



중희토류 저감형 희토류 영구자석의 제조기술

글 _ 이정구, 유지훈
한국기계연구원 부설 재료연구소

1. 서론

최근 에너지/환경문제가 주요 이슈로 부각되고 있다. 에너지와 환경 문제는 분리하여 생각할 수 없는 동전의 양면과 같은 것이다. 왜냐하면 지금과 같이 화석연료연소에 의존하는 에너지 생산방식은 환경오염의 주범이기 때문이다. 세계 경제규모 증가에 따라 에너지 수요가 지속적으로 증가하고 있고 이러한 에너지를 생산으로 인해 대기 중으로의 환경오염물질 배출 또한 지속적으로 증가하고 있다. 특히 이산화탄소 배출에 따른 지구온난화 문제는 인류 생활을 위협하는 수준이다.¹⁾ 예를 들어 지구 온난화의 영향으로 2012년도 한 해 동안 미국본토 크기에 해당하는 북극의 빙하가 녹아 사라졌고 이와 관련하여 지구 곳곳에서 이상고온화, 대규모 홍수사태가 발생하여 인적/경제적으로 많이 피해를 발생시키고 있다. 따라서 태양광, 풍력발전과 같은 환경오염을 유발하지 않는 에너지 생산방식이 주목을 받고 있다. 하지만 그 발전 비중은 아직 1.1% (2010년 기준)에 그치고 있다. 한편, 가장 경제적인 발전방식으로 알려진 원자력발전의 경우 최근 일본에서 발생한 대형 원전 방사능 누출 사건 이후 안전성 문제뿐만 아니라 발생하는 핵폐기물처리를 둘러싼 문제는 심각하다. 이와 같이 에너지 생산과 관련해서는 신재생에너지 의존도를 높이는 것이 중요하고 이를 위한 중장기적인 전략이 필요할 것이다. 한편, 세계 각국에서는 이러한 환경문제 해결을 위해 이산화탄소 배출량을 엄격히 규제하기 시작하였다. 자동차산업의 경우 가장

직접적으로 관련되어 규제 연비를 달성하지 못하면 앞으로 시장에서 퇴출될 수밖에 없기 때문에 이러한 환경문제 해결은 산업에서 선택이 아닌 필수사항이 되었다. 환경문제 해결을 위해 또 한가지 중요한 점은 에너지 소비를 줄여 에너지 생산량 확대를 억제하는 것이다. 이러한 에너지 소비를 줄이기 위해서는 에너지를 소모하는 각종 부품과 제품의 에너지 효율을 향상시키는 것이 중요하다. 이러한 에너지 소비효율 향상과 가장 밀접하게 관계되는 것이 모터이다. 실제로 전체 전력소비량의 약 절반정도가 가정용 또는 산업용 모터구동에 사용되고 있다. 따라서, 모터의 에너지 소비효율을 1%만 향상시켜도 엄청난 양의 전기를 절약할 수 있다. 모터효율 향상을 위해서는 여기에 사용되는 핵심소재인 영구자석의 고품성화가 필수불가결하다. 또한, 최근 그 수요가 급증하기 시작한 하이브리드 자동차 (HEV), 전기자동차 (EV)와 같은 친환경 자동차에 사용되는 각종 모터에도 영구자석이 핵심소재로 적용되고 있다.²⁻⁴⁾ 모터의 출력은 모터의 크기, 소비 전력, 자석의 세기에 의해 결정이 되는데 모터의 소형화와 소비전력저감을 위해서는 결국 자석의 세기를 크게 할 수밖에 없다.

영구자석 개발의 역사를 보면, 약 90년간의 짧은 개발 기간 동안 영구자석의 세기를 나타내는 최대자기에너지적 [(BH)_{max}]가 약 60배나 증가하였다. 이러한 영구자석 세기 향상은 관련 부품의 소형화, 고효율화와 직결된다. Fig. 1에 같은 자력을 발생시키기 위한 자석의 상대크기를 비교하였다. 예를 들면 N48급의 Nd-Fe-B계 자석의 경

우 Alnico 9 보다 약 1/54의 크기의 자석으로 같은 세기를 낼 수 있다. 그렇기 때문에 소형, 경량화가 요구되는 곳에는 Nd-Fe-B계 자석이 필수적이라고 말할 수 있다.

이러한 고틈성 희토류 영구자석이 적용된 고성능 모터는 HEV, EV의 구동모터 뿐만 아니라 에어컨용 압축기 모터, 세탁기 드럼 구동모터, 공작기와 산업로봇용 모터에 이르기까지 다양하게 사용되고 있다. 또한 최근에는 풍력발전기에 적용되는 양이 급증하고 있다. 그러나 희토류 영구자석은 현재 심각한 자원리스크에 직면해 있다. 특히 고온 환경 하에서 작동하는 친환경자동차 구동모터용 희토류 영구자석에 필수 원소인 Dy와 같은 중희토류는 Fig. 2에서 나타난 것처럼 그 수요가 급증할 것으로 예상되지만 자원공급에 수요에 크게 못 미치기 때문에 차세대 산업에서 필요한 고성능 모터 공급에 큰 장애요인이 될 것으로 예상된다.⁵⁻⁷⁾ 따라서 이러한 문제 해결을 위해서는 고틈성 희토류 영구자석에서 Dy와 같은 중희토류 원소를 저감, 궁극적으로 제로화하는 기술과 나아가서는 희토류 대체 영구자석재료를 개발이 하는 것이

매우 시급하다.

본 고에서는 이러한 중희토류 자원문제 해결방안인 미세구조 제어기술 개발 동향에 대해서 살펴보고자 한다.

2. 희토류 영구자석의 산업동향

영구자석은 크게 페라이트자석, 알리코자석, 희토류자석으로 분류되어진다. 앞서도 언급하였지만, 희토류자석의 자기특성은 나머지 두 종류에 비해 월등히 우수하다. Nd-Fe-B계 자석은 Fe가 약 60%, Nd가 약 30%, 나머지가 Dy와 다른 첨가원소로 구성되어 있다.⁸⁾ 이 중에서 Dy 함량은 자석의 용도에 따라 다르다. 한편 Dy는 지각 존재질량비가 4.8 ppm으로 Au (0.004 ppm)과 Pt (0.01 ppm)보다는 높지만 Nd (25 ppm) 비교하여 매우 낮다. 뿐만 아니라, 채광 가능한 광산이 거의 중국에 국한되어 있고 최근 중국이 수출제한 정책을 고수하고 있기 때문에 현재 중희토류 수급문제가 발생하고 있다. 더욱 심각한 문제는 이러한 수급문제가 향후 더욱 심화될 것으로 예상된다. Nd-Fe-B계 자석은 용도에 따라 여러 가지 형태로 제작되어진다. 고틈성 자석을 사용하는 장점은 「소형의 자석으로 강한 자장을 발생한다」는 점이다. 따라서, 관련 장치들을 작게 할 수 있고 사용되는 동선도 짧게 할 수 있어 모터 전체를 작게 할 수 있다. 다시 말해 고가의 자석을 사용해도 소형/경량이고 효율까지 우수하기 때문에 고틈성 자석은 모터 등의 각종 기기장치를 경제적이면서도 고성능화시킬 수 있다. 이러한 이유에서 그 생산은 지속적으로 증가하고 있는 추세이다.

