

# DyH<sub>3</sub> 분말 첨가에 따른 Nd-Fe-B 소결자석의 미세구조와 자기적 특성 변화의 상관관계 연구

배경훈<sup>1\*</sup>, 김태훈<sup>1</sup>, 이성래<sup>1</sup>, 남궁석<sup>2</sup>, 장태석<sup>2</sup>

<sup>1</sup>고려대학교 신소재공학과, 서울특별시 성북구 안암동 고려대학교, 136-713

<sup>2</sup>선문대학교 하이브리드공학부, 충남 아산시 탕정면 선문대학교, 336-708

## 1. 서론

Nd-Fe-B계 소결자석이 하이브리드 자동차의 모터에 적용되기 위해서는, 높은 내열성과 보자력이 요구된다. 특히, 상온에서의 보자력 특성이 중요한데, 이를 향상시키기 위한 방법으로 Dy의 첨가가 효율적이다 [1]. Dy이 주상의 Nd과 치환되어 들어가면, (Nd, Dy)<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 상을 형성하여 주상의 이방성에너지를 향상 시킨다 [1]. 하지만, Dy 원자와 Fe 원자 간의 반강자성 결합으로 잔류자화와 (BH)<sub>max</sub>가 감소된다 [1]. 또한, Dy 원소의 매장량이 극히 적기 때문에, 자원 고갈 문제 및 이에 따른 자석의 경제성 악화가 야기된다. 따라서, Dy의 첨가량을 저감 시키면서 고보자력을 가지는 Nd-Fe-B계 소결자석을 개발하여야 한다. Dy를 효율적으로 저감하기 위한 기술 중 한 가지는 Dy-X 합금분말을 첨가하는 것이다 [2]. 본 연구실은 Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, DyF<sub>3</sub> 등의 합금분말을 첨가하여 소결자석의 자기적 특성을 향상 시키는 연구를 진행해 왔다 [3]. 본 연구에서는, DyH<sub>3</sub> 분말을 첨가한 Nd-Fe-B 소결자석의 미세구조와 상변화를 관찰하고 그것에 따른 자기적 특성 변화의 상관관계를 연구하였다.

## 2. 실험방법

DyH<sub>3</sub> 분말 첨가에 따른 자기특성의 변화를 조사하기 위하여 기본조성이 12.7Nd-2Dy-bal.Fe-6B-2.75M (at.%, M=Cu, Al, Co, Nb)인 Nd-Fe-B 분말을 준비하였다. Ball milling을 이용하여 Nd-Fe-B 분말과 1.74 wt. % DyH<sub>3</sub> 분말을 혼합하였다. 분말 첨가 후 소결한 두 Nd-Fe-B 소결자석의 총 Dy 함량은 2.7 at. %이고 (DyH<sub>3</sub>-doped magnet), 비교를 위해서 분말을 첨가하지 않고, 2.7 at. % Dy를 함유한 소결자석(un-doped magnet)을 준비 하였다. 소결자석은 1070°C에서 4시간 동안 소결하고, 1차 열처리는 850°C에서 2시간, 2차 열처리는 530°C에서 2시간, 그리고 3차 열처리는 500°C에서 2시간동안 열처리하였다. 미세구조는 주사전자현미경 (JXA-8500F)을 이용하여 관찰하였고 EPMA (JXA-8500F) Electron Probe Micro Analyzer), WDS (Wavelength Dispersive X-ray Spectroscopy), XRD (Rigaku D/MAX-2500V/PC, X-Ray Diffraction), HRTEM을 이용하여 상 변화 및 상 분포를 조사하였다.

## 3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 Un-doped magnet과 DyH<sub>3</sub>-doped magnet의 자기적 특성을 나타낸다. DyH<sub>3</sub> Doped magnet의 보자력과 잔류자화는 31.9 kOe, 11.6 kG 로써, 분말을 첨가하지 않은 un-doped magnet (iHc = 30.1 kOe, 11.6 kG)과 비교 하였을 때, 잔류자화의 감소 없이 5.8 %의 보자력 향상이 관찰 되었다. 이전 연구결과에 의하면, DyF<sub>3</sub> 분말을 첨가하였을 때 3.3%의 보자력 증가율을 보였지만, 급격한 잔류자화의 감소가 수반 되었다 [3]. 따라서, DyH<sub>3</sub> 분말의 첨가가 Nd-Fe-B 소결자석의 Dy를 저감하는데 있어서 더 효율적인 것을 알 수 있다.

