(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2022-0023957
(43) 공개일자 2022년03월03일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
H01F 41/02 (2006.01) *H01F 1/053* (2006.01)
(52) CPC특허분류
H01F 41/0293 (2013.01)
H01F 1/053 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2021-0110061
(22) 출원일자 2021년08월20일
심사청구일자 2021년08월20일
(30) 우선권주장
1020200104389 2020년08월20일 대한민국(KR)

(71) 출원인
한국재료연구원
경상남도 창원시 성산구 창원대로 797 (상남동)
(72) 발명자
이정구
경상남도 창원시 성산구 창원천로 254 (반지동, 까치아파트)
차희령
경상남도 김해시 율하5로 46 (장유동, 김해율하리슈빌더스테이아파트)
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
특허법인 피씨알

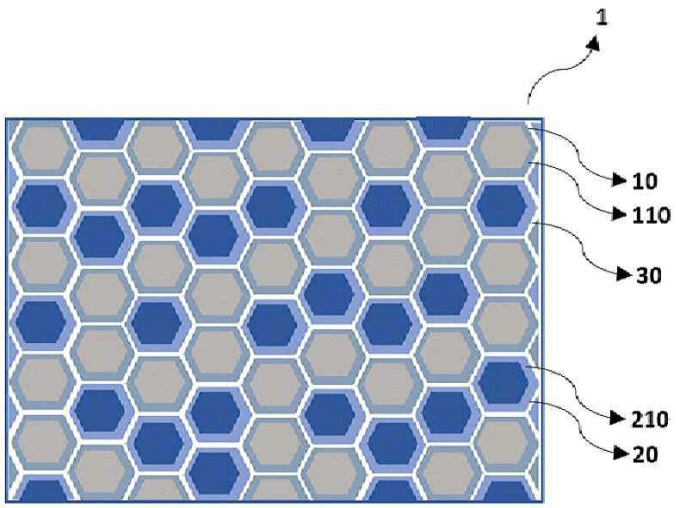
전체 청구항 수 : 총 18 항

(54) 발명의 명칭 **다상 구조 자석의 제조방법 및 그로부터 제조된 다상 구조 자석**

(57) 요 약

본 발명은 보자력이 우수한 다상 구조 자석의 제조방법 및 그로부터 제조된 다상 구조 자석을 제공한다.

대 표 도 - 도2



(72) 발명자

김가영

부산시 사상구 엄궁동 엄궁아파트

김영국

경상남도 창원시 마산회원구 양덕서로 30 (양덕동,메트로시티)

백연경

경상남도 창원시 성산구 대암로 253 (성주동, 프리빌리지아파트)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호	1415172163
과제번호	20000401
부처명	산업통상자원부
과제관리(전문)기관명	한국산업기술평가관리원
연구사업명	소재부품기술개발(R&D)
연구과제명	전력기반자동차 전기구동모터용 중희토 완전배제 영구자석소재 및 회전자 기술개발
기 여 율	1/1
과제수행기관명	성림첨단산업(주)
연구기간	2021.01.01 ~ 2021.12.31

명 세 서

청구범위

청구항 1

Re^{1}-Fe-B의 조성을 갖는 제1 분말 및 Re^{2}-Fe-B의 조성을 갖는 제2 분말을 혼합하여 혼합 분말을 제조하는 단계; 및

상기 혼합 분말을 이방벌크화하여 이방벌크자석으로 제조하는 단계;

를 포함하는 다상 구조 자석의 제조 방법으로서,

상기 Re^{1}에 포함된 희토류 금속은 상기 Re^{2}에 포함된 희토류 금속과 금속의 종류 및 그 함량 중 하나 이상이 서로 상이한 것인

다상 구조 자석의 제조 방법.

청구항 2

제1항에 있어서,

상기 제1 분말 및 상기 제2 분말은 결정질인 것인 다상 구조 자석의 제조 방법.

청구항 3

제1항에 있어서,

상기 제1 분말 및 상기 제2 분말은 비정질인 것인 다상 구조 자석의 제조 방법.

청구항 4

제2항에 있어서,

상기 제1 분말 및 상기 제2 분말은 직경이 1 μm 이하인 결정립으로 이루어지는 것인 다상 구조 자석의 제조 방법.

청구항 5

제1항에 있어서,

상기 제1 분말과 상기 제2 분말은 1:9 내지 9:1의 중량비로 혼합되는 것인 다상 구조 자석의 제조 방법.

청구항 6

제1항에 있어서,

상기 제1 분말 및 상기 제2 분말은 각각 독립적으로 Re^{1}-Fe-B 또는 Re^{2}-Fe-B 의 조성을 갖는 합금을 준비하는 단계; 상기 합금을 용융한 후 급랭하여 리본을 제조하는 단계; 및 상기 리본을 분쇄하여 분말화하는 단계;를 통해 제조되는 것인 다상 구조 자석의 제조 방법.

청구항 7

제1항에 있어서,

상기 Re^1 및 상기 Re^2는 각각 독립적으로 Sc, Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb 및 Lu 중에서 선택된 1종 이상의 희토류 금속을 포함하는 것인 다상 구조 자석의 제조 방법.

청구항 8

제7항에 있어서,

상기 Re^2 는 $Nd_{1-x}Ce_x$ 의 조성을 가지며, 상기 x는 0.2 내지 1인 것인 다상 구조 자석의 제조 방법.

청구항 9

제1항에 있어서,

상기 제1 분말 및 상기 제2 분말은 제조되는 다상 구조 자석의 총 조성에 있어, Nd:Ce의 원자비가 7:3 내지 3:7이 되도록 혼합되는 것인 다상 구조 자석의 제조 방법.

청구항 10

제1항에 있어서,

상기 이방벌크화는 가압소결 하는 단계; 및 열간변형하는 단계;를 포함하는 것인 다상 구조 자석의 제조 방법.

청구항 11

제10항에 있어서,

상기 가압소결은 500 내지 900 ℃의 온도에서 50 내지 1000 MPa 로 가압하여 수행되는 것인 다상 구조 자석의 제조 방법.