Fig. 3은 영구자석소재 세계 생산량 변화를 나타내고 있다. 페라이트자석소재와 비교하여 Nd-Fe-B계 자석소재의 생산량은 약 1/10정도이지만 가격면에서는 2배 이상의 시장을 형성하고 있다.

Nd-Fe-B계 자석은 실생활의 다양한 분야와 제품에 사용되고 있다. 컴퓨터 하드디스크는 2장의 철판 사이에 2개의 Nd-Fe-B계 자석으로 구성되어 있는 보이스코일모터 (VCM)가 헤드의 압의 위치를 제어하여 정보를 입출력을 할 수 있게 한다. 2006년 전세계 하드디스크 생산량은 약 2억 5천만대였다. 1대의 하드디스크에는 2개의

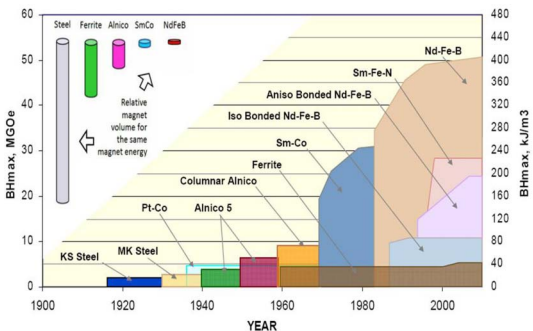


Fig. 1. 영구자석의 개발 역사.

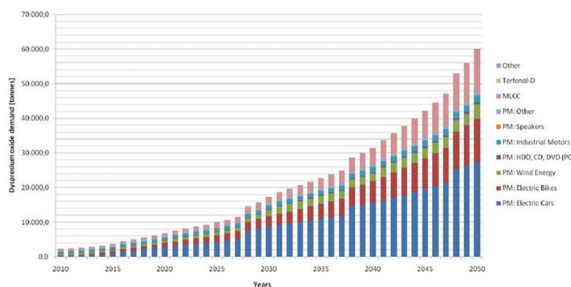


Fig. 2. 디스크로슘의 적용 부품별 수요예측.

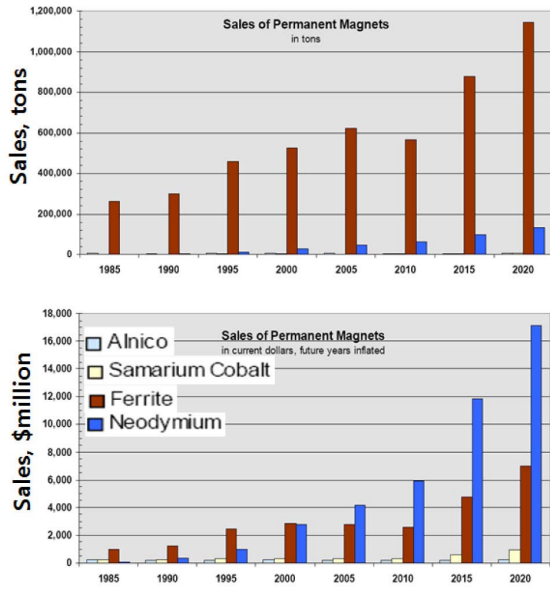


Fig. 3. 영구자석소재의 생산량 변화 추이.

Nd-Fe-B계 자석이 사용되므로 약 5억개의 Nd-Fe-B계 자석이 하드디스크에만 사용되었다. 산업용 로봇분야에서 Nd-Fe-B계 자석 사용도 증가하고 있다. 이전에는 로봇의 관절부분이 상당히 컸지만 최근에는 고속, 고회전 모터의 소형화에 따라 관절부분을 작게 제작할 수 있게 되었다. 또한, 휴대전화의 박형화에도 Nd-Fe-B계 영구자석은 크게 공헌하고 있다. 휴대전화를 얇게 할 때의 큰 문제 중의 하나가 스피커의 박형화이지만 초소형 Nd계 영구자석을 사용하면 두께 1 mm 정도의 매우 얇은 스피커 제작이 가능하다. 이 외에도 엘리베이터, NC 가공기에도 사용되고 있다. 최근에는 성형기에도 서브프레스라고 하는 모터출력으로 성형하는 방식이 적용됨에 따라 성형기의 정밀도가 크게 향상된 사례도 있다. 또한 Nd-Fe-B계 영구자석에 의해 에너지절감이 크게 실현된 대표적인 제품이 에어컨이다. 에어컨은 전력의 대부분을 컴프레셔용 모터 구동에 소비한다. 이전에는 교류모터인 유도모터가 사용되었지만 1981년에 처음으로 인버터 방식 에어컨이 판매되어 1990년대에는 고효율 브러쉬리스 DC 모터가 개발되었다. 현재 세계 각국에서 가전제품에 엄격한 에너지저감 규정을 적용하고 있고 앞으로 더욱 강화될 예정이기 때문에 에어컨 제조사들은 에너지 사용저감을 위

한 모터성능 향상 연구를 더욱 강화하고 있다. 예를 들어 일본의 경우 2003년 이후 거의 대부분의 에어컨 제조사가 Nd계 영구자석을 채용하여 에너지 저감을 달성하고 있다. Nd계 영구자석을 이용한 신형 모터는 구형 모터와 비교하여 특히 저 회전수에서 에너지 효율이 높아 약 30% 에너지 저감효과가 있다고 알려져 있다. 하지만, 세계적으로 보면 아직 비 인버터 방식 에어컨이 주류이고 전체 산업분야에서 영구자석을 사용하지 않는 유도모터가 많이 사용되고 있다. 이것을 Nd계 영구자석을 사용한 영구자석모터로 바꾼다면 에너지 사용량을 크게 줄일 수 있어 결과적으로 CO₂ 배출을 크게 줄일 수 있다. 또한 최근에는 ‘가변자력방식 모터’라는 새로운 개념의 모터가 일본 도시바 홈어플라이언스에서 2009년 가을에 발매한 세탁건조기에 적용되었다. 이 모터는 48개의 자석을 배치한 로터 중에 6개의 Sm-Co 자석의 자력을 증가 또는 감소시키는 것이 가능하다. 세탁 시의 저 회전 때는 토크를 최대로 하기 위해 증가하고 탈수 시에는 감자시켜 역기전압의 발생을 억제하여 회전수를 높일 수 있다. 모터는 세탁 시와 탈수 시의 자력 변화방식이지만 모회사인 도시바는 모터의 회전 중에도 자유로운 자력의 변화가 가능한 모터를 연구하고 있다. 회전 중에 자력을 자유롭게 변화시킬 수 있으면 하이브리드/전기 자동차에도 이용 가능하다. 한편 모터와는 조금 다르지만 풍력발전기에도 Nd-Fe-B계 자석이 대량으로 사용되고 있다. 풍력발전에서는 MW 발전에 250 - 600 kg의 Nd-Fe-B계 자석이 필요하다. 미국은 이러한 풍력발전을 2030년까지 약 300 GW 규모까지 설치할 계획을 가지고 있고 다른 선진국에서도 풍력발전에 대한 설비투자를 정부차원에서 적극 추진하고 있는 실정이기 때문에 영구자석 수요도 크게 증가할 것이다. Nd-Fe-B계 자석의 수요증가에 가장 크게 기여하는 것은 자동차 분야일 것이다. 현재는 Nd-Fe-B계 자석 이외에도 페라이트자석이 사용되는 모터도 많이 사용되고 있지만 점차적으로 Nd-Fe-B계 자석으로 대체되고 있다. 예를 들어, 현재 자동차의 경우 1대당 70에서 150개의 자석이 사용되고 있고, HEV 1대에는 약 1kg, EV 1대에는 약 2kg의 Nd-Fe-B계 자석이 사용되고 있다. 또한, 그 수효는 지속적으로 증가하고

