

Sm-Fe-N 계 희토류 본드자석의 연구개발 동향

이정구* · 곽 훈 · 최철진 · 윤준철^a · 이재성^a

한국기계연구원 부설 재료연구소 기능재료연구본부

^a한양대학교 공과대학 금속재료공학과

Trend in Research and Development Related to Sm-Fe-N Bonded Magnets

Jung Goo Lee*, Hun Kwak, Chul Jin Choi, Joon Chul Yun^a and Jai Sung Lee^a

Functional Materials Division, Korea Institute of Materials Science,

531 Changwondaero, Changwon 631-831, Korea

^aDepartment of Metallurgy and Materials Science, Hanyang University,

1271 Sa-3-dong, Sangnok-gu, Ansan 426-791, Korea

1. 서 론

20세기는 생산활동을 생활거점으로 하는 ‘경제의 세기’이었다면 지금부터 우리가 지향하는 21세기는 ‘환경중시의 세기’이다. 이것은 자동차, 전기제품, 주택 등에서 쾌적함과 풍요로움을 추구하는 가치관보다 환경과의 양립성을 중시한 환경조화형의 가치관으로 변하고 있는 것을 의미한다. 따라서, 앞으로는 에너지 효율의 관점에서 모든 재료와 시스템을 설계 제작하여, 유한 에너지를 얼마나 유효하게 이용하는가가 중요하다. 에너지의 유효 이용과 관련하여 영구자석 재료의 고효율·고성능화는 연구자들에게 해결해야 할 필수불가결한 과제가 되었다. 최근 높은 발전효율의 이점에서 빠르게 진행되고 있는 고성능 연료전지가 개발되어도 전기로 구동하는 모터의 효율이 좋지 않으면 혁신적인 환경 변화는 기대하기 힘들 것이다. 특히, 희토류 영구자석은 종래의 알니코, 페라이트자석보다 자기 특성이 월등히 우수하여 에너지 절약, 지구 온난화 방지에 크게 공헌할 수 있기 때문에 자동차, 가전제품, IT기기 등으로 그 용도가 점차 확대되고 있다. 나아가 미래형 자동차, 지능형 로봇, 정밀의료기기, 지능형 정보가전 등 차세대 성장동력 산업에서도 고효율고성능 자성소재와 그 응

용부품이 더욱 중요한 위치를 차지하게 되면서, 그 수요가 급격히 증가할 것으로 예상된다. 하지만 아직 국내에서는 자성소재와 부품 대부분을 수입에 의존하고 있는 실정이며, 그 이유는 저급 범용소재를 제외하고는 출발원료부터 국내 생산이 없고, 거의 모든 제품의 설계 및 공정이 일본, 미국 등 선진국 기술을 담습하는 수준에 있기 때문이다. 또한 현재 자성소재와 관련하여 중국과 BRICs 국가들이 기술경쟁력을 빼르게 확보하고 있고 일본과 같은 선진국들은 기술공개를 기피하고 있어, 국내 자성소재 분야의 nutcracking 현상이 가속화되고 있다. 이는 향후 우리나라의 무역수지 개선에 큰 걸림돌이 될 것으로 예상되어 이 분야의 적극적인 연구개발이 절실한 실정이다.

일반적으로 자석은 합금화한 자성분말을 결합해 만드는데, 크게 나누면 소결자석과 본드자석으로 나눌 수 있다. 소결자석은 자성분말을 고온에서 소결해 만든다. 그 때문에 치밀한 자석이 되는데 비해, 본드자석은 자성분말을 수지로 경화시킨 것으로 자성체는 분말 상태로 남아 있으며, 분말 사이를 수지가 채우고 있는 형태이다. 그 때문에 같은 양의 자성분말을 사용해도, 소결자석이 본드 자석보다 높은 성능을 발휘한다. 그럼에도 불구하고 산업적으로 본드자석의

*Corresponding Author : [Tel : +82-55-280-3606; E-mail : jglee36@kims.re.kr]

사용은 더욱 늘어나고 있는 실정이다. 특히, 빠른 속도로 발전하고 있는 하드디스크, 휴대전화, 디지털 카메라와 같은 전기전자기기의 소형화, 경박화 및 고기능화와 더불어 그 중요성이 한층 강조되고 있다. 대표적인 희토류 자석인 Sm-Fe-N계 자석은 그 자기특성과 내구성이 매우 우수하여 현재 Nd-Fe-N계 자석을 대체할 수 있는 유일한 자석으로 알려져 있다. 본고에서는 그러한 Sm-Fe-N계 희토류 본드자석의 연구개발 동향에 대해서 기술하고자 한다.

2. 희토류 영구자석의 특징

현재 많이 사용되고 있는 영구자석을 재료와 자석제조방법의 관점에서 분류한 것을 표 1에 나타내었다.

자석물질이 실제 제품에 사용되기 위해서는 다음과 같은 3가지 특성이 요구 되어진다.

