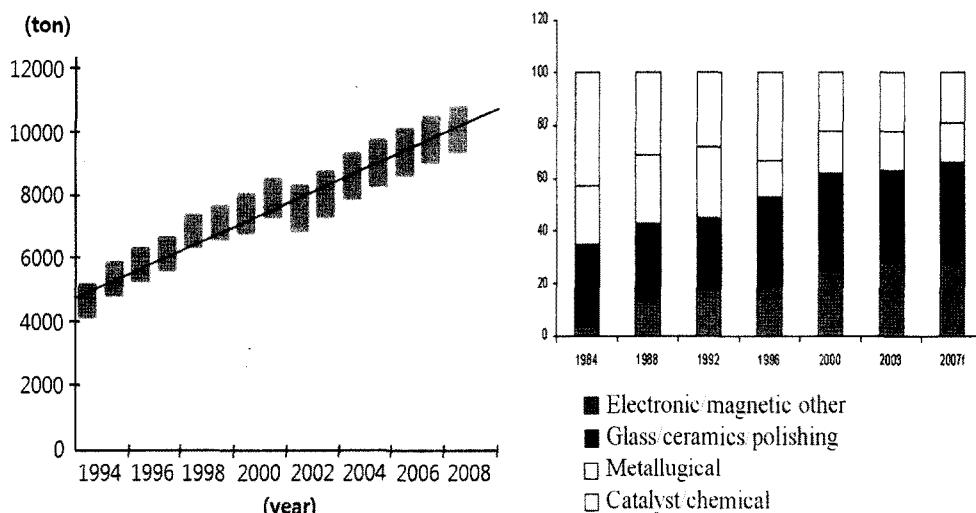


Fig. 5. Consumption and share of rare-earth metals[10].

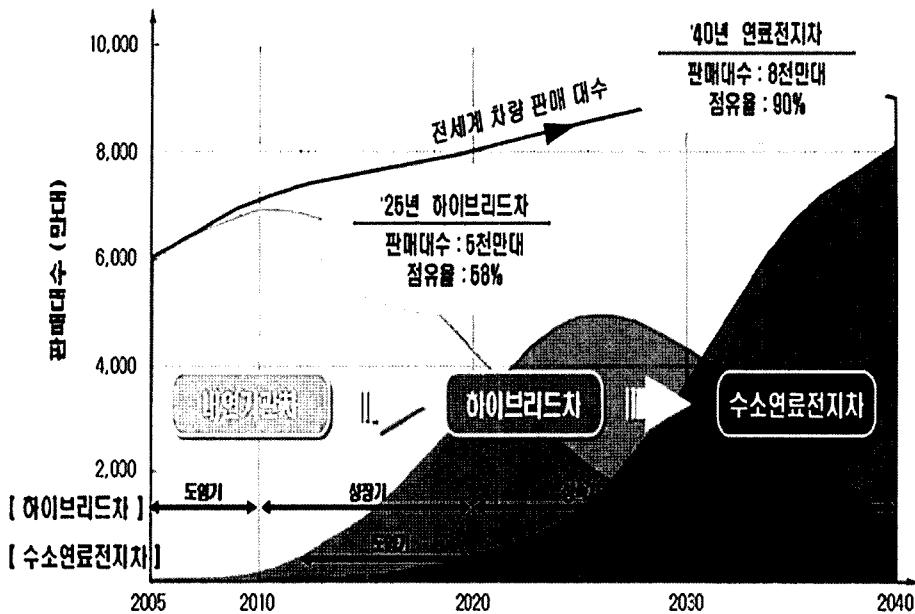


Fig. 6. Market growth prediction of next-generation cars[1].