청구항 12

제10항에 있어서,

상기 열간변형 공정은 500 내지 900 ℃의 온도에서 20 내지 500 MPa의 압력 하에 수행되는 것인 다상 구조 자석의 제조 방법.

청구항 13

제10항에 있어서,

상기 열간변형은 열간 압연, 열간 단조 및 열간 압출 중에서 선택되는 것인 다상 구조 자석의 제조 방법.

청구항 14

제10항에 있어서,

상기 열간변형은 하기 식 1로 표현되는 변형률이 1 내지 2가 되도록 수행되는 것인 다상 구조 자석의 제조

방법.

[식 1]

$\varepsilon = \ln(h_0/h)$

상기 식 1에서, 상기 ε는 변형률을 의미하고, h_0는 초기 시료의 높이이며, h는 변형 후 시료의 높이이다.

청구항 15

제1항에 있어서,

상기 이방벌크자석으로 제조하는 단계 이후에, 후열처리하는 단계;를 더 포함하는 것인 다상 구조 자석의 제조 방법.

청구항 16

제15항에 있어서,

상기 후열처리는 400 내지 800 ℃의 온도로 10 내지 600 분 동안 수행되는 것인 다상 구조 자석의 제조 방법.

청구항 17

Re^1-Fe-B 를 포함하는 제1상 결정립; Re^2-Fe-B 를 포함하는 제2상 결정립; 및 입계상; 을 포함하고,

상기 Re^1에 포함된 희토류 금속은 상기 Re^2에 포함된 희토류 금속과 금속의 종류 및 그 함량 중 하나 이상이 서로 상이하고,

상기 제1상 결정립 및 상기 제2상 결정립의 최대 직경이 1㎛ 이하이고,

상기 입계상은 상기 제1상 결정립 간의 공간; 상기 제2상 결정립 간의 공간; 및 상기 제1상 결정립 및 상기 제2상 결정립 간의 공간; 중 하나 이상의 위치에 존재하고,

상기 제1상 결정립은 상기 제1상 결정립의 외표면으로부터 중심 방향으로 Re^2가 확산되어 형성된 제1 확산영역을 포함하고,

상기 제2상 결정립은 상기 제2상 결정립의 외표면으로부터 중심 방향으로 Re^1이 확산되어 형성된 제2 확산영역을 포함하는 것인, 제1항에 따른 방법으로 제조된 다상 구조 자석.

청구항 18

제17항에 있어서,

상기 다상 구조 자석은 $Nd_aR_bFe_{100-a-b-c-d}M_cB_d$ 의 조성을 가지며, 상기 R은 Sc, Y, La, Ce, Pr, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb 및 Lu 중 1종 이상을 포함하고, 상기 M은 Ga, Co, Al, Cu, Nb, Ti, Si, Zr, Ta, V, Mo, Mn, Zn, Ni, Cr, Pb, Sn, In, Mg, Ag 및 Ge 중 1종 이상을 포함하고, 상기 a는 0 이상 20 이하이고, b는 0 이상 20 이하이고, c는 0 이상 15 이하이고, d는 0 이상 15 이하인 것인 다상 구조 자석의 제조 방법.

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 2020년 8월 20일에 한국특허청에 제출된 한국 특허출원 제10-2020-0104389호의 출원일의 이익을 주장

하며, 그 내용 전부는 본 발명에 포함된다.

[0002] 본 발명은 다상 구조 자석의 제조방법에 관한 것이다. 구체적으로, 보자력, 포화자속밀도, 잔류자속밀도가 높은 다상 구조 자석의 제조방법에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0004] 최근 각종 기기 및 장치의 연구와 개발이 활발해지면서, 부품으로 사용되는 자석의 대한 수요가 폭발적으로 증가하고 있다. 특히, Nd-Fe-B 자석의 경우 우수한 자성 특성으로 인해 그 수요가 점차 증가하고 있는 추세이다.

[0005] 그러나 Nd의 경우 희토류 금속(Rare Earth Metal)으로서, 지구 매장량이 매우 적으며 그에 따라 가격이 매우 높아 자석 가격 상승을 초래한다. 또한 Nd 자석의 수요가 증가함에 따라 추후 Nd 공급도 점점 더 어려워질 것으로 예상된다. 도 1은 중국의 희토류 원소 생산량 및 가격을 나타낸 그래프이다. 생산량이 비교적 적은 Nd의 가격이 높은 편인 것을 확인할 수 있다.

[0006] 이러한 문제를 해소하기 위해, La, Ce 와 같은 생산량이 더 많고 가격이 저렴한 다른 희토류 금속을 Nd 대신에 첨가하려는 시도가 증가하고 있다. 그러나 Nd 외의 다른 경희토류 금속을 첨가하는 경우, 자석의 자기 특성이 매우 열등하여 Nd-Fe-B 자석을 대체하기 어려운 상황이다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0008] 본 발명이 이루고자 하는 기술적 과제는 보자력이 우수한 다상 구조 자석의 제조방법을 제공하는 것이다.

[0009] 다만, 본 발명이 해결하고자 하는 과제는 상기 언급한 과제로 제한되지 않으며, 언급되지 않은 또 다른 과제들은 하기의 기재로부터 당업자에게 명확하게 이해될 수 있을 것이다.

과제의 해결 수단

[0011] 본 발명의 일 측면에 따르면, Re^1-Fe-B의 조성을 갖는 제1 분말 및 Re^2-Fe-B의 조성을 갖는 제2 분말을 혼합하여 혼합 분말을 제조하는 단계; 및 상기 혼합 분말을 이방벌크화하여 이방벌크자석으로 제조하는 단계;를 포함하는 다상 구조 자석의 제조 방법으로서, 상기 Re^1에 포함된 희토류 금속은 상기 Re^2에 포함된 희토류 금속과 금속의 종류 및 그 함량 중 하나 이상이 서로 상이한 것인 다상 구조 자석의 제조 방법이 제공된다.