1) 높은 포화자화 (M_s) : 포화자화가 높다는 것은 높은 잔류자속밀도 (B_r)의 필요조건이다. Fe원자는 원자자석의 세기가 $2.2 \mu_B$ 로 천이금속 중에서 가장 높기 때문에 Fe의 함유량이 많을수록 포화자화가 크다. 또한, 원자자석이 폐로자성적으로 배열하면 포화자화가 커진다. 희토류원소는 일반적으로 자기모멘트가 크지만 Fe 또는 Co와 합금화해서 폐로자성을 나타내는 것은 Pr, Nd, Sm 등의 경희토류로 불리는 원소뿐이다.

2) 높은 보자력 (H_c) : 영구자석이 모터 부품 등에 사용될 때, 자석에는 구조상 자속밀도를 저하시키는 자계(감자계)가 작용한다. 다시 말해서, 자기이력곡선의 제2사분면의 조건에서 동작한다. 보자력이 크면 큰 감자계가 작용해도 영구자석으로서의 특성 저하가 그만큼 적게 된다. 물질의 이론적 보자력을 결정하는 것은 자속밀도가 포화하는 자계의 크기가 결정의 방향에 따라 다른 정도를 나타내는 이방성자계 (H_A)이다. 보자

력은 이방성자계에 비례한다. 이방성자계는 일반적으로 결정구조가 정방정과 육방정 등의 물질에서 크다.

3) 높은 큐리온도 : 영구자석은 원자자석의 방향이 한 방향으로 배열되어 있지만 온도가 상승 함에 따라 점차 불규칙하게 되어 큐리온도 (T_c)라고 불리는 온도에서는 배열이 완전히 무질서한 상태로 된다. 일반적으로 자동차 엔진룸의 온도는 130°C 정도 되기 때문에 큐리온도가 충분히 높지 않으면 실제 사용시 설계상의 특성이 발휘되지 못할 수 있다. 희토류와 Co의 이원계 금속간화합물의 큐리온도는 높지만, 희토류와 Fe의 이원계 금속간화합물의 큐리온도는 낮다. B과 N등의 제3의 원소를 첨가하는 것도 큐리온도를 높이기 위함이다. 대표적 희토류 자석의 기본적 자기특성을 표 2에 나타내었다.

그리고 현재 상용화 되어 있는 영구자석의 최대에너지 ((BH_{\max})과 보자력을 그림 1에 나타내었다.

그림 1에서 알 수 있는 것처럼 현재 상용화 되어 있는 영구자석 중에서 Nd-Fe-B계 소결자석이 최고의 자기적 특성을 나타내는 것을 알 수 있다[4]. 그림 2에는 영구자석의 세기를 쉽게 이해하기 위해 현재 상용화 되어 있는 같은 크기의 3가지 종류의 자석의 세기를 비교한 예를 나타내었다. 원통 안에 있는 원기둥 모양의 것이 영구자석으로 Nd-Fe-B계 자석이

Table 2. Magnetic properties of rare-earth permanent magnets [2]

합금	자기특성	M_s (T)	K_u (MA/m)	T_c ($^{\circ}\text{C}$)	합계(BH_{\max} (KJ/m ³))
SmCo ₅	1.14	11-20	727	259	
Sm ₂ Co ₁₇	1.25	3.2	920	311	
Nd ₂ Fe ₁₄ B	1.60	4.5	313	509	
Sm ₂ Fe ₁₇ N ₃	1.57	21	474	490	

Table 1. Classification of permanent magnets [1]

자성재료	제조방법	본드				소결	주조	기타
		압축	사출	압출	압연			
희토류	NdFeB계	○	○	○		○		○
	SmCo(2-17계)	○	○			○		
	SmCo(1-5계)		○			○		
	SmFeN계	○	○	○				
페라이트		○	○	○	○	○		
알니코·FeCrCo계		○				○	○	

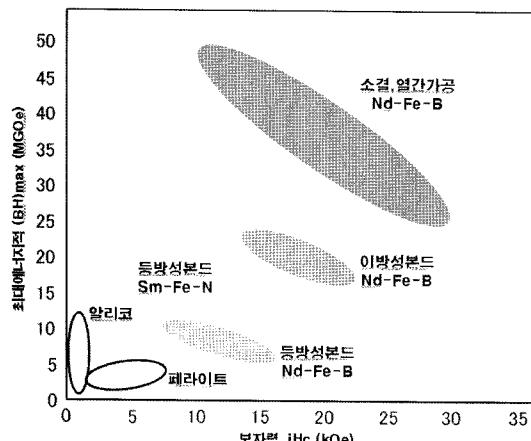


Fig. 1. Magnetic properties of commercial rare-earth permanent magnets [3].