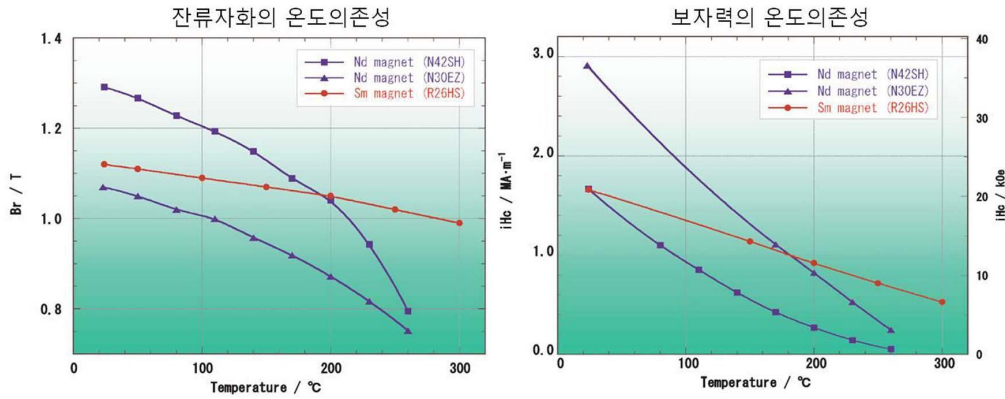


Fig. 4. Nd계 영구자석 자기특성의 온도의존성.

있다. 또한, 아시아를 중심으로 전기자전거 (EB)의 보급이 크게 증가하고 있고 EB 1대당 약 0.35 kg의 Nd-Fe-B계 자석이 사용되고 있다. 2012년 기준으로 EB에 사용되는 자석수요는 약 9,700 톤에 달한다. 그 외에 MRI에도 Nd-Fe-B계 자석이 사용되어 진다. 일본의 경우 전체 MRI의 5% 정도가 Nd계 자석 타입이고 중국의 경우 훨씬 많이 사용되고 있다. 또한 스피커, CD, DVD 등 우리 주변의 모든 분야에서 희토류 영구자석이 사용되어 우리의 일상생활을 가능하게 해 주고 있다.

한편, 최근 수요가 확대되고 있는 모터의 특징은 고회전 고출력을 요구한다는 점이다. 이러한 고회전, 고출력 환경에서는 많은 열이 발생하기 때문에 영구자석의 내열 특성이 매우 중요하다. 예를 들어 HEV의 경우 구동모터의 작동온도가 약 200°C에 달한다고 알려져 있는데 이 온도에서 Nd-Fe-B계 자석의 보자력은 실온보다 약 1/3 수준까지 저하한다 (Fig. 4). 따라서 Nd-Fe-B계 자석의 이러한 보자력의 열 감자특성을 고려한다면 실온에서 적어도 25 kOe 이상의 높은 보자력이 요구된다. 현행의 기술로 이러한 높은 보자력을 실현하는 방법은 Dy와 Tb 같은 중희토류 원소를 첨가하는 것이다. Fig. 5에 나타난 것처럼 현재 Dy (또는 일부 Tb로 치환)는, HEV, EV용 구동모터의 경우 자석 총 중량의 7 - 10 wt%, 에어컨용 압축기 모터의 경우 4 - 5 wt% 정도 사용되고 있다. 하지만 Dy, Tb와 같은 중희토류 원소는 희토류 원소 중에서도 매장량이 극히 적어 Dy의 경우 Nd의 10 - 20%, Tb

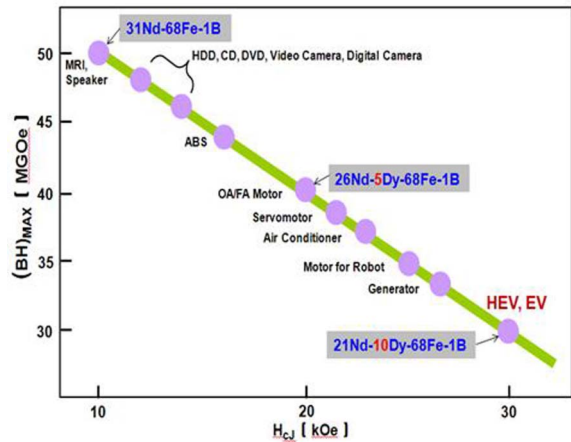


Fig. 5. Nd계 희토류 영구자석의 용도별 Dy 함유량과 이에 따른 자기특성 변화.

의 경우 Nd의 2 - 4% 정도로 알려져 있다. 게다가 현재로서는 거의 대부분을 중국에서 생산하여 공급하고 있고, 최근 중국 정부가 1년간 수출량을 통제하는 수출통제정책을 펴고 있다. 따라서 HEV, EV와 에너지절약형 가전에서 Nd-Fe-B계 영구자석 모터의 수요 증가에 따라 중희토류 자원 수급불균형 문제가 발생하고 있다. Nd-Fe-B계 영구자석에는 Nd, Dy, Tb가 합계로 약 30 wt% 포함되어 있다. 고내열형에는 Nd가 약 20 wt%, Dy가 약 10 wt% 포함되는 것을 생각하면 향후 Dy와 Tb가 Nd보다 자원조달이 훨씬 어려울 것으로 판단된다. 이러한 수요 급증과 자원수급 문제는 차세대 산업에서 필요한 고성능 모터공급에 큰 장애요인이 될 것으로 예상된다.⁹⁻¹²⁾