Table 2. Market growth of Nd-Fe-B permanent magnets[4]

| 구분 | 2001 | 2003 | 2005 | 2007(예상치) | 2010(예상치) | 연평균 성장률(%) |
|-----------|---------|--------|--------|-----------|-----------|------------|
| Nd계 희토류자석 | 세계(억 원) | 30,000 | 43,200 | 62,200 | 89,500 | 154,800 |
| | 국내(억 원) | 1,500 | 2,300 | 3,600 | 7,200 | 14,000 |

도 자성재료로서의 점유율도 크게 증가하고 있는 추세로서 희토류계 영구자석에 대한 시장 수요량이 1985년 50톤이던 것이 1996년 6050톤으로 증가하였으며, 그림 6에서처럼 2040년까지 하이브리드/수소연료 자동차의 보급이 이루어지고 로봇 산업의 급격한 성장에 따라 10만톤 이상으로 증가할 것으로 예상된다[11]. 이러한 잠재적 성능개선 가능성 및 지속적인 성장에 힘입어 현재 희토류계 영구자석의 온도 안정성, 작동온도, 내식성 개선을 위한 공법, 기술, 설비 등의 보완 및 개발이 이루어지고 있는 상황이다[1, 3, 4, 6, 12]. 표 2에는 Nd-Fe-B 영구자석의 시장 규모를 나타내었다.

6. Nd-Fe-B 소결자석의 기술동향

1983년 M. Sagawa[5]에 의해 최대자기에너지적 35 MGoe의 Nd계 희토류자석이 개발된 이후 일본,

미국, 유럽 중심으로 활발한 연구가 진행되어 왔다. 특히, 최근 수년 전부터는 에너지절감 및 환경친화형 분위기가 세계적으로 중요한 이슈로 부각되면서 하이브리드/수소연료 자동차의 구동모터 내지는 발전기용으로 희토류계 영구자석에 대한 관심이 높아지고 있다.

일본의 Sumitomo 특수금속에서는 최대자기에너지 적을 높이기 위한 많은 공정기술을 개발해 왔다. 예를 들어, 출발합금을 ingot으로 만드는 대신 strip casting으로 만들어 합금조직의 미세화, 균질화 및 이방화하는 기술을 오래 전에 개발했으며, 최근에는 보다 높은 수준의 불순물 제거와 미세조직 제어를 위하여 미소 무중력응고프로세스라는 새로운 제조 공정까지 고안되어 상용화 단계를 위한 연구개발이 진행 중이다[3]. 성형기술에서도 자장성형과정에서 분말의 이방화율을 극대화하기 위하여 펄스자장성형기술, 습식자장성형기술, RIP(Rubber Isostatic Pressing)

혹은 CIP(Cold Isostatic Pressing) 등을 이용하여 펄스자장정렬과 동방압축 기술을 접목하는 제조공정 개발도 꾸준히 진행 중에 있다.

미국에서는 정부기관에서 AMPS program으로 산·학·연을 지원하여 산업체로 하여금 고특성 희토류 자석 제조기술을 개발[13, 14]하도록 하고 있는데, ingot casting에서 strip casting으로, 그리고 보다 개선된 jet milling system을 채용하여 실험실에서 52 MGOe, 생산에서 48 MGOe까지의 소결자석을 만들고 있고 조직 이방화 기술의 향상을 위해 활발한 연구가 진행 중에 있다. 또한 Magnequench사는 일본의 Daido steel사와 함께 melt-spinning법으로 제조한 비정질 분말 재료를 대형의 금속 캔 속에 장입하고 이를 약 750°C의 온도에서 die-upsetting하여 이방성을 부여한 후 다시 분쇄하여 이방성 분말로 가공하여 초고성능의 자성분말을 제조하는 기술을 공동 개발 중이다.

한편 Nd-Fe-B 소결자석의 고온 특성을 개선하여 약 200°C 정도의 작동온도에서도 사용이 가능하도록 보자력을 향상시키기 위한 연구도 꾸준히 진행되어 왔다. Sumitomo 특수금속에서는 보자력이 1.4~1.6 T에 이르면서도 $(BH)_{max}$ 가 각각 48, 46 MGOe에 이르는 소결자석을 개발, 생산하고 있다. 최근에는 일본을 중심으로 하이브리드 자동차의 구동모터에 적용하기 위해 보자력과 온도 특성을 향상시키기 위한 연구개발이 활기를 띠고 있으며, 도요타 자동차에서는 최대자기에너지적과 보자력의 합($(BH)_{max} + H_c$)이 64 MGOe+kOe에 이르는 자석을 하이브리드 자동차의 생산에 적용하고 있다. 일본에서는 이와 같이 각종 고성능, 정밀 모터에 적용하기 위한 고특성 자석의 개발에 더욱 박차를 가하고 있다.