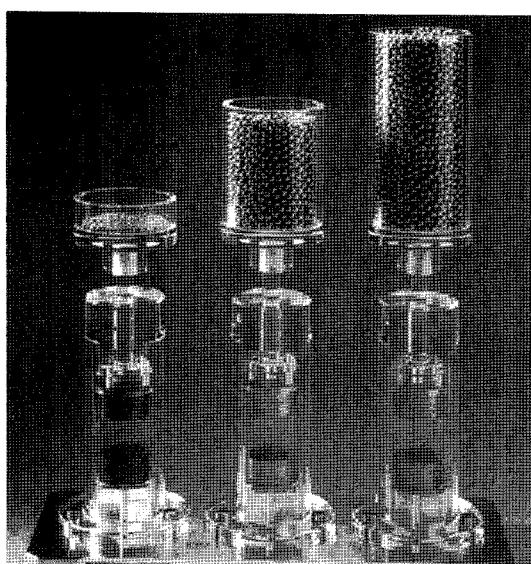


Fig. 2. Comparison among three typical commercial permanent magnets. Ferrite, Sm-Co, Nd-Fe-B magnet (from right).

Ferrite자석에 비해 자력이 얼마나 강한지를 정성적으로 쉽게 이해할 수 있다.

3. 희토류 본드자석의 장점, 종류 및 용도

위에서도 기술하였지만 일반적으로 소결자석이 우수한 자기적 특성을 나타내지만 그 일반적인 제조방법이 주조법과 분말소결법으로 연삭과 연마의 공정이 필요하다. 자석의 재질이 경하고 츄성이 강하기

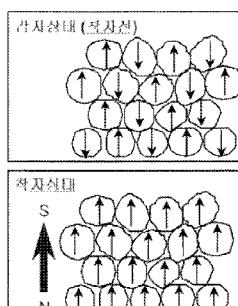
때문에 연삭, 연마 등의 제조 비용이 비싸다. 또한 연삭, 연마로는 복잡한 형상 또는 얇은 제품을 만들기 힘들기 때문에 생산효율도 낮아진다. 소결자석의 이러한 결점을 개선하기 위해 등장한 것이 본드자석이다. 본드자석이란 자성분말을 고무나 폴리스틱 등의 결합제와 혼합하여 사출성형 또는 압축성형 한 것이다. 제품의 형상에 의해 사출성형과 압축성형을 적절히 사용하지만 분말 함유율이 높은 압축성형자석이 보다 높은 자기적 특성을 나타낸다. 본드자석은 나일론 등의 수지와 고무를 2~15 wt.% (체적으로는 25~50%) 포함하고 있기 때문에, 자기특성은 그만큼 나빠지게 된다. 그러나 본드자석은 소결자석과 비교해 다음과 같은 장점을 있다.

- 1) 대량생산이 적합하다.
- 2) 균열이나 결함 등이 없어 내충격성이 뛰어나다.
- 3) 형상과 치수에 자유도가 있다.
- 4) 절삭가공이 용이하다.
- 5) 일체성형이 가능하다.
- 6) 자성분말의 이용 효율이 좋다.
- 7) 다극 차자가 가능하다.

그 중에도 희토류 본드자석은, 고자력과 형상자유도를 겸비하고 있기 때문에 경박 링 자석을 중심으로 정보·통신분야의 소형모터 용도를 중심으로 계속해서 시장을 확대해 왔다. 대표적인 희토류 본드자석에는 Sm-Co계, Nd-Fe-B계, Sm-Fe-N계 종류가 있다. 한편 본드자석은 일반적으로 자성분말의 결정방향의 분포가 등방적이지만 성형시 자계를 가하면 이방성 본드자석이 되어 등방적으로 제작된 소결자석에 필적하는 자기특성을 가지게 된다. 독자의 이해

이방성(Anisotropic)자석

자성분말의 NS방향이 한 방향으로 배열됨



동방성(Isotropic)자석

자성분말의 NS방향이 무질서하게 배열됨

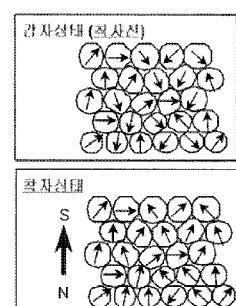


Fig. 3. Schematic illustration of anisotropic and isotropic magnet [3].

를 둡기 위해 그림 3에 이방성자석과 등방성자석을 도식적으로 나타내었다.

현재 희토류 본드자석 시장의 대부분은 등방성 Nd-Fe-B자석이 차지하고 있다. 그림 3에서도 알 수 있듯이 등방성 본드자석은 이방성 본드자석에 비해 자력면에서는 뛰어나지만 생산성이 높고 착자페인을 자유롭게 선택할 수 있기 때문에 실제로 많이 사용되고 있다. 등방성 Nd-Fe-B계 본드자석은 최근 10년 동안에 약 50%정도의 최대에너지적의 향상이 달성되었지만, 현재 Nd-Fe-B계 자성분말 제조기술 및 본드자석 성형기술의 완성도는 매우 높다고 판단된다. 따라서 이 자기특성을 크게 향상시키는 것은 쉽지 않은 것으로 생각된다. 이후 보다 소형화, 고기능화 및 저소비전력화와 저가격화 등 시장의 새로운 요구가 예상되어 희토류 본드자석의 자기특성 향상과 내식성, 내열성 등의 자석의 고기능화 그리고 비용 저감 등의 특성개선이 요구되고 있다. Sm-Fe-N계 자석은 Nd-Fe-B계 자석과 동등이상의 기본 자기특성을 가지며, 큐리온도가 높고 내식성도 뛰어나기 때문에 고성능·고신뢰성의 본드자석이 가능하다고 알려져 있다.