[0012] 본 발명의 일 측면에 따르면, Re^1-Fe-B 를 포함하는 제1상 결정립; Re^2-Fe-B 를 포함하는 제2상 결정립; 및 입계상; 을 포함하고, 상기 Re^1에 포함된 희토류 금속은 상기 Re^2에 포함된 희토류 금속과 금속의 종류 및 그 함량 중 하나 이상이 서로 상이하고, 상기 제1상 결정립 및 상기 제2상 결정립의 최대 직경이 1㎛ 이하이고, 상기 입계상은 상기 제1상 결정립 간의 공간; 상기 제2상 결정립 간의 공간; 및 상기 제1상 결정립 및 상기 제2상 결정립 간의 공간; 중 하나 이상의 위치에 존재하고, 상기 제1상 결정립은 상기 제1상 결정립의 외표면으로부터 중심 방향으로 Re^2가 확산되어 형성된 제1 확산영역을 포함하고, 상기 제2상 결정립은 상기 제2상 결정립의 외표면으로부터 중심 방향으로 Re^1이 확산되어 형성된 제2 확산영역을 포함하는 것인, 제1항에 따른 방법으로 제조된 다상 구조 자석이 제공된다.

발명의 효과

[0014] 본 발명의 일 구현예에 따른 다상 구조 자석의 제조 방법은 결정립의 직경이 작아 자성 특성이 우수한 다상 구조 자석을 제공할 수 있다.

[0015] 본 발명의 일 구현예에 따른 다상 구조 자석의 제조 방법은 보자력, 잔류자속밀도 등이 향상되어 우수한 자기특

성을 보유하는 다상 구조 자석을 제공할 수 있다.

[0016] 본 발명의 일 구현예에 따른 다상 구조 자석은 우수한 자성 특성을 가지면서도 저렴한 가격으로 제조될 수 있다.

[0017] 본 발명의 일 구현예에 따른 다상 구조 자석은 단상 구조 자석보다 우수한 자성 특성을 보유할 수 있다.

[0018] 본 발명의 효과는 상술한 효과로 한정되는 것은 아니며, 언급되지 아니한 효과들은 본원 명세서로부터 당업자에게 명확히 이해될 수 있을 것이다.

도면의 간단한 설명

[0020] 도 1은 중국의 희토류 원소 생산량 및 가격을 나타낸 그래프이다.

도 2는 본 발명의 일 구현예에 따른 방법으로 제조된 다상 구조 자석의 단면 개략도이다.

도 3은 본 발명의 일 구현예에 따른 방법으로 제조된 다상 구조 자석의 자기 상호 작용을 나타낸 개략도이다.

도 4는 실시예 1-1에서 제조한 다상 구조 자석의 절단면의 SEM 이미지이다.

도 5는 실시예 2-1에서 제조한 다상 구조 자석의 절단면의 SEM 이미지이다.

도 6은 비교예 1에서 제조한 단상 구조 자석과 실시예 1-4에서 제조한 다상 구조 자석의 감자곡선을 비교한 그래프이다.

도 7은 비교예 2에서 제조한 단상 구조 자석과 실시예 2-4에서 제조한 다상 구조 자석의 감자곡선을 비교한 그래프이다.

도 8은 실시예 1-1 내지 1-5 에서 제조한 다상 구조 자석의 보자력, 잔류자화도 및 최대자기에너지적 그래프이다.

도 9는 실시예 2-1 내지 2-5에서 제조한 다상 구조 자석의 보자력, 잔류자화도 및 최대자기에너지적 그래프이다.

도 10은 실시예 3-1 내지 3-5에서 제조한 다상 구조 자석의 보자력 및 잔류자화도 그래프이다.

도 11은 실시예 4-1 내지 4-5에서 제조한 다상 구조 자석의 보자력 및 잔류자화도 그래프이다.

도 12는 실시예 5-1 내지 5-5에서 제조한 다상 구조 자석의 보자력 및 잔류자화도 그래프이다.

도 13에 실시예 1-1 및 실시예 1-4에서 제조한 다상구조 자석의 SEM 이미지(a), Ce 및 Nd 조성 분포에 대한 맵핑 이미지(b, c) 및 라인 스캔 결과(d)이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0022] 본 명세서에서 어떤 부분이 어떤 구성요소를 "포함" 한다고 할 때, 이는 특별히 반대되는 기재가 없는 한 다른 구성요소를 제외하는 것이 아니라 다른 구성 요소를 더 포함할 수 있는 것을 의미한다.

[0023] 이하, 본 발명에 대하여 더욱 상세하게 설명한다.

[0024] 본 발명의 일 구현예에 따르면, Re^1-Fe-B의 조성을 갖는 제1 분말 및 Re^2-Fe-B의 조성을 갖는 제2 분말을 혼합하여 혼합 분말을 제조하는 단계; 및 상기 혼합 분말을 이방벌크화하여 이방벌크자석으로 제조하는 단계;를 포함하는 다상 구조 자석의 제조 방법으로서, 상기 Re^1에 포함된 희토류 금속은 상기 Re^2에 포함된 희토류 금속과 금속의 종류 및 그 함량 중 하나 이상이 서로 상이한 것인 다상 구조 자석의 제조 방법이 제공된다.

[0025] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 다상 구조 자석의 제조 방법으로 제조되는 다상 구조 자석은 서로 다른 조성의 결정립을 포함하는 제1 분말 및 제2 분말로부터 제조되어 서로 다른 조성의 제1 결정립 및 제2 결정립을 포함하고, 상기 제1 결정립 및 제2 결정립은 외표면으로부터 다른 원소가 확산되어 형성된 확산영역을 포함함으로써 보자력 및 포화자화도와 같은 자기 특성이 우수할 수 있다.

[0027] 이하, 상기 각 단계에 대하여 구체적으로 설명한다.

[0028] 본 발명의 일 구현예에 따르면, Re^1-Fe-B의 조성을 갖는 제1 분말 및 Re^2-Fe-B의 조성을 갖는 제2 분말을 제조하는 단계를 먼저 수행할 수 있다.

[0029] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 제1 분말 및 상기 제2 분말은 각각 독립적으로 합금 리본을 분쇄하여 제조되거나, 합금 분말에 HDDR 공정을 수행하여 제조되는 것일 수 있다.