3. 희토류 영구자석의 미세조직 제어 기술 개발 동향

영구자석의 자기특성 나타내는 지표에는 크게 잔류자화(Br)과 보자력(Hc)이 있다. 잔류자화는 자석의 힘을 나타내는 지표이고, 보자력은 외부자장에 대한 내성을 나타내는 지표이다. 한편, 이 두가지 지수 모두 온도가 올라가면 감소하는 특성을 가지고 있다. Nd계 영구자석의 경우 잔류자화는 250°C보다 높은 온도에서 급격하게 저하한다. 하지만 200°C까지의 온도에서는 큰 문제가 되지 않는다. 하지만 보자력은 온도 상승에 따라 보다 급격하게 저하하여 200°C보다 높은 온도에서 급격하게 저하한다. 이러한 보자력의 급격한 저하는 실제 사용상 문제가 된다. 다시 말하여 잔류자화가 높아도 고온에서는 보자력이 낮아 실제로 사용할 수 없는 자석이 되고 만다. 따라서 고온에서 사용하기 위해서는 실온에서의 보자력을 높여 고온에서도 외부자장에 대한 내성을 크게 하는 것이 필요하다. 중희토류인 Dy를 첨가하는 이유가 바로 여기에 있다. 일반적으로 보자력은 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

$$H_c = \alpha H_A - N_{eff} M_s \quad (1)$$

H_c : Coercive force strength

H_A : Anisotropy magnetic field

M_s : Saturation magnetization

α : Factor which relates to the microstructure

N_{eff} : Effective demagnetization field

식 (1)로부터 보자력을 향상시키기 위해서는 H_A 가 높고 M_s 가 가능한 낮은 물질을 사용해야 한다. Nd₂Fe₁₄B와 같이 2-14-1 화합물을 형성하는 희토류 중에서 이 조건을 만족하는 원소가 Tb과 Dy이다. 따라서 이러한 중희토류를 첨가하면 보자력을 향상시킬 수 있다. 이것이 Nd계 영구자석 물질측면에서의 보자력 향상 방법이다. 하지만 앞서서도 언급하였지만 중희토류의 수급불안정 문제로 인해 이러한 중희토류의 사용량을 줄이고도 보자력을 향상시킬 수 있는 기술 개발이 필요하게 되었다. 이러한 자원문제와는 별도로 첨가되는 Dy는 Nd₂Fe₁₄B 화합물 결정구조에 있어 Nd와 치환되는데 Dy의 자기모멘

트가 Fe와 반대방향으로 결합하는 성질이 있기 때문에 Dy 첨가에 의해 자화가 감소하고 최대에너지적(BH)_{max}가 낮아지는 기술적인 문제도 있다.

한편, 이러한 희토류 영구자석은 일반적으로 분말야금 공정에 의해 제조되어진다. 다시 말해 자성분말을 이용하여 성형, 소결하여 원하는 형상의 자석을 만드는 것이다. 이러한 분말야금공정에 의해 제조된 자석의 미세조직을 잘 제어하면 다시 말해 식 (1)에서 α 를 잘 제어하면 중희토류에 의존하지 않고 고보자력 달성이 가능하다. Dy와 같은 중희토류 사용량을 최소화하면서 보자력을 향상시키는 방법은 현재까지 몇가지가 제안되어 개발이 진행 중이다. 첫 번째 방법은 Fig. 6에 나타난 것과 같이 자석을 구성하는 입자를 미세화 시키는 방법이다. 이론적으로는 영구자석의 입자크기가 감소하면 입자를 구성하는 자벽의 개수가 감소하여 자화반전의 가능성이 상대적으로 낮아지므로 보자력이 증가하는 현상이 나타난다. 입자미세화 된 자석을 제조하기 위해 고속젯밀 혹은 HDDR 공정을 이용한 미세분말 제조기술, 무산소 자장성형기술, 입자성장을 억제하기 위한 저온소결 등의 요소기술이 개발되고 있다. 한편, Melt spun 분말을 열간성형공정을 이용하여 벌크화하는 기술도 최근 주목을 받고 있다. 두 번째 제안되는 방법으로는 영구자석의 입자 계면을 Dy로 도포하는 기술이다. 일반적으로 영구자석의 자기적 결합은 입자의 계면에 집중적으로 분포하며, 만약 계면에 작은 결합(연자성장, 산화물 등)이 생성되면 약자장에 의해서도 반자구가 쉽게 형성되고 도미노 현상같이 자구 내부로 전파되면서 손쉬운 반전이 일어난다. 따라서, 자석분말 혹은 자석표면에 Dy 화합물을 도포하여 계면 내부로 Dy를 확산시키려는 연구가 진행되고 있는데, 계면에 Dy를 균일하게 분포시키게 되면 최소한의 Dy를 사용하면서 보자력을 충분히 향상시킬 수 있다. 이처럼 미세조직 제어를 통하여 중희토류 저감형 고보자력 Nd-Fe-B계 영구자석을 개발하기 위하여 전세계적으로 많은 연구가 진행 중이다. 특히 이 분야에서 독보적인 기술로 기술우위를 유지하고 있는 일본이 차세대 희토류 영구자석에 대한 연구개발에 가장 적극적으로 노력하고 있다. 일본에서는 희토류 자원 수급문제를 가장 먼저 예상하였다.

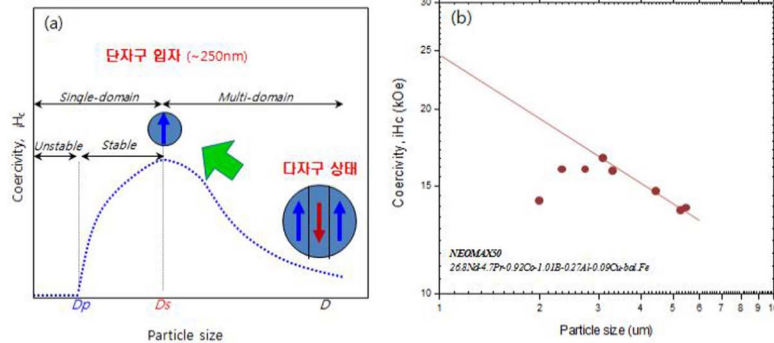


Fig. 6. Nd-Fe-B계 영구자석에서 입도와 보자력과의 관계 (a) 이론적 관점, (b) 실험 결과

특히 희토류 자원이 가장 많이 사용되는 Nd계 희토류 자석이 직면하고 있는 과제를 해결하기 위해 국가적 차원으로 중장기 로드맵을 작성하여 추진해 왔으며, 현재 희토류 대체/저감형 자석 연구개발을 위해 몇 가지 국가 프로젝트를 진행 중이다.¹³⁻¹⁸⁾ 이들 과제들을 기술적 전개 단계로 분류해 보면 희토류 영구자석을 구성하는 ① 희토류 중에서도 가장 희귀한 중희토류 (Dy)를 감소시키는 단계, ② 중희토류 함량을 감소시키는 단계 및 ③ 최종적으로 희토류자석을 대체할 신 영구자석을 개발하는 단계로 구성된다. 각 과제들은 산-학-연이 공동으로 참여함으로써 자석개발, 분석, 이론정립 등의 소재기술개발 차원 뿐만 아니라 기업들이 적극 참여하여 개발된 기술이 최단 시간 사업화가 가능하도록 되어 있다.