4. Sm-Fe-N 계 자석의 개요 및 응용

Sm-Fe-N자석은, 1990년 Ireland의 Coey가 미국의 Carnegie-Mellon University에서 개최된 International Workshop on Rare-Earth Magnets and Their Application에서 처음 발표하였지만, 일본은 이보다 앞선 1987년 이미 Asahi Kasei와 Hitachi Metals사에서 개발을 진행하고 있던 자석이었다. $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 화합물의 자기특성은 표 1에 표시한 것처럼 포화자화, 이방성자계가 자석용 희토류 화합물로서는 최고수준이고, 큐리온도도 Nd계 자석보다 높다. Sm-Fe-N계 자성분말은, 이후에 설명하겠지만 환원화산법이나 용해주조법에 의해 얻어진 Sm-Fe계 모합금 분말을 N_2 , $\text{N}_2 + \text{H}_2$, NH_3 , $+ \text{H}_2$ 혼합가스 등의 분위기하에서 가열질화처리에 의해 제조되어진다[5-8]. 이렇게 얻어진 화합물을 600°C 이상으로 가열하면 상 분해가 일어나기 때문에 고온 소결에 의한 치밀화가 힘들어 현재로는 대부분 본드자석에 이용되고 있다. 지금까지 발표된 Sm-Fe-N계 자석으로는 $\text{Th}_2\text{Zn}_{17}$ 형 결정구조를 가지는 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 화합물을 주상으로 하는 것과 TbCu_7 형 결정구조를 가지는 SmFe_7N_x 계 화합물을 주상으로 가지는 것이

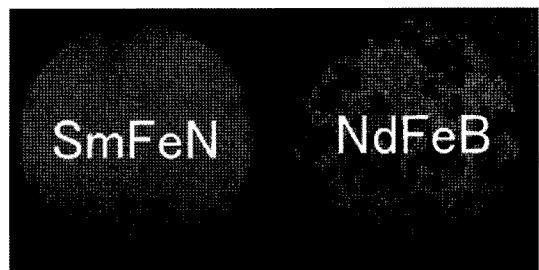


Fig. 4. Corrosion resistance test of bonded magnets (80°C, 95% RH, 24h, no surface treatment) [9].

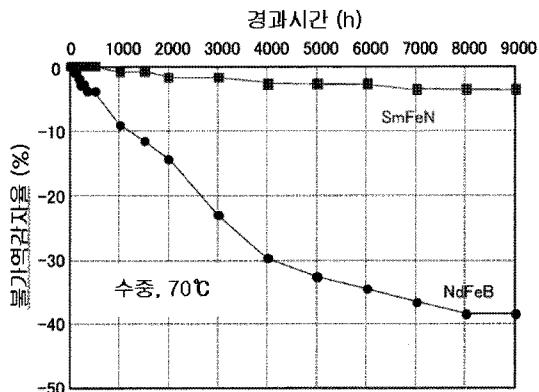


Fig. 5. Thermal resistance test of bonded magnets (70°C, water, no surface treatment) [9].

있다. Sm-Fe-N계 본드자석이 실제 응용면에서 Nd-Fe-B계 본드자석보다 유리한 점은, 위에서도 언급하였지만 내식성과 내열성이 매우 우수하다는 점이다. 그림 4는 80°C, 95%상대습도의 환경시험에서 Nd-Fe-B계 본드자석은 24시간 후에 녹이 발생하지만, Sm-Fe-N계 본드자석은 녹슬지 않는 것을 보여주고 있다.

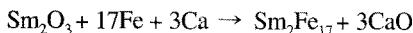
그림 5는 본드자석을 70°C의 온수 중에서 유지시간에 따른 불가역감자율을 나타내고 있다. Nd-Fe-B계 본드자석은 점차로 감자되어 하지만, Sm-Fe-N계 본드자석은 매우 느리게 감자되어 가는 것을 알 수 있다. 이처럼 우수한 자기특성과 내열, 내식성 때문에, OA · 통신기기용 소형모터, 센서와 자동차 · 수중펌프용 소형고출력 모터 등의 용도전개가 기대된다.