Un-doped magnet과 DyH<sub>3</sub>-doped magnet의 상 형성 및 분포를 EPMA 분석을 통해 확인 하였다. Un-doped, Doped magnet 모두, Nd, Dy, O이 rich 한 상과, Nd, Co, Cu, O이 rich한 상이 삼중점 영역에서 관찰 되었다. 주상에서의 Dy 분포를 확인해 보면, Un-doped magnet의 경우 Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 결정립 내에 균질하게 분포 하지만, DyH<sub>3</sub>-doped magnet의 경우 Nd-rich 입계상을 따라서 분포하여 core-shell 구조를 형성 하고, 결정립 내부에서는 Dy의 양이 상대적으로 적은 것을 알 수 있다. DyF<sub>3</sub> 분말을 첨가 하였을 경우, Dy 원자는 삼중점 영역에 존재하지

않고 모두 주상에 고루 분포 하였다 [3]. 이 결과 Un-doped magnet 보다 보자력이 향상 되었지만, Dy-Fe 원자 간의 반강자성 결합률의 증가로 잔류자화가 감소하였다 [3]. 하지만, DyH<sub>3</sub>를 첨가 하면, Dy 원자는 이방성 에너지가 낮은 결정립계를 따라 분포하기 때문에 잔류자화의 감소 없이 보자력이 향상 된다. 하지만, 보자력 향상의 원인을 단지 core-shell 구조의 형성으로 보기에, 보자력의 향상 폭이 너무 크다. 비슷한 미세구조를 나타낸 Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-doped magnet의 경우에는, 오히려 보자력이 감소하였다 [3]. DyF<sub>3</sub> 분말을 첨가 하였을 경우, Dy-F 분말은 약 680°C에서 열적 분해가 일어나기 때문에, 소결 및 열처리 이후에 F는 모두 증발할 것으로 예상 했지만, 삼중점 상에 응집되어있었다 [3]. 비록 H 원소의 분포는 EPMA 및 WDS를 통해서 확인이 불가능 하지만, RE (Rare-Earth)-H 화합물은 열적 안정성이 좋다는 보고가 있기 때문에 [4], F의 경우와 같이 소결자석 내부에 잔존해 있을 가능성이 있다. 또한, RE-H 화합물의 열적 안정성은 중희토류로 갈수록 향상되기 때문에 [4], H는 Dy가 위치해 있는 곳, 즉 삼중점 영역 및 입계상 근처의 주상에 존재 할 수 있다. H가 주상에 존재하면, Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 결정구조 내의 Fe-layer의 pseudo tetrahedral site로 유입 되며, 이 결과 Fe-Fe 원자 간의 강자성 결합률이 증가 되고, c-축의 길이가 증가됨에 따라서 결정자기이방성이 향상 된다 [5]. 따라서 보자력이 향상 된다고 예상된다.

#### 4. 결론

Un-doped magnet의 경우에는 Dy이 주상에 고르게 분포하였지만, DyH<sub>3</sub> Doped magnet의 경우에는 Dy이 결정립계를 따라서 분포 하였다. 이 결과, 잔류자화의 감소 없이 보자력이 5.8% 향상 되었다. DyH<sub>3</sub> 분말의 첨가가 Dy를 저감하는데 있어서 가장 효율적인 결과를 나타낸다.

#### 5. Acknowledgement

This research was supported by a grant from the Fundamental R&D Program for Core Technology of Materials funded by the Ministry of Commerce, Industry and Energy and Basic Science Research Program through the National Research Foundation of Korea (NRF) funded by the Ministry of Education, Science and Technology (2011-007200), Republic of Korea.

#### 6. 참고문헌

- [1] M. Sagawa, S. Fujimura, N. Togawa, H. Yamamoto, and Y. Matsuura, J. Appl. Phys. 55, 2083 (1984).
- [2] M. H. Ghandehari and J. Fidler, Mater. Lett. 5, 285 (1987).
- [3] Song-E. Park, Tae-Hoon Kim, Seong-Rae Lee, Dong-Hwan Kim, Seok Nam-Kung, and Tae-Suk Jang, IEEE Trans. Magn. 47, 3259 (2011).
- [4] William L. Korst and James C. Warf, Inorg. Chem. 5, 10, pp 1719–1726 (1966).
- [5] O. Isnard, W. B. Yelon, S. Miraglia, and D. Fruchart, J. Appl. Phys. 78, 1892 (1995).

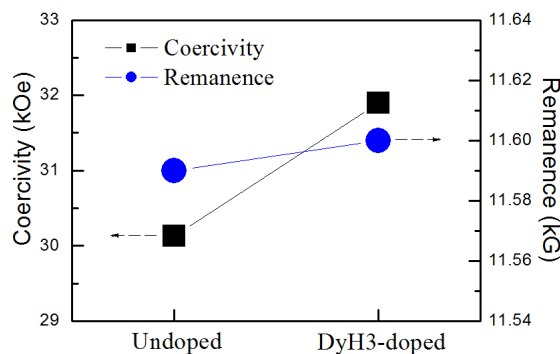


Fig. 1. Un-doped, DyH<sub>3</sub> 첨가한 소결자석의 자기적 특성 변화