3.1. 고속 젓밀에 의한 입자 미세화 기술

일반적으로, Nd-Fe-B계 소결자석의 원료합금은 스트립캐스트라는 제조방법에 의해 만들어진다. 고속으로 회전하는 드럼 표면에 용해된 합금을 부어서 급냉각하는 방식이다. 산토구에서는 그 냉각속도 등을 최적화하여 라멜라간격을 축소하기 위해 연구개발을 진행 중이다. 자분의 미세화에 관해서는 인터메탈릭이 연구개발을 진행 중이다. 조분쇄된 원료합금을 미분쇄하는 젓밀이라고 하는 방법을 개량하여 실험실 레벨에서 약 1μm 정도의 미세한 자분을 제조하는 기술을 개발하였다. 젓밀은 조분쇄한 자분을 고속가스흐름에 투하하여 분말끼리 충돌시켜 미분쇄하는 기술이다. 통상 질소가스를 사용하지만

인터메탈릭이 새롭게 개발한 방법에서는 헬륨가스를 사용한다. 헬륨은 질소보다 가볍기 때문에 유속을 빠르게 하지 않고도 단시간에 미분쇄할 수 있어 표면산화를 최소화 할 수 있다. 또한 헬륨은 불활성가스이기 때문에 질소와 달리 Nd와 화합물을 잘 형성하지 않는다. 흥미로운 것은 이 방법으로 미세화한 자분을 소결하기 위한 새로운 방식 「PLP (PressLess Process)」도 개발한 것이다. 자분을 미세화하면 자분의 표면적이 증가하여 Nd-rich상이 산화되기 쉬워진다. 이것을 방지하기 위해 고안한 것이 PLP 방식이다. PLP의 최대 특징은 고농도의 아르곤 가스로 채워진 파이프 내에서 자분의 충전에서 소결까지 일련의 공정을 실시하는 것이다. PLP 모식도를 Fig. 7에 나타내었다. 구체적으로는 먼저 호퍼에서 카본재질의 용기에 자분을 공급하고 그것을 손으로 누르는 정도의 압력으로 용기에 채운 다음, 코일을 이용하여 5 Tesla 정도의 강한 펄스자장을 가하여 자화의 방향을 정렬하여 소결하면 자석이 완성된다. 종래의 소결법과는 달리 프레

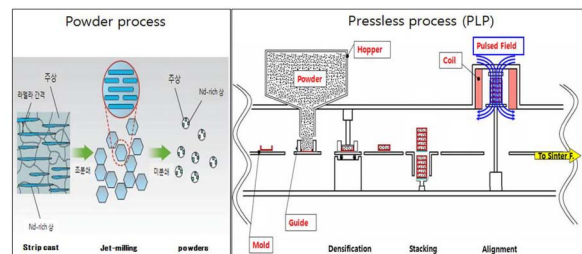


Fig. 7. 스트립캐스트합금에서 분말제조와 이를 이용한 Pressless process의 개략도



스를 위하여 공기 중에서 자분을 몰드에 넣거나 빼는 작업이 필요 없고, 윤활제나 바인더가 적어도 되기 때문에 자분이 잘 산화되지 않고 불순물도 혼합되기 어렵다. 또한 프레스를 없이도 소결체의 밀도는 프레스한 것과 거의 비슷하다. 인터메탈릭에서는 실증장치 2대를 제조하여 이미 효과를 확인하였다. 라멜라간격이 3 - 4 μm 의 원료합금을 헬륨 젯밀로 미분쇄한 입경이 약 1 μm 의 자분을 사용하여 소결 후의 주상상의 입경이 약 1.5 μm 정도로 미세한 Nd-Fe-B계 소결자석을 제조할 수 있었다. Dy와 Tb를 첨가하지 않고 약 20 kOe 정도의 보자력을 얻었다.

한편 동북대 스키모토그룹에서는 결정립 미세화를 위하여 자석의 원료합금에서의 라멜라 간격을 줄이고 원료합금을 분쇄해서 자분을 미세하게 만드는 관점에서 연구 개발을 수행중이다. 입계상의 개선과 관련해서는 Dy를 입계상에 균일하게 분산하기 위해 새로운 방식개발을 시도하고 있다. 그 중에서 라멜라 간격의 축소를 담당하고 있는 것이 (주)산토구이다. 통상, Nd-Fe-B계 소결자석의 원료합금은 주상인 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 상 사이에 거의 일정한 간격으로 Nd-rich상이 형성되어있는 라멜라 구조이다. 라멜라 간격을 축소하는 이점은, 원료합금의 분쇄하여 제조하는 자분을 미세화하여도 주상 주위에 Nd-rich상이 붙어있는 자분을 많이 만들 수 있다는 것이다. 자분의 입경에 대해서 라멜라간격이 너무 넓으면 Nd-rich상이 붙어있지 않은 자분이 만들어져 버린다. 이것 때문에 소결하여도 주상 주위에 Nd-rich상이 확실하게 코팅할 수 결정을 만드는 것이 어렵다.

3.2. HDDR공정에 의한 입자 미세화 기술¹⁹⁻²⁷⁾

일본 물질재료연구기구의 Hono Group은 이러한 입자 미세화기술을 이용하여 아직 소결자석은 아니고 분말에서의 결과이지만 약 19.6 kOe라고 하는 높은 보자력을 실현하였다. Hono Group이 채용한 방식은, (1) 자석의 주상인 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 의 결정립의 미세화, (2) 입계상인 Nd-rich상의 개선이다. Nd-Fe-B계 소결자석은 통상 주상의 결정 입경이 작을수록 결정립내의 자구의 자장 역전이 발생하기 어려워진다. 결정립이 작으면 다자구보다 단자구로 존재하는 것이 에너지적으로 안정하기 때문이다. 다자구상태에서는 인접하는 자구에서 자장의 반전이 발생하면 그것이 다른 자구로 도미노적으로 전파한다. 단자구 상태에서는 그러한 자장 반전의 발생빈도를 줄이기 위해 감자되기 어렵게 되어 보자력이 향상된다. 결정립을 미세화하기 위해서는 사용하는 것이 HDDR 방법이다. Fig. 8에 나타낸 것처럼 이 방법의 최대 특징은 화학반응을 이용해서 결정립 미세화를 유도하는 것이다. 자분을 물리적으로 작게 분쇄해서 결정립을 미세화 하는 방법과 달리 자분을 그것보다 작게 하지 않아도 되기 때문에 Nd-rich상이 산화되기 어렵다. Nd-rich상은 산화하면 더 이상 비자성상이 아니기 때문에 자기적 결함을 차단하는 효과가 없어지지만 HDDR 방법에서는 이러한 산화를 막을 수 있다. HDDR 방법에서는 먼저 자분을 수소분위기에서 가열한다. 그것에 의해 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 을 NdH_2 , Fe, Fe_2B 로 분해되고 그것을 진공 중에서 가열하면 수소를 방출하여 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 상으로 돌아온다. 일련의 화학반응에 의해 주상의 결정립은 초기 100 μm 에서 250