5. Sm-Fe-N 계 본드자석의 제조공정

5.1. Sm-Fe 모합금 제조방법

Sm-Fe 모합금은 주로 환원화산법과 용해주조법에 의해 제조된다. 환원화산법(Reduction and Diffusion

Method : RD법)이란, 희토류산화물을 Ca을 이용하여 환원시킨 다음 다른 금속으로 화산시켜 합금을 얻는 방법으로 SmCo₅ 합금의 제조를 위해 General Electric 사에 의해 개발된 방법이다. 먼저 Sm₂O₃ 분말과 Fe 분말을 입상의 Ca과 충분히 혼합하여 Ar 등의 불활성 가스 분위기하에서 약 1,100°C로 가열한다. 그러면 Sm₂O₃은 Ca에 의해 환원되어 Sm 혹은 Sm-Ca 용체를 형성하고, 이것이 Fe 안으로 확산하여 Sm-Fe 합금이 된다. Sm₂Fe₁₇ 합금제조는 다음과 같은 반응이 일어난다.



실제 제조에는 반응 당량보다 많은 Sm과 Ca을 투입한다. 그리고 Fe 분말의 일부를 Fe₂O₃로 투입하는 경우도 있다. 이것은 Fe₂O₃가 Ca에 의해 환원될 때 발생하는 열에너지를 이용하여 반응을 더욱 균일화 하려는 의도이다. 이렇게 얻어진 반응 생성물은 Sm₂Fe₁₇을 주상으로 하는 Sm-Fe 합금분말과 CaO 및 미반응의 Ca으로 된 다공질의 소결체로 되어 있다. 이것을 물속에 투입하면 CaO와 미반응의 Ca는 물과 반응하여 Ca(OH)₂로 되어 슬러리 상으로 뿜어진다. Sm-Fe 합금분말은 Ca(OH)₂비해 비중이 크기 때문에 침전되기 쉽다. 이러한 수세공정의 반복으로 Ca(OH)₂는 분리 제거된다. 이것을 전조하면 분말상의 Sm₂Fe₁₇ 합금을 얻을 수 있다. 이러한 환원화산 법은 용해주조법에 비하여 다음과 같은 장점이 있다.

이렇게 얻어진 분말은 주괴를 분쇄하여 얻어진 분말에 비해 입도가 균질하고 보다 구형이다.

환원화산법에 사용되는 Sm₂O₃은 증류공정에 의해 얻어지는 금속 Sm보다 훨씬 저렴하다.

Sm₂Fe₁₇ 화합물의 포정온도 이하에서 화산시키는 것과 적절한 크기의 Fe 분말의 선택에 의해 Sm의 확산거리를 어느 정도 제어 가능하기 때문에 잔류 α-Fe 상이 없는 단상합금을 쉽게 제조할 수 있어, 용해주조법에서 필요한 균일화 열처리가 필요 없다.

Sm₂Fe₁₇ 합금이 직접 분말형태로 얻어지기 때문에 질화 전의 파쇄공정이 필요 없다.

이러한 장점 때문에 용해주조법에 비하여 제조 비용이 훨씬 저렴하다.

5.2. 질화공정

Sm₂Fe₁₇ 상에 질소 원자를 도입하는 질화공정에서

는 균일한 Sm₂Fe₁₇N₃상을 얻는 것이 중요하다. 질화는 주로 N₂, N₂+H₂, NH₃+H₂ 혼합가스 등의 분위기하에서 이루어진다. 그리고 분말 중의 질소농도 분포를 균일화 하기 위해 질화 열처리 후 Ar 가스 분위기에서 어닐링을 한다. 그리고 질소원자의 확산 거리를 고려하면 투입하는 Sm₂Fe₁₇ 모합금 입도분포가 좁은 것이 질화시간을 제어하기 쉽다. 일반적으로 질화처리에 의해 분말표면에는 작은 균열이 생기고 질화 전에 비해 약간 각형이 된다. 이것은 질화에 의한 부피팽창에 기인한다고 생각되어 진다.

5.3. 미분쇄공정

보자력을 높이기 위해서는, 질화공정에 의해 얻어진 수십 μm 크기의 분말을 제트밀링이나 볼밀링에 의해 평균입도를 단자구 크기인 2~3 μm 정도로 미분쇄 해야 한다. 이때 높은 자기특성을 얻기 위해서는 특히 다음과 같은 점에 유의해야 한다.

미분쇄 후의 입도분포 : 보자력을 입도의 존성이 있는 Sm₂Fe₁₇N₃ 화합물 분말은, 입도를 균질하게 하여 보자력 분포를 좁게 하는 것에 의해 감자곡선의 각형성을 높일 수 있다.

분말끼리의 응집제어 : 이방성 본드자석의 제조공정에서는 자계를 인가한 상태에서 분말의 자화용이방향으로 배향시킨다. 이때 분말끼리 강하게 응집해 있으면 배향도가 높아지지 않고 자석의 잔류자속밀도와 각형성을 저하한다.

핵생성 사이트 제어 : 분말이 핵생성형 보자력기구를 가지기 때문에 역자구의 핵이 될 수 있는 장소를 분말에 만들지 않는 것이 필요하다. 예를 들어, α-Fe 등의 연자성 석출물과 균열, 변형 등의 표면결함은 역자구의 핵이 될 수 있다. 또한 분말이 각진 형태이면 국소 반자계가 크게 되어 역자구를 생성하기 쉽다. 이와 같은 역자구의 핵이 있으면 그 분말의 보자력은 저하하기 때문에, 전체의 보자력과 각형성도 저하한다.