[0030] 구체적으로, 상기 제1 분말 및 상기 제2 분말은 각각 독립적으로 Re^1-Fe-B 또는 Re^2-Fe-B 의 조성을 갖는 합금을 준비하는 단계; 상기 합금을 용융한 후 급랭하여 리본을 제조하는 단계; 및 상기 리본을 분쇄하여 분말화하는 단계;를 통해 제조될 수 있으며, 상기 제1 분말 및 상기 제2 분말은 멜트 스피닝, 가스분사법, 수분사법, 고에너지밀 등의 해당 기술 분야에서 알려진 방법을 이용하여 제조될 수 있고, 상기 열거한 방법들로 제조 방법이 제한되지는 않는다.

[0031] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 합금을 준비하는 단계에서 희토류 금속, 철, 붕소 외에도 특성 개선을 위해 비희토류 금속을 첨가하여 합금을 제조할 수 있다. 예를 들어 Ga, Co, Al, Cu, Nb, Ti, Si, Zr, Ta, V, Mo, Mn, Zn, Ni, Cr, Pb, Sn, In, Mg, Ag, Ge 등을 첨가할 수 있고, 비희토류 금속은 약 10 몰% 이하의 함량으로 포함될 수 있다.

[0032] 다른 방법으로는, Re^1-Fe-B 또는 Re^2-Fe-B 의 조성을 갖는 합금 분말을 입수하여 HDDR 공정에 따라 수소화(Hydrogenation), 상분해(Disproportionation), 탈수소(Desorption) 및 재결합(Recombination) 공정을 거쳐 상기 제1 분말 및 상기 제2 분말을 제조할 수 있다. 상기 HDDR 공정을 통해 큰 결정립을 갖는 분말의 결정립을 미세화하여 다상 자석 분말의 원료로 사용할 수 있다.

[0033] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 제1 분말 및 상기 제2 분말은 결정질 또는 비정질일 수 있고, 바람직하게는 비정질일 수 있다. 각 분말은 제조 공정을 조절함으로써 결정질 또는 비정질로 제조될 수 있고, 예를 들어 냉각 속도를 조절하여 결정질 또는 비정질 분말을 제조할 수 있다.

[0034] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 제1 분말 및 상기 제2 분말은 비정질일 수 있다. 상기 제1 분말 및 상기 제2 분말이 비정질 분말인 경우, 제조되는 다상 구조 자석에 포함되는 불순물 상인 $ReFe_2$ 상이 보다 적게 형성되어 자기적 특성이 우수할 수 있다.

[0035] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 제1 분말 및 상기 제2 분말이 결정질 분말인 경우, 최대 직경이 1 μm 이하인 결정립으로 이루어지는 것일 수 있다. 최대 직경이 1 μm 이하로 작은 결정립으로 이루어짐으로써, 제조되는 다상 구조 자석의 자기적 특성이 우수할 수 있다.

[0036] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 제1 분말 및 상기 제2 분말은 등방성 분말 또는 이방성 분말일 수 있다. 구체적으로, 추후 분말을 혼합한 다음 수행하는 이방벌크화 공정에서 어떤 방법으로 이방벌크화 하는지에 따라 등방성 또는 이방성 분말을 선택하여 사용할 수 있다.

[0037] 예를 들어, 이방벌크화가 혼합 분말을 자장 정렬하는 단계; 및 가압소결하는 단계;를 포함하는 경우, 혼합 분말에 포함되는 제1 분말 및 제2 분말은 이방성 분말일 수 있다.

[0038] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 Re^1에 포함된 희토류 금속은 상기 Re^2에 포함된 희토류 금속과 금속의 종류 및 그 함량 중 하나 이상이 서로 상이하다.

[0039] 구체적으로, 상기 Re^1 및 상기 Re^2는 각각 독립적으로 Sc, Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb 및 Lu 중에서 선택된 1종 이상의 희토류 금속을 포함하는 것일 수 있고, Re^1 및 Re^2는 포함하는 희토류 금속의 종류가 상이하거나, 동종의 희토류 금속을 다른 함량으로 포함하거나, 포함하는 희토류 금속의 종류 및 각각의 함량이 서로 상이할 수 있다. 바람직하게는, Re^1 은 Nd 및 Pr을 포함하고, Re^2는 Nd, Ce 및 La을 포함할 수 있으며, 다르게는 Re^1 및 Re^2 모두 Nd 및 Ce를 포함하면서도 서로 그 함량이 다를 수 있다. 희토류 금속 원소는 상기 열거한 화학종으로 한정되지 않으며, 필요에 따라 상기 열거한 화학종 외의 다른 희토류 금속 원소를 사용할 수도 있다.

[0040] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 Re^2 는 $Nd_{1-x}Ce_x$ 의 조성을 가지며, 상기 x는 0.2 내지 1, 0.3 내지 1, 0.2 내지 0.8, 0.3 내지 0.8, 0.2 내지 0.6, 0.3 내지 0.6 또는 0.4 내지 0.6인 것일 수 있다. 상기 범위 내의 조성을 갖는 경우, 제조되는 자석의 자기적 특성이 우수할 수 있다.

[0041] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 제1 분말 및 제2 분말의 입자 직경은 3 내지 500 μm 일 수 있고, 구체적으로는 상기 제1 분말 및 제2 분말의 입자 직경은 3 μm 이상, 10 μm 이상, 50 μm 이상, 125 μm 이상일 수 있고, 500 μm 이하, 300 μm 이하, 200 μm 이하일 수 있다.

[0042] 본 발명의 일 구현예에 따르면, Re^1-Fe-B의 조성을 갖는 제1 분말 및 Re^2-Fe-B의 조성을 갖는 제2 분말을 혼합하여 혼합 분말을 제조한다.

[0043] 상기 혼합은 당해 기술분야에서 일반적으로 이용되는 방법을 통해 수행될 수 있고, 예를 들어 3D 믹서, 자기교반장치, 음향공명혼합기등의 기기를 사용하여 수행될 수 있다. 또한 상기 혼합은 제1 분말과 제2 분말이 균일하게 혼합될 때까지 수행될 수 있으며, 혼합 방법 및 사용 기기에 따라 혼합을 수행하는 시간이 달라질 수 있다.