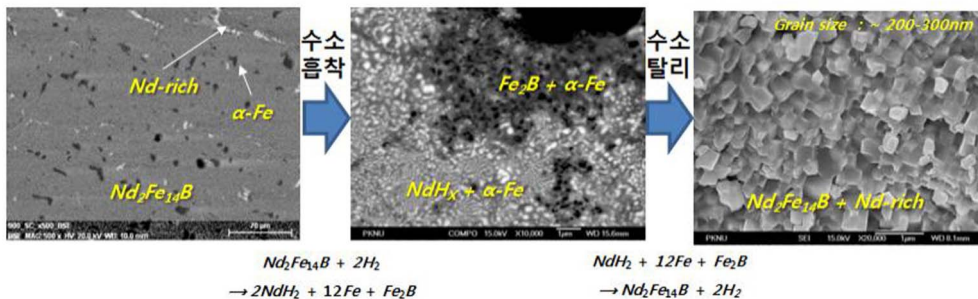


Fig. 8. HDDR 공정에 의한 결정립 미세화. 수소분위기에서 가열해서 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 의 결정을 NdH_2 , Fe, Fe_2B 로 분해한다. 이 분해된 자성분말을 진공 중에서 가열하여 수소를 방출시켜 다시 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 상으로 재결합 시킨다. 이 공정에 의해 자분의 주상의 결정립이 250 nm 정도 미세화 된다.



nm정도까지 미세화 될 수 있다. 또한 처리조건을 적절히 조절하면, 각각의 결정립의 자화방향을 원래 자분의 방향과 일치시킬 수 있다. 한편, Nd-rich상의 개선은 주상의 결정립 중에 새로운 자구가 발생하는 빈도를 줄이기 위한 것이다. 주상의 계면에 결합이 있거나 주상끼리 Nd-rich상 없이 연결되어 있는 부분은 감자되기 쉽다고 설명했다. 그것은 이러한 부분에서 새로운 자구가 발생하기 쉽기 때문이다. 이것을 방지하기 위해, 입계확산법에서는 입계에 Dy와 Tb를 선택적으로 도입하지만 Hono group에서는 Nd-rich상을 주상의 결정립을 확실히 싸게 만든다. 이러한 Nd-rich상의 개선의 또 다른 목적은 Nd-rich상에서는 결정립끼리의 자기적 결합을 차단하는 효과도 있다. 적절한 열처리를 실시하면 Nd-rich상은 자성체의 결정이 아니고 비자성체의 비정질상태가 된다. 따라서 주상을 Nd-rich상으로 확실히 싸면 결정립끼리의 자기적 결합을 차단하는 것이 가능하고 어느 결정립에서 발생한 자구의 반전이 인접한 결정립에 전파되어 가는 것을 막을 수 있다. 이것을 위해 Hono group에서 적용한 입계확산법에서는 Dy와 Tb 대신에 Nd를 또한 자석의 소결 후에 실시하는 것이 아니고 자분을 제조하는 최종 단계에 적용하는 점이 이전의 자석제조회사의 방법과 차별화 되는 점이다.

구체적으로는 HDDR 방법으로 제조된 Nd-Fe-B계 자분과 Nd-Cu 합금 분말을 혼합하여 가열한다.

Nd-Cu 합금을 선택한 것은 용점이 520°C로 낮기 때문이다. 소결온도를 높이면 결정립이 성장하기 때문에 결정립 미세화를 유지 할 수 없다. 따라서 저용점의 Nd 합금을 사용하는 것이 좋다. Nd-Cu 합금은 소결온도를 600°C 정도로 낮게 하여도 액상으로 되기 때문에, Nd가 입계를 따라 확산해 간다. 또한 Nd-rich상에 Cu이 혼합되어 보자력을 높이는 것도 확인되었다. Nd-Cu 합금을 사용하면 그 Cu의 공급원도 될 수 있다. Hono group에서는 현재 개발된 고보자력 자분을 이용하여 소결자석을 제조하는 기술개발을 진행 중이다. 현재 최대의 과제는 최대자기에너지적의 향상이다. 이것을 위해서는 자분의 배향도를 높일 필요가 있다. 현재 목표로 하는 것은 HEV/EV의 구동모터에 사용하기 위해 보자력이 약 25

kOe, 최대자기에너지적이 약 35 MGOe의 Nd-Fe-B계 소결자석이다.

3.3. Melt spun ribbon 분말을 이용한 이방성 자석 제조 기술

Nd-Fe-B계 자성분말을 제조하는 또 다른 대표적인 방법은 액체급냉법 (Meltspun Method 또는 Meltspinning Method)이다. 이 방법은 Nd계 모합금 용탕을 냉각된 회전판에 분사하여 리본형태로 제조하는 것으로 급냉효과에 의해 아몰퍼스상이 형성된다. 이후 열처리에 의해 수십 nm의 미세한 결정립을 얻을 수 있다. 이것을 분쇄하여 제조된 고보자력 자성분말을 일반적으로 Nd계 본드자석 제조에 사용되고 있다. 하지만, 이 방법에 의해 제조된 자성분말의 결정립은 자화용이축 방향이 각기 다른 방향을 향하고 있기 때문에 등방성 자석제조만 가능하다. 이러한 등방성 자성분말을 이용해 이방성 영구자석을 제조하기 위해 열간성형 (Hot deformation) 공정이 이용된다. 일본 다이도에서는 이러한 방법에 의해 이방성 radial ring 자석 [NEOQUENCH-DR]을 제조하여 판매하고 있다. Fig. 9에 열간성형공정의 모식도를 나타내었다. 열간성형공정은 Hot pressing과 Die upsetting (또는 Back extrusion) 두 단계로 나누어 행해진다. 전자는 Melt spun 분말을 약 700~800°C 온도에서 일축성형하여 진밀도에 가까운 성형체를 만드는 단계로 이 성형체는 자기적으로 등방성인 상태이다. 하지만 이 단계에서 형성된 성형체

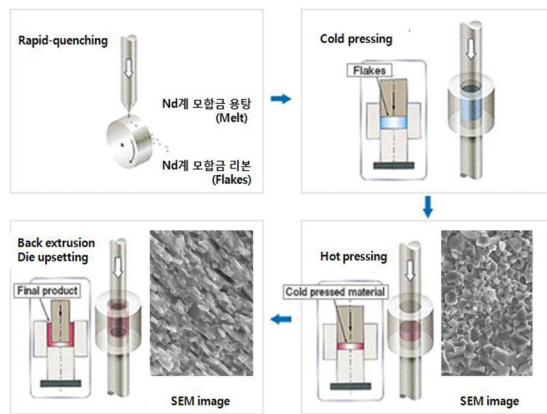


Fig. 9. 등방성 Melt spun 분말을 이용하여 이방성 영구자석 제조를 위한 Hot deformation 공정의 모식도



의 미세구조가 다음 단계의 성형과 최종제품의 자기특성에 크게 영향을 미치기 때문에 최근에는 Spark Plasma Sintering (SPS)를 이용한 연구도 활발히 진행 중이다. 후자는 hot pressing에 의해 제조된 성형체를 성형압력 방향과 수직된 방향으로 소성변형시킴으로써 해서 자화용이축 방향을 성형압력방향으로 정렬시키는 단계이다. 이러한 단계를 통해서 이방성 벌크자석 제조가 가능하다. 이렇게 제조된 영구자석은 중희토류를 첨가하지 않아도 높은 보자력을 얻을 수 있기 때문에 중희토류 문제를 해결할 수 있는 제조방법으로 주목받고 있다(Fig. 10). 또한, 열간성형으로 제조된 이방성 영구자석의 자기특성을 보다 향상시키기 위하여 GBDP (Grain boundary diffusion process)를 적용하는 연구도 주목받고 있다 (17). 한편, Hitachi 금속에서는 HDDR 자성분말의 치밀화하는 과정에서 발생하는 결정립성장을 억제하기 위하여 열간성형공정을 적용한 연구도 진행 중이다.