습식 볼밀링으로 분쇄시간을 변화시켜, 입경과 자기특성의 관계를 살펴본 결과를 그림 6에 나타내었다. 분말의 크기가 작아질수록 보자력은 증가하는 것을 알 수 있다. 한편, 분쇄가 진행됨에 따라 분말이 산화하여 비자성상이 증가하고 역분쇄가 발생하여 분말끼리 응집하는 현상이 일어난다. 그 결과, 분말이 작을수록 자화는 감소한다. 자화와 보자력의 반대되

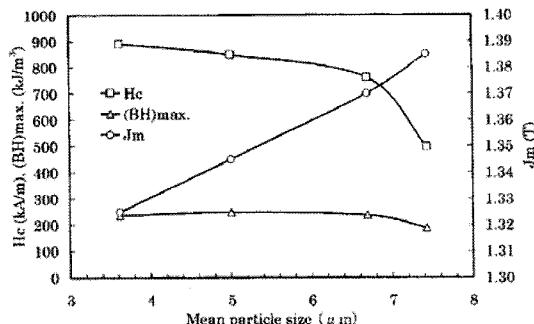


Fig. 6. Relationship between the mean particle size and the magnetic properties of the $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ powder [10].

는 거동에 의해 최대에너지적은 어느 크기에서 최대가 된다. 분말의 산화와 응집을 제어하면, 특성은 개선될 수 있다. 일본 오사카대학의 Machida 교수는 습식 볼밀링 분쇄에서 분쇄용매에 계면활성제를 첨가하면 응집과 결함이 억제되어 부드러운 표면을 가지고 크기가 균질한 분말이 얻어져 그 결과 자기특성이 향상된다는 것을 확인하였다[11].

5.4. 성형공정

본드자석은 제조방법에 따라 크게 2가지로 나눌 수 있다. 에폭시수지 등의 열경화성 수지와 혼합하여 금형내에서 압축하는 방법과 폴리아미드로 대표되는 열가소성 수지와 섞어 먼저 compound를 만들어 이것을 사출하는 방법이다. 압축성형은 원통형처럼 비교적 간단한 형태의 성형품을 대량으로 제조하기에 적합하다. 현재 Magne Quench International사에서 판매하는 자성분말(MQP라고 함)을 압축성형한 본드자석이 가장 많이 사용되고 있다. 한편, 사출성형은 복잡한 형태나 아주 길거나 얇은 형상 제조에 적합하다. Sm-Fe-N계 자성분말은 압축성형에는 별로 적합하지 않다. 왜냐하면 분말의 크기가 매우 미세하여 금형내에서 압축하여 밀도를 높이는 것이 상당히 힘들기 때문이다. 하지만 열가소성 수지와 혼합하면 사출성형에는 적합하다. 한편, 일반적으로 사출성형으로는 67.5 vol.%가 성형한계이지만 압출성형을 하면 압축성형에서 얻어지는 72 vol.%정도의 분말의 체적비율도 달성할 수 있다. 최근에는 분말의 입도분포를 정밀제어하여 분말의 체적비율을 78%까지 높여 압축성형과 동등한 자기특성이 얻어진다고 보고되었다[12]. 이방성 본드자석은 자성분말을 자계 중에서 배향하-

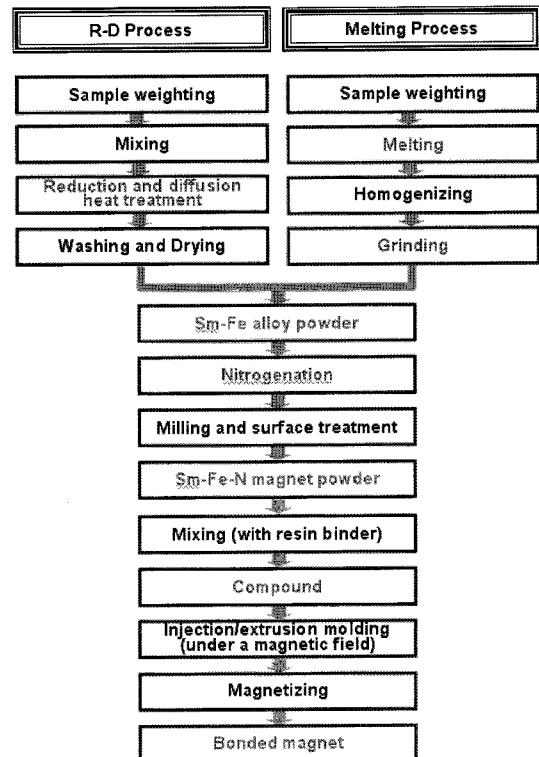


Fig. 7. Process of manufacturing Sm-Fe-N bonded magnet.