[0044] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 제1 분말과 상기 제2 분말은 1:9 내지 9:1, 1:9 내지 7:3, 2.5:7.5 내지 9:1, 2.5:7.5 내지 7:3, 5:5 내지 9:1, 5:5 내지 7:3 또는 5:5 내지 6.25:3.75의 중량비로 혼합되는 것일 수 있다. 본 발명의 다상 구조 자석은 서로 다른 조성을 갖는 결정립을 포함하고, 그에 따라 형성되는 확산 영역에 의해 다상 구조를 가져 자성 특성이 우수할 수 있는 바, 상기 범위 내의 중량비로 제1 분말과 제2 분말을 혼합하는 경우 서로 다른 조성을 가지는 결정립 또는 결정립과 확산영역의 자기교환상호작용에 의한 자기특성 향상 효과가 있을 수 있다.

[0045] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 제1 분말 및 상기 제2 분말은 제조되는 다상 구조 자석의 총 조성에 있어, Nd:Ce의 원자비가 7:3 내지 3:7이 되도록 혼합되는 것일 수 있다. 즉, 상기 제1 분말 및 상기 제2 분말의 중량비는 각 분말의 조성과 제조되는 자석의 조성을 고려하여 조절될 수 있다. 예를 들어, 상기 제1 분말의 Re^1이 Nd 로 구성되고, 상기 제2 분말의 Re^2가 $Nd_{0.5}Ce_{0.5}$ 로 구성되는 경우, 제1 분말 대 제2 분말의 중량비는 4:6 이상일 수 있다.

[0047] 다음으로, 상기 혼합 분말을 이방벌크화하여 이방벌크자석으로 제조한다.

[0048] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 이방벌크화란 결정립의 결정학적 자화용이방향이 일 방향으로 정렬된 상태로 소결되어 원료 분말이 이방벌크자석으로 가공되는 공정을 의미한다.

[0049] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 이방벌크화는 상기 혼합 분말을 자장 정렬하는 단계; 및 가압소결하는 단계;를 포함하는 것일 수 있고, 또는 상기 혼합 분말을 먼저 가압소결 하는 단계; 및 열간변형하는 단계;를 포함하는 것일 수도 있다.

[0050] 상기 자장 정렬하는 단계는, 혼합 분말의 자화가 용이한 방향을 일 방향으로 정렬하는 공정이다. 구체적으로, 성형 몰드에 혼합 분말을 채우고 100 G 내지 70,000 G 의 자기장을 인가하여, 인가한 자기장의 방향으로 혼합 분말의 자화가 용이한 방향을 정렬하는 것일 수 있다. 또한, 자기장 인가 시 1 GPa 이하의 압력을 인가하여 분말을 성형할 수 있으나, 필수적으로 압력을 인가하여야 하는 것은 아니다.

[0051] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 혼합 분말을 먼저 가압소결할 수도 있다. 상기 가압소결은 소결이 이루어질 수 있다면 특별히 그 방법에 있어서 제한사항은 없으나, 예를 들면 핫 프레스 소결, 열간정수압 소결, 방전 플라즈마 소결 및 마이크로파 소결로 이루어진 군에서 선택되는 어느 하나의 방법에 의하여 수행되는 것일 수 있다. 상기 가압소결 공정은 자성분말을 조밀하게 결속시키는 단계로, 자석을 벌크화하는 단계라 할 수 있다.

[0052] 상기 가압소결은 예를 들어 핫프레스 장비를 이용하여 수행될 수 있으며, 구체적으로 챔버 내 몰드에 분말을 삽입한 후 진공 또는 불활성 가스 분위기에서 특정 온도까지 승온한 후 분말에 압력을 가하여 소결하는 장치를 이용하는 것일 수 있다.

[0053] 상기 가압소결은 500 내지 900 ℃의 온도에서 50 내지 1000 MPa 로 가압하여 수행되는 것일 수 있다. 상기 가압소결 단계에서 상기 혼합 분말은 벌크 형태로 가공될 수 있다.

[0054] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 열간변형 공정은 특정 방법으로 한정되지 않으며, 열간압출, 열간압연 및

열간단조 중에서 선택된 방법으로 수행되는 것일 수 있고, 바람직하게는 열간단조로 수행되는 것일 수 있다. 상기 열간변형 공정에서 결정립이 정렬되어 이방화될 수 있다.

[0055] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 열간변형 공정은 500 내지 900 ℃, 500 내지 800 ℃ 또는 500 내지 650 ℃의 온도에서, 20 내지 500 MPa, 50 내지 300 MPa 또는 50 내지 150 MPa 의 압력 하에 수행되는 것일 수 있다. 상기 범위 내의 온도 및 압력 범위 내에서 열간변형 공정을 수행하는 경우 분말의 벌크화와 결정립의 결정학적 이방화가 가능하며, 자기특성 향상 효과가 있을 수 있다.

[0056] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 열간변형은 벌크자석을 변형시키는 공정일 수 있고, 상기 벌크자석은 변형률이 1 내지 2가 되도록 열간변형으로 변형될 수 있다. 상기 변형률은 하기 식 1로 표현될 수 있다.

[0057] [식 1]

[0058] $\varepsilon = \ln(h_0/h)$

[0059] 상기 식 1에서, 상기 ε는 변형률을 의미하고, h_0는 초기 시료의 높이이며, h는 변형 후 시료의 높이이다.

[0060] 변형률이 상기 범위 내의 값을 만족하는 경우, 결정립 이방화에 의해 잔류자속밀도가 증가될 수 있다. 구체적으로, 열간변형 공정 중 구형의 결정립은 결정립 성장과 함께 판상의 형태로 형상이 변하게 될 수 있다. 판상의 형태는 자화가 용이한 방향의 수직한 방향으로 늘어난 형태에 해당할 수 있다. 결정립계의 입계상의 융점은 공정온도보다 낮아 공정 중 입계상은 액상으로 존재하게 되는데 이 때 시료를 가압하면 내부 결정립이 회전하면서 각 결정립의 자화가 용이한 방향이 가압 방향에 수평하게 정렬되어 결정학적 이방화될 수 있다.