3.4. 계면 확산코팅에 따른 보자력 향상 기술

입자가 미세화되어도 입자와 입자사이의 계면에 역자구가 쉽게 발생한다면 높은 보자력을 기대할 수 없다. 이러한 계면제어와 관련하여 Dy와 Tb의 사용량을 줄이기 위한 기술로 실용화가 진행 중인 기술이 신에츠화학공업, 히타치금속, TDK가 개발한 「입계확산법」이라고 하는 기술이다(Fig. 11). 앞의 두 회사가 이미 이 기술을 적용한

Nd-Fe-B계 소결자석의 판매를 시작했고 TDK도 2011년부터 양산을 시작하였다. 이 기술을 적용하면 신에츠화학공업에서 기존의 「이원합금법」이라는 종래의 방법보다 Dy와 Tb의 사용량을 반으로 줄일 수 있다고 알려져 있다. Nd-Fe-B계 소결자석에서 Dy와 Tb가 필요한 것은 보자력을 확보하기 위해서이다. 보자력은 역자장 (영구자석의 자화방향과 반대방향의 자장)과 온도변화에 대해 자석의 감자되지 않는 성질을 나타내는 값이다. Nd-Fe-B계 소결자석에서는 보통 고온이 될수록 역자장에 의한 감자가 쉬워진다. 이러한 문제를 개선하기 위해 Dy와 Tb와 같은 중희토류를 첨가한다. 예를 들면 자석의 온도가 200°C 정도가 되는 HEV의 구동모터에는 중량비로 Nd의 약 40%의 중희토류가 필요하다. Dy와 Tb의 첨가로 보자력은 향상되는 것은 Nd₂Fe₁₄B 조직구조에서 Nd의 일부가 Dy와 Tb로 치환되기 때문이다. R₂Fe₁₄B (R은 희토류원소)의 화합물에서 R이 Nd인 경우보다 Dy와 Tb의 경우가 보자력과 비례해서 이방성자계가 높다. 입계확산법에서는 이러한 Dy와 Tb를 Nd-Fe-B계 소결자석 조직의 입계부분에 선택적으로 도입하는 것이 가능하다. 이러한 자석에는 보통 4 - 5 μm 전후의 Nd₂Fe₁₄B의 결정(주상)이 모여있고 주상과 주상 사이(입계)에 Nd-rich상이 생성된다. 단, 일반적으로는 이 Nd-rich상이 생성되지 않거나 주상의 계면에 결합들이 발생하여 감자되기 쉬워진다. 그래서 감자에 강한 Dy와 Tb를 계면에 선택적으로 도입함으로써 지금보다 적은 양으로 같은 성능의

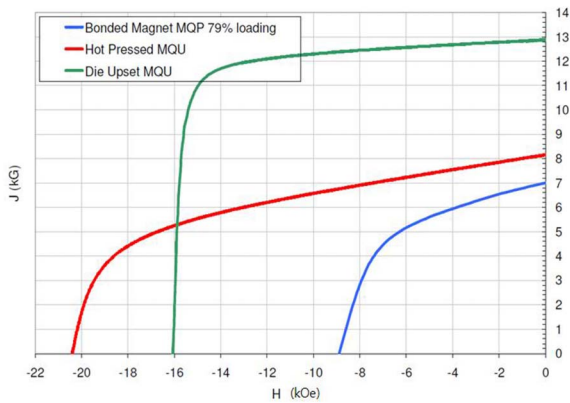


Fig. 10. Melt spun 자성분말을 이용해 제조된 3종류 영구자석의 자기특성 비교

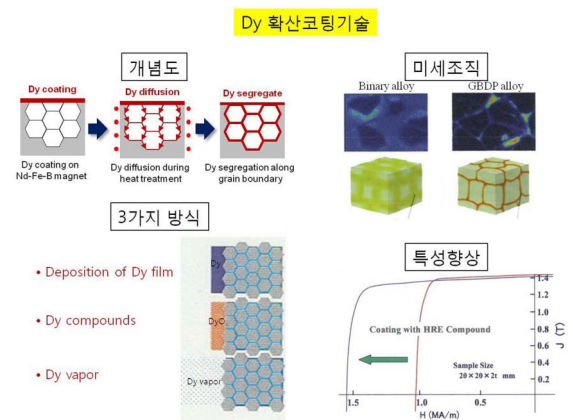


Fig. 11. Dy 확산코팅 기술



보자력을 확보하고자 하는 것이 입계확산법의 기본적인 방향이다. 종래의 이원합금법에서는 자석의 원료로 Nd-Fe-B계 합금을 만드는 과정에서 Dy와 Tb를 첨가하기 때문에 주상과 입계의 구별없이 Dy와 Tb가 넓게 분산되어 있었다. 이 방법과 비교하여 입계확산법에서는 원료 합금에 첨가하는 Dy와 Tb를 줄이고 남은 일부분을 계면 개선에 이용하였다. 먼저 통상의 Nd-Fe-B계 소결자석과 같이, 원료 합금을 분쇄해서 분말화하고 자장을 가한 상태에서 성형한 다음 소결한다. 종래 방법과 다른 것은 소결 후에 실시하는 열처리다.

이 처리방법에는 크게 나누어 두 종류가 있다. 하나는 액상화가 가능한 Dy와 Tb의 화합물을 사용하는 것이다. 이러한 화합물 중에 침투하거나 화합물을 도포해서 소결 후 자석 표면에 화합물의 막을 만든다. 그 다음 열처리를 실시하여 화합물을 분해시켜 Dy와 Tb를 입계에 확산시킨다. 다른 하나는, 증착법을 이용하는 것으로 진공 챔버 내에 소결 후 자석과 Dy와 Tb를 도입하여 가열하면 Dy와 Tb의 증기가 발행하여 자석의 계면에 확산된다. 전자의 방식은 신에츠화학공업과 TDK가, 후자의 방식은 히타치 금속이 채용하고 있다.

또한 Dy를 입계상에 균일하게 분포시키기 위해 「H-HAL법」이라고 하는 새로운 방법을 TDK가 개발하였다. 기존의 입계확산법과 가장 다른 점은 Dy의 공급원이 되는 물질을 소결전 압분체를 만드는 단계에서 혼합하는 것이다. 구체적으로 조분쇄한 Dy 소스와 자분을 고속 젓밀로 미분쇄 하면서 균일하게 혼합하는 것으로 자분의 주위에 Dy 소스의 입자가 균일하게 분산시킨다. 직경 약 수 μm 자분과 $1\mu\text{m}$ 보다 작은 Dy 소스를 소결할 때 균일하게 분포한 Dy 소스에서 Dy가 입계를 따라 확산해 가기 때문에 주상이 Dy-rich상에 의해 확실히 코팅된다. TDK에 의하면 Dy의 사용량이 같은 경우,보자력을 이원합금법보다 2 kOe 정도 향상시킬 수 있었다. 또한 계면상의 개선효과로는 기존의 입계확산법에는 미치지 못하지만 자석의 표면 부근 뿐만 아니라 내부 깊은 곳까지 입계상을 개선할 수 있다. 소결에서 처리가 완료되기 때문에 소결 후에 기존의 입계확산법과 같이 사용될 수도 있다.