면서 성형해야 하기 때문에 바인더가 등방성보다 중요하다. 분말충진율과 배향도를 높이기 위해서는 수지를 가열용융시켜 점도를 낮추는 것이 유리하다. 또한 용융점도가 낮은 바인더를 사용하면 가열성형시의 자성분말의 자기특성의 저하도 억제할 수 있다.

지금까지 설명한 Sm-Fe-N계 본드자석의 제조공정을 그림 7에 정리하여 나타내었다.

6. Sm-Fe-N 계 자석의 고성능화 기술개발 동향

Sm-Fe-N계 자석이 1991년 발표된 이후 세계 각국에서 많은 연구가 수행되어 왔지만 처음으로 공업화에 성공한 것은 일본의 Nichia사와 Sumitomo사이다. 그 외에도 몇몇 회사가 실용화를 위하여 질화물계 자석을 발표하였다. Sm-Fe-N계 질화물 분말 제조와 관련해서, Hitachi Metals사는 strip casting법으로 만들어진 모합금을 Hydrogenation-Disproportionation-Desorption-Recombination(HDDR)법으로 결정을 미세화시킨 후에 질화처리하여 등방성 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ 분말

제작에 성공하였다. 또한 Ti와 B의 복합첨가에 의해 α -Fe의 석출을 억제함으로 불가역감자특성과 내식성이 우수한 자석을 제조할 수 있다[13]. 200 nm정도의 미결정으로 구성되어 있는 30 μm 정도의 분말을 이용하기 때문에 압축성형도 가능하다. 일반적으로 TbCu₇형 결정의 SmFe_x계 질화물 분말은 모합금 조성의 용탕을 초급냉하여 리본형태로 만든 다음, 적절한 열처리로 결정립 크기를 제어한 후 질화처리를 하여 얻어진다. 일본 TDK사는 첨가원소로 Zr와 Co을 넣은 Sm-Zr-Fe-Co-N계로 α -Fe와 SmFe_xN_x계 화합물로 된 compound 자성분말을 제작한 후 압축성형 자석 또는 시트자석에의 응용에 성공하였다[14]. 또한 Toshiba사에서도 비슷한 합금계의 SmFe_xN_x계 화합물 자성분말 제작에 성공하였다[15]. 최근 Daido 사에서는 Toshiba사에서 제작된 분말로 기존의 등방성 Nd-Fe-B계 본드자석보다 자기특성이 우수한 $(\text{BH})_{\max}$: 14MGOe) 본드자석을 개발하였다. 한편 최근에는 상기의 방법과는 다른 화학적 방법도 시도되고 있다. (Sm, Fe) 유산수용액으로부터 얻은 수산화물 혼합체를 대기소성-수소환원-질화반응의 프로세스에 의해 보자력이 13.5 kOe의 3 μm 크기의 분말이 제조되었다고 보고되었다[16]. 기계적 분쇄공정에 의한 보자력 저하가 없는 것이 특징으로, Zn 코팅을 하면 20 kOe 이상의 보자력이 측정되었다. 그리고 최근에 유기실리콘 화합물로 표면처리한 Sm-Fe-N 분말을 에폭시수지를 이용해서 $(\text{BH})_{\max}$ 가 22.5MGOe인 본드자석도 보고되고 있다[17]. 이와 같은 자성분말의 표면코팅은 자기특성 향상뿐만 아니라 내식성, 내열성도 크게 향상시키기 때문에 지금도 활발히 연구가 진행 중이다. 한편 일본 경제 산업성에서는 환경문제로 주목 받고 있는 하이브리드 자동차의 생산 증가에 의해 Nd-Fe-B계 자석의 사용량이 향후 더욱 증가할 것으로 예상하여 고성능 Nd-Fe-B계 자석의 필수 원소인 Dy의 사용량을 줄이기 위한 프로젝트를 2007년부터 진행하고 있다[17]. 하지만 Dy의 사용량을 줄이는 한편, Dy를 사용하지 않는 고성능 자석의 연구도 진행시켜 나갈 필요가 있다. 앞에서도 설명하였지만 현재 Nd-Fe-B계 자석에 필적하는 유일한 자석이 Sm-Fe-N계 자석이다. 하지만 고온에의 상분리 때문에 현재 본드자석만 상용화 되어 있다. 일본의 AIST 연구 그룹에서는 Sm-Fe-N 소결자석의 제작을 시도하고 있다. 그들은 새로운 소결기술인 펄