[0061] 또한 상기 열간변형은 0.001/s 내지 1.0/s의 변형 속도로 벌크자석을 변형시킬 수 있고, 상기 변형 속도는 하기 식 2로 표현될 수 있다.

[0062] [식 2]

[0063] $\dot{\varepsilon} = \varepsilon / t$

[0064] 상기 $\dot{\varepsilon}$ 는 변형 속도이고, 상기 ε는 변형률이고, 상기 t는 시간이다.

[0065] 상기 변형속도는 분말의 조성, 결정립 직경 및 공정 수행 온도 등의 조건에 따라 달라질 수 있다.

[0067] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기와 같이 이방벌크자석을 제조한 후, 후열처리하여 다상 구조 자석을 제조할 수 있다.

[0068] 상기 후열처리 공정을 통해, Re^1 또는 Re^2 가 확산되어 확산영역을 증가시키고, 다상 구조 자석에 포함된 제1상 결정립 및 제2상 결정립 간의 자기상호작용을 상승시켜 보자력, 잔류자속 밀도 등 자기특성 향상효과를 얻을 수 있다.

[0069] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 후열처리는 400 내지 800 ℃, 500 내지 800 ℃ 또는 700 내지 800 ℃의 온도로 10 내지 600 분, 30 내지 500 분 또는 50 내지 200 분 동안 수행되는 것일 수 있다. 상기 온도 및 시간 범위 내의 조건으로 후열처리를 수행하는 경우, 제조되는 다상 구조 자석의 자기 상호작용을 더욱 효율적으로 상승시킬 수 있다.

[0071] 본 발명의 일 구현예에 따른 제조방법에 따라 제조된 다상 구조 자석은, Re^1-Fe-B 를 포함하는 제1상 결정립; Re^2-Fe-B 를 포함하는 제2상 결정립; 및 입계상; 을 포함하고, 상기 Re^1에 포함된 희토류 금속은 상기 Re^2에 포함된 희토류 금속의 종류 및 그 함량 중 하나 이상이 서로 상이하고, 상기 제1상 결정립 및 상기 제2상 결정립의 최대 직경이 1㎛ 이하이고, 상기 입계상은 상기 제1상 결정립 간의 공간; 상기 제2상 결정립 간의 공간; 및 상기 제1상 결정립 및 상기 제2상 결정립 간의 공간; 중 하나 이상의 위치에 존재하고, 상기 제1상 결정립은 상기 제1상 결정립의 외표면으로부터 중심 방향으로 Re^2가 확산되어 형성된 제1 확산영역을 포함하고, 상기 제2상 결정립은 상기 제2상 결정립의 외표면으로부터 중심 방향으로 Re^1이 확산되어 형성된 제2 확산영역을 포함한다.

[0072] 상기 다상 구조(Multi Main Phase; MMP)란, 제1상 결정립 및 제2상 결정립이 각각 Re^2를 포함하는 제1 확산영역 및 Re^1을 포함하는 제2 확산영역을 포함하여 다양한 상을 포함하는 구조를 의미할 수 있다. 이러한 다상 구조로 인해 본 발명의 일 구현예에 따른 방법으로 제조된 다상 구조 자석은 우수한 자성 특성을 보유할 수 있다.

[0073] 도 2는 본 발명의 일 구현예에 따른 다상 구조 자석의 단면 개략도이다. 이하, 도 2를 참조로 본 발명의 일 구현예에 따른 다상 구조 자석에 대하여 구체적으로 설명한다.

[0074] 본 발명의 일 구현예에 따른 다상 구조 자석(1)은 제1상 결정립(10); 제2상 결정립(20); 및 입계상(30)을 포함하고, 상기 제1상 결정립(10)은 제1 확산영역(110)을 포함하고, 상기 제2상 결정립(20)은 제2 확산영역(210)을 포함할 수 있다.

[0075] 상기 제1상 결정립(10)은 Re^1-Fe-B를 포함하고, 상기 제2상 결정립(20)은 Re^2-Fe-B를 포함한다. 상기 Re^1 및 상기 Re^2는 희토류 금속을 포함하고, 상기 Re^1에 포함된 희토류 금속의 종류는 상기 Re^2에 포함된 희토류 금속의 종류와 1종 이상이 서로 상이하다. 즉, 상기 Re^1 및 상기 Re^2는 각각 서로 다른 단일 종의 희토류 금속을 포함할 수 있고, 또는 1종 이상의 상이한 희토류 금속을 서로 다른 조성으로 포함할 수 있으며, 상기 제1상 결정립과 상기 제2상 결정립의 조성은 희토류 금속에 있어 상이할 수 있다.

[0076] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 Re^1 및 상기 Re^2는 각각 독립적으로 1종 이상의 희토류 금속을 포함할 수 있다. 구체적으로, 상기 Re^1 및 상기 Re^2는 Sc, Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb 및 Lu 중 1종 이상을 포함하는 것일 수 있으며, 예를 들어 Re^1 은 Nd를 포함하고, Re^2는 Nd 및 Ce를 포함할 수 있다. 바람직하게는, Re^1 은 Nd 및 Pr을 포함하고, Re^2는 Nd, Ce 및 La을 포함할 수 있다. 희토류 금속 원소는 상기 열거한 화학종으로 한정되지 않으며, 필요에 따라 다른 희토류 금속 원소를 사용할 수도 있다.

[0077] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 다상 구조 자석은 $Nd_aR_bFe_{100-a-b-c-d}M_cB_d$ 의 조성을 가지며, 상기 R은 Sc, Y, La, Ce, Pr, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb 및 Lu 중 1종 이상을 포함하고, 상기 M은 Ga, Co, Al, Cu, Nb, Ti, Si, Zr, Ta, V, Mo, Mn, Zn, Ni, Cr, Pb, Sn, In, Mg, Ag 및 Ge 중 1종 이상을 포함하고, 상기 a는 0 이상 20 이하이고, b는 0 이상 20 이하이고, c는 0 이상 15 이하이고, d는 0 이상 15 이하일 수 있다. 상기 조성은 제1상 결정립, 제2상 결정립 및 입계상의 조성을 모두 포함하는 총 조성으로서, 상기 조성식을 만족하는 것일 수 있다.