4. 결론

미래에 도래하게 될 산업화 사회는 환경과 에너지가 가장 큰 이슈로 부각될 것이 명확하다. 하지만 이러한 환경과 에너지 문제에 대처하기 위해서는 고기능성 소재사용이 불가피하고, 이러한 소재에 반드시 필요한 것이 희토류 원소이다. 하지만, 고기능성 소재에 대한 수요증가와 희토류 금속의 공급부족이 관련산업 발전에 큰 장애요인이 되고 있다. 따라서 소재자원과 소재제조의 융합기술이 차세대 산업발전을 위해 필요해 보인다. 희토류 영구자석소재 산업에서도 가장 큰 걸림돌은 Dy와 같은 중희토류 금속의 수요와 공급 불균형으로 가격이 급등할 뿐만 아니라 희토류 생산량의 대부분을 차지하고 있는 중국이 수출쿼터제를 이용해 수출을 제한하고 있기 때문에 가격예측이 매우 어렵다는 점이다. 또한, Dy과 같은 중희토류의 경우, 2035년 경에는 고갈에 따른 공급이 불가능해 질 것이라는 전망까지 나오고 있어 이에 따른 대비책이 필요할 것으로 판단된다.

한편, 전세계적으로 친환경자동차에 대한 관심이 크게 증가함에 따라 구동모터의 고효율화와 소형경량화를 구현하기 위한 방안으로 희토류 영구자석에 대한 수요가 크게 증가하고 있는 실정이다. 그동안 국내의 희토류 영구자석에 대한 제반 인프라가 미흡한 것은 사실이나, 국내 희토류 영구자석 관련 기업의 중국 진출, 중국 이외의 타 국가로부터 희토류를 수급하기 위한 각종 광산개발이나 프로젝트에 투자가 증가하고 있다. 또한 Nd계 영구자석의 원천물질특허가 2014년도에 종료됨에 따라 관련 기업에서도 희토류 영구자석을 사업화하기 위한 검토가 지속적으로 이루어지고 있는 상황임을 고려하면 희토류 영구자석소재, 특히 중희토류 저감/대체 기술개발을 통해 고부가가치의 고품성 희토류 영구자석 분야에서 차세대 산업시장을 선점해 나갈 수 있을 것으로 기대된다.

중희토류 저감/대체형 영구자석 소재 개발은 약 30년의 개발역사를 가지는 Nd-Fe-B계 영구자석에 비하여 전 세계적으로 아직 개발초기에 있고 국내에서도 약 1년 전에 연구개발이 시작되었기 때문에 기술선진국과의 기술 격차를 단기간에 줄일 수 있을 것으로 생각된다. 이를 위



해 국내 자성소재전문가 집단 주도의 원천핵심기술개발에 정부의 보다 적극적인 지원과 기업의 관심이 절실한 시점이다. 보다 장기적으로는 희토류자원에 대한 고갈문제 해결하고, 미래의 첨단산업 발전의 토대가 되는 핵심 희토류소재를 안정적으로 공급하기 위해서 폐자원의 재활용기술과 이를 이용한 소재기술개발 또한 필요한 시점이다.

감사의 글

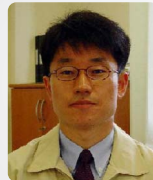
본 연구는 산업통상자원부 소재원천기술개발사업의 연구비 지원으로 수행되었습니다.

참고문헌

1. <http://ies.jrc.ec.europa.eu/our-activities/global-support/global-emission-inventory.html>
2. Trend in Electric Vehicle Market, KETI (2010).
3. Trend in Hybrid Vehicle Industry, KETI (2011).
4. Automotive World Car Industry Forecast Report, Global insight (2004).
5. 2010년도 희유금속세미나 자료집, 해외자원개발 협회 (2010).
6. 금속자원리포트 No. 77, JOGMEC, (2011).
7. Science & Technology Trends 10, NEDO (2010).
8. M. Sagawa et. al, *J. Appl. Phys.*, **55** (6), 2083 (1984).
9. J. J. Croat, Technical Report of Magnequench (1990).
10. Y. Luo, BM News, No. 33, 122 (2005).
11. Y. Luo, *Magnews*, Winter, 32 (2008).
12. Y. Luo, *Magnews*, Summer, 20 (2008).
13. S. Hirosawa, Proc. 20th Int. Workshop on REPM and their Applications, 16 (2008).
14. S. Sugimoto, 일본금속학회. 춘기대회, S3.1, 113 (2009).
15. S. Hirosawa et. al, 일본금속학회 춘기대회, S3.2, 113 (2009).
16. M. Sagawa, Proc. 21th Int. Workshop on REPM and their Applications (2010).
17. S. Sugimoto et. al, Proc. 21th Int. Workshop on REPM and their Applications, 16 (2008).

18. 2010년도 희유금속세미나 자료집, 해외자원개발 협회 (2010).
19. Y. Honkura, Proc. 18th International Workshop on HPMA and their Application, 559 (2004).
20. Y. Honkura, Proc. 19th International Workshop on HPMA and their Application, 231 (2006).
21. I. R. Harris, P. J. McGuiness, *J. of the Less-Common Metals*, **172** 1273 (1991).
22. O. Gutfleisch, M. Verdier and I. R. Harris, *J of Alloys and Compounds*, **196** (1993).
23. <http://www.arnoldmagnetics.com/>
24. A. W. Hoenderdaal, Fraunhofer Report, 64 (2011).
25. J. G. Lee, J. H. Yu, H. J. Kim, and T. S. Jang, *J. Kor. Mag. Soc.*, **22** 58 (2012).
26. H. R. Cha, J. G. Lee, Y. K. Baek, J. H. Yu, H. W. Kwon, and Y. D. Kim, *Korean J. Met. Mater.* **51** 371 (2013).
27. H. R. Cha, J. H. Yu, Y. K. Bake, H. W. Kwon, Y. D. Kim, and J. G. Lee, *J. Magn.* 19, 49 (2014).

이정구



- 1998년 성균관대학교 금속공학과 학사
- 2003년 일본 오사카대학 재료공학과 박사
- 2006년 현재 한국기계연구원 부설 재료연구소 책임연구원

유지훈



- 2001년 한양대학교 재료공학과 박사
- 2002년 스위스 로잔연방공대 Post Doc.
- 2003년 현재 한국기계연구원 부설 재료연구소 책임연구원
- 현재 한국기계연구원 부설 재료연구소 분말기술연구실 실장