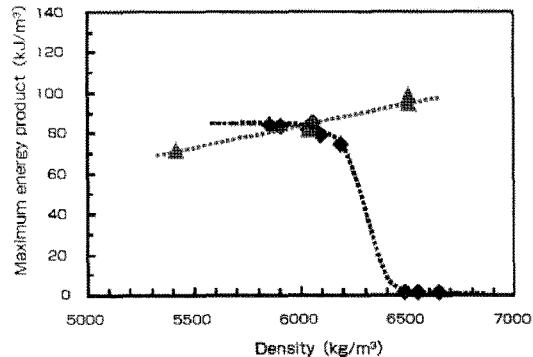


Fig. 8. The relation between sintering density and maximum energy product ($(\text{BH})_{\max}$) of Sm-Fe-N magnet. Marks of \blacktriangle and \blacklozenge indicates $(\text{BH})_{\max}$ when sintering density is changed depending on applied pressure and sintering temperature, respectively [19]

스 통진 소결법에 의해 압력을 가하면서 단시간에 소결함으로써 Sm-Fe-N의 분해를 최대한 억제하면서 치밀한 소결 자석의 제작을 시도하고 있다[18]. 분말을 소결해서 치밀하게 하려면 소결온도와 압력이 중요한 인자이다. AIST 연구 그룹은 후자에 주목하여 높은 압력을 가하면서 Sm-Fe-N 화합물이 상분해가 일어나지 않는 온도에서 소결을 시도하였다. 그럼 8은 압력과 소결온도 변화에 의해 소결밀도를 변화시켰을 경우의 최대에너지적이 어떻게 바뀌는가를 보여준다. 하지만 이 방법을 아직까지는 단순한 형상의 소결물 밖에는 제작할 수 없고, 양산화에는 적합하지 않은 것으로 생각되어 진다. 현재, 제조 비용의 삭감과 양산화에 적합한 프로세스의 개발을 목표로 최적의 분말 제조에서부터 소결까지의 연구 개발이 진행 중이다[19].

7. 결 론

약 20년 전에 개발된 Sm-Fe-N계 자석은 매우 우수한 자기특성과 내구성을 가지고 있다. 특히 희토류 원소의 가격폭등으로 인해 비교적 저렴한 산화물로 제작이 가능한 이 자석이 크게 주목 받고 있다. 특히 향후 기존의 자동차를 대체할 하이브리드전기자동차에는 현재보다 몇 배 많은, 그리고 보다 고효율의 모터가 사용되어야 한다. Sm-Fe-N계 자석은 Nd-Fe-B계 자석과 함께 이러한 차세대 산업을 지탱할 필수 불가결한 소재이다. 현재 일본을 중심으로 한 기술선

전국에서는 이러한 차세대 산업에 필요한 원천소재 기술 개발이 활발히 진행되고 있다. 국내에서는 지금 까지 산발적인 연구가 진행되어 오다가 2008년도부터 지식경제부에서 주관하는 소재원천기술개발사업의 일환으로 고성능, 고효율 분말자성소재를 개발하기 위해 산학연의 관련 연구자들이 모여 체계적인 연구가 시작되었다. 향후 차세대 산업에 필요한 자성분말 소재시장 선점을 위한 경쟁은 더욱 치열해 질 것으로 예상된다.

감사의 글

이 연구는 2008년도 지식경제부 지원의 소재원천 기술개발사업에 의하여 수행되었습니다.

참고문헌

- [1] T. Ishikawa: 일본 AEM 학회지, **10** (2002) 287.
- [2] 전자산업정보지 2월호 (2005) 110.
- [3] 일본 Daido Steel Press Release (2002), <http://www.daido.co.jp/>

- [4] S. H. Kim, Y. D. Kim and T. S. Jang: J. Korean Powder Metallurgy Institute, **15** (2008) 263.
- [5] T. Y. Lui, W. C. Chang, C. J. Chen, T. Y. Chu and C. D. Wu: IEEE Trans. Magn., **28** (1992) 2593.
- [6] S. Brennan, K. Kobayashi and J. M. D. Coey: Proc. 13th International Workshop on Rare-earth Magnets and Their Applications, Birmingham, (1994) 795.
- [7] K. Ohmori: Kinzoku, **74** (2004) 28.
- [8] 김동환, 박사학위논문 (1996).
- [9] R. Omatsuwa and T. Iriyama: Materia Japan **44** (2002) 157.
- [10] T. Ishikawa: J. Jpn. Mag. Soc., **24** (2000) 1394.
- [11] K. Machida, A. Shiomi, H. Izumi and G. Adachi: Jpn. J. Appl. Phys., **34** (1995) L741.
- [12] S. Hirosawa and H. Tomizawa: J. Jpn. Mag. Soc., **21** (1997) 160.
- [13] M. Tobise: 일본 공업재료, **46** (1998) 49.
- [14] T. Hukuno: 일본 공업재료, **46** (1998) 41.
- [15] S. Sakurada, A. Tsutai, T. Hirai, Y. Yanagida and M. Sahashi: J. Appl. Phys., **79** (1996) 4611.
- [16] K. Michiya: PhD Thesis (2006).
- [17] <http://www.nedo.go.jp>.
- [18] K. Kobayashi and K. Ozaki: J. Jpn. Soc. Powder Metallurgy, **51** (2004) 19.
- [19] AIST Today 29 (2008). <http://www.aist.go.jp>.