[0078] 본 발명의 일 구현예에 따르면, 상기 제1상 결정립(10)은 제1 확산영역(110)을 포함하고, 상기 제2상 결정립(20)은 제2 확산영역(210)을 포함할 수 있다. 상기 제1 확산영역(110) 및 상기 제2 확산영역(210)은, 각각 Re^2 및 Re^1이 제1상 결정립 및 제2상 결정립의 외표면으로부터 중심 방향으로 확산됨에 따라 형성되는 것일 수 있다. 즉, 상기 제1 확산영역(110) 및 상기 제2 확산영역(210)은 다상 구조 자석의 제조 과정에서 서로 다른 상의 희토류 금속이 침투확산됨으로써 형성되는 구조일 수 있다.

[0079] 본 발명의 일 구현예에 따른 제조방법에 따라 제조된 다상 구조 자석에 포함된 제1상 결정립(10) 및 제2상 결정립(20)은 애스펙트비가 1 초과 10 이하, 2 내지 5 또는 3 내지 4인 형태일 수 있다. 즉, 제1상 결정립(10) 및 제2상 결정립(20)이 본 발명의 일 구현예에 따른 제조방법에 따라 제조되면서 가압되어 결정립에 압력이 가해지면서 납작한 형태로 성형될 수 있고, 애스펙트비가 상기 범위 내인 형태의 다상 구조 자석을 제조할 수 있다.

[0080] 본 발명의 일 구현예에 따른 다상 구조 자석(1)은 입계상(30)을 포함할 수 있고, 상기 입계상(30)은 상기 제1상 결정립 간의 공간, 상기 제2상 결정립 간의 공간 및/또는 상기 제1상 결정립 및 상기 제2상 결정립 간의 공간에 위치하는 것일 수 있다. 즉, 상기 입계상(30)은 서로 구별되는 독립적인 결정립 사이의 공간에 위치할 수 있다.

[0081] 상기 입계상(30)은, 다상 구조 자석(1)의 제조 과정에 있어, 고온 또는 고압에 의해 융해되는 영역일 수 있고, 이에 따라 제1상 결정립(10)에 포함된 Re^1 및 제2상 결정립(20)에 포함된 Re^2가 확산되는 통로의 역할을 수행하는 것일 수 있다.

[0082] 도 3에 본 발명의 일 구현예에 따른 다상 구조의 자기 상호 작용을 개략도로 나타내었다.

[0083] 도 2 및 도 3을 참조하면, 본 발명의 일 구현예에 따른 방법으로 제조된 다상 구조 자석은 상기 제1 확산영역

(110), 상기 제2 확산영역(210) 및 상기 입계상(30)이 자기 상호 작용에 영향을 미칠 수 있고, 이에 따라 다상 구조 자석의 자성 특성이 우수할 수 있다. 구체적으로, 상기 제1 확산영역(110) 및 상기 제2 확산영역(210)을 포함하는 다상 구조 자석의 경우, 제1상 결정립의 중심부(미도시)와 제1 확산영역(110) 의 단거리에 따른 자기 교환 상호 작용이 우수할 수 있고, 동일하게 제2상 결정립의 중심부(미도시)와 제2 확산영역(110) 의 단거리에 따른 자기 교환 상호 작용이 우수하여 다상 구조 자석의 자기적 특성이 우수할 수 있으며(도 3의 (a)), 동시에 서로 다른 조성의 제1상 결정립(10) 및 제2상 결정립(20) 간에도 자기 교환 상호 작용이 우수하여(도 3의 (b)) 다상 구조 자석의 자기적 특성이 더욱 우수할 수 있다. 상기 자기 교환 상호 작용이란, 서로 다른 조성을 갖는 자성체에 있어 비교적 자성이 강한 자성체가 자성이 보다 낮은 자성체의 자화반전을 방지하는 형태로 상호작용하는 것을 의미할 수 있다.

[0084] 본 발명의 일 구현예에 따른 방법으로 제조된 다상 구조 자석은 보자력이 5 내지 50 kOe 이상일 수 있다. 구체적으로, 상기 다상 구조 자석은 보자력이 5 kOe 이상, 10 kOe 이상, 15 kOe 이상일 수 있고, 50 kOe 이하, 40 kOe 이하, 35 kOe 이하일 수 있다.

[0086] 이하, 본 발명을 구체적으로 설명하기 위해 실시예를 들어 상세하게 설명하기로 한다. 그러나, 본 발명에 따른 실시예들은 여러 가지 다른 형태로 변형될 수 있으며, 본 발명의 범위가 아래에서 기술하는 실시예들에 한정되는 것으로 해석되지 않는다. 본 명세서의 실시예들은 당업계에서 평균적인 지식을 가진 자에게 본 발명을 보다 완전하게 설명하기 위해 제공되는 것이다.

[0089] **제조예 1**

[0090] Fe, Nd, FeB, Ga, Co 금속을 아크멜팅법(arc-melting)으로 $Nd_{13.6}Fe_{73.6}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$ 조성의 잉곳으로 제조한 후, 상기 잉곳을 28m/s의 속도로 멜트 스피닝하여 리본으로 제조하였다. 제조한 상기 리본을 최대 직경 100 μm의 입자로 분쇄하여 결정질의 제1 분말을 제조하였다.

[0092] **제조예 2**

[0093] 제조예 1에 있어, $(Nd_{0.6}Ce_{0.4})_{13.6}Fe_{bal}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$ 조성의 잉곳을 사용한 것을 제외하고는 제조예 1과 동일한 방법으로 결정질의 제2 분말을 제조하였다.

[0095] **제조예 3**

[0096] 제조예 1에 있어, $(Nd_{0.8}Ce_{0.2})_{13.6}Fe_{bal}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$ 조성의 잉곳을 사용한 것을 제외하고는 제조예 1과 동일한 방법으로 결정질의 제3 분말을 제조하였다.

[0098] **제조예 4**

[0099] 제조예 1에 있어, $(Nd_{0.7}Ce_{0.3})_{13.6}Fe_{bal}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$ 조성의 잉곳을 사용한 것을 제외하고는 제조예 1과 동일한 방법으로 결정질의 제4 분말을 제조하였다.