국내의 경우 1990년대 이후 정부 및 민간 사업 등을 통해 연구개발을 진행해 왔으나 Nd-Fe-B 영구자석 물질특허의 제한, 90년대 후반의 IMF 등의 문제 등으로 인해 기술적인 면에서 일본, 미국 등에 비해 약간 뒤쳐져 있다. 희토류 소결자석에 대한 연구는 LG금속, 대우중공업, 삼성전기, 쌍용, 자화전자 등의 업체 중심으로 진행되어 왔었으나, IMF 사태로 인하여 여러 업체에서는 Nd-Fe-B 소결자석에 관한 연구를 중단했고 현재 자화전자가 연구를 계속하고 있다. 현재까지 연구실 수준에서 자장 중 성형 기술에 의해 37 MGOe-30 kOe 수준의 자석을 제조할

수 있다고 보고되고 있다. 그리고 특수용해를 위한 급속냉각기술에 대한 원천기술은 일정 수준 확보되어 있으나, 고온 안정성 및 고배향 치밀화 기술의 경우 아직 경험 부족으로 인하여 선진국 대비 기술적으로 취약한 상태이다. 구체적인 연구개발 사례를 보면, 반도체 장비에 활용되는 리니어모터용 자석개발, LCD/PDP 이송장치용 magnetic gear 개발, 서보모터용 래디얼 소결자석 개발, 자장압축/사출성형 기술에 의한 이방성 본드자석 개발 등을 들 수 있으며, 주로 반도체/FPD 사업, 로봇사업, 정밀기기사업 등을 목표로 개발이 진행되어 왔다.

7. 결론 및 향후 전망

Nd계 희토류 영구자석의 경우 25년의 짧은 역사를 가지고 있으나 그 자기적 특성이 매우 우수하기 때문에 산업·가전·의료분야 전반에서의 수요가 매우 빠르게 증가하고 있다. 또한 최근 하이브리드 자동차가 일본의 주도로 시장에 출현하고 있으며 석유에너지난으로 인하여 더욱 주목을 받고 있다. 현재 일본을 주도로 국제적으로 요구되는 특성에 따라 온도안정성 및 보자력 등의 다양한 특성의 영구자석 제조 등의 연구가 진행되고 있다. 따라서 국내의 자성 분말 연구자 및 업체에서도 관심을 가지고 미래에 대비한다면 장기적으로 일본의 고급형 소결자석 시장과 중국의 양산형 소결자석 시장의 틈새에 끼인 국내시장 환경을 개선하고 나아가 해외시장에서도 새로운 돌파구를 만들 수 있을 것으로 기대된다.

감사의 글

이 연구는 2008년도 지식경제부 지원의 소재원천 기술개발사업에 의하여 수행되었습니다.

참고문헌

- [1] Automative World Car Industry Forecast Report, Global insight (2004).
- [2] Tomas L. Hankins: Science and the Enlightenment, Cambridge University (1985).
- [3] 周壽增: 초강력 영구자성체, 울산대출판부 (2002).
- [4] 전기전자부품부문 산업분석, 산업자원부 (2002).
- [5] M. Sagawa, J. F. Fujimura and R. W. Lee: J. Applied

- Physics, **55** (1984) 2083.
- [6] R. Skomski: Journal of Physics Condensed Matter, **15** (2003) R841.
- [7] J. M. D. Coey: Journal of Magnetism and Magnetic Materials, **248** (2002) 441.
- [8] www.shinetsu-rare-earth-magnet.jp.
- [9] M. J. Kramer, L. H. Lewis, L. M. Fabietti, Y. Tang, W. Miller, K.W. Dennis and R. W. McCallum: Journal of Magnetism and Magnetic Materials, **241** (2002) 144.
- [10] S. C. Wang and Y. Li: Journal of Materials Science, **40** (2005) 3853.
- [11] 비철금속 업종-희유금속 품목, 비철금속협회 (2007).
- [12] D. Brown, B.-M. Ma and Z. Chen: Journal of Magnetism and Magnetic Materials, **248** (2002) 432.
- [13] M. Zeraoulia, M. E. H. Benbouzid and D. Diallo: IEEE Transactions on vehicular technology, **55** (2006) 1756.
- [14] C. C Chan and Y. S. Wong: Electric Vehicles Charge Forward, IEEE Power & Energy Magazine, (2004) 24.