[0101] **제조예 5**

[0102] 제조예 1에 있어, 잉곳을 35m/s의 속도로 멜트 스피닝하여 리본으로 제조한 것을 제외하고는 제조예 1과 동일한 방법으로 비정질의 제5 분말을 제조하였다.

[0104] **제조예 6**

[0105] 제조예 5에 있어, $(Nd_{0.6}Ce_{0.4})_{13.6}Fe_{bal}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$ 조성의 잉곳을 사용한 것을 제외하고는 제조예 5와 동일한 방법으로 비정질의 제6 분말을 제조하였다.

[0107] **제조예 7**

[0108] 제조예 5에 있어, $(Nd_{0.7}Ce_{0.3})_{13.6}Fe_{bal}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$ 조성의 잉곳을 사용한 것을 제외하고는 제조예 5와 동일한 방법으로 비정질의 제7 분말을 제조하였다.

[0110] **제조예 8**

[0111] 제조예 5에 있어, $(Nd_{0.4}Ce_{0.6})_{13.6}Fe_{bal}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$ 조성의 잉곳을 사용한 것을 제외하고는 제조예 5와 동일한 방법으로 비정질의 제8 분말을 제조하였다.

[0113] **제조예 9**

[0114] 제조예 5에 있어, $(Nd_{0.2}Ce_{0.8})_{13.6}Fe_{bal}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$ 조성의 잉곳을 사용한 것을 제외하고는 제조예 5와 동일한 방법으로 비정질의 제9 분말을 제조하였다.

[0116] **제조예 10**

[0117] 제조예 5에 있어, $Ce_{13.6}Fe_{bal}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$ 조성의 잉곳을 사용한 것을 제외하고는 제조예 5와 동일한 방법으로 비정질의 제10 분말을 제조하였다.

[0119] 상기 제조예 1 내지 10의 제조 조건을 정리하면 하기 표와 같다.

표 1

[0121]

	조성	결정성 여부
제조예 1	$Nd_{13.6}Fe_{73.6}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$	결정질
제조예 2	$(Nd_{0.6}Ce_{0.4})_{13.6}Fe_{bal}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$	결정질
제조예 3	$(Nd_{0.8}Ce_{0.2})_{13.6}Fe_{bal}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$	결정질
제조예 4	$(Nd_{0.7}Ce_{0.3})_{13.6}Fe_{bal}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$	결정질
제조예 5	$Nd_{13.6}Fe_{73.6}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$	비정질
제조예 6	$(Nd_{0.6}Ce_{0.4})_{13.6}Fe_{bal}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$	비정질
제조예 7	$(Nd_{0.7}Ce_{0.3})_{13.6}Fe_{bal}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$	비정질
제조예 8	$(Nd_{0.4}Ce_{0.6})_{13.6}Fe_{bal}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$	비정질
제조예 9	$(Nd_{0.2}Ce_{0.8})_{13.6}Fe_{bal}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$	비정질
제조예 10	$Ce_{13.6}Fe_{bal}B_{5.6}Ga_{0.6}Co_{6.6}$	비정질

[0122] **실시예 1-1**

[0123] 제조예 1에서 제조한 제1 분말 및 제조예 2에서 제조한 제2 분말을 1:3 의 중량비가 되도록 혼합하여 혼합 분말을 제조하였다. 상기 혼합 분말을 가압소결 장비의 몰드에 투입하여 장착하고, 700 ℃ 에서 100MPa로 3분간 가

압 소결하여 벌크자석으로 제조하였다. 제조된 벌크자석을 700 ℃에서 0.1 s^{-1}의 변형속도로, 변형률이 1.5가 되도록 열간 변형하여 이방 벌크 자석을 제조하였다.

[0125] **실시예 2-1**

[0126] 실시예 1-1에 있어서, 제1 분말 대신 제5 분말을 사용하고, 제2 분말 대신 제6 분말을 사용한 것을 제외하고는 실시예 1-1과 동일한 방법으로 이방 벌크 자석을 제조하였다.

[0128] **실시예 3-1**

[0129] 실시예 2-1에 있어서, 상기 제6 분말 대신 제8 분말을 사용하고, 제5 분말 대 제8 분말의 중량비가 1:1이 되도록 혼합한 것을 제외하고는 실시예 2-1과 동일한 방법으로 이방 벌크 자석을 제조하였다.

[0131] **실시예 4-1**

[0132] 실시예 2-1에 있어서, 상기 제6 분말 대신 제9 분말을 사용하고, 제5 분말 대 제9 분말의 중량비가 5:3이 되도록 혼합한 것을 제외하고는 실시예 2-1과 동일한 방법으로 이방 벌크 자석을 제조하였다.

[0134] **실시예 5-1**

[0135] 실시예 2-1에 있어서, 상기 제6 분말 대신 제10 분말을 사용하고, 제5 분말 대 제10 분말의 중량비가 7:3이 되도록 혼합한 것을 제외하고는 실시예 2-1과 동일한 방법으로 이방 벌크 자석을 제조하였다.

[0137] **실시예 1-2, 2-2, 3-2, 4-2, 5-2**

[0138] 실시예 1-1, 2-1, 3-1, 4-1 또는 5-1에서 제조한 다상 구조 자석을 600 ℃ 에서 1시간 동안 후열처리하여 다상 구조 자석을 제조하였다.

[0140] **실시예 1-3, 2-3, 3-3, 4-3, 5-3**

[0141] 실시예 1-1, 2-1, 3-1, 4-1 또는 5-1에서 제조한 다상 구조 자석을 600 ℃ 에서 3시간 동안 후열처리하여 다상 구조 자석을 제조하였다.

[0143] **실시예 1-4, 2-4, 3-4, 4-4, 5-4**

[0144] 실시예 1-1, 2-1, 3-1, 4-1 또는 5-1에서 제조한 다상 구조 자석을 700 ℃ 에서 1시간 동안 후열처리하여 다상 구조 자석을 제조하였다.

[0146] **실시예 1-5, 2-5, 3-5, 4-5, 5-5**

[0147] 실시예 1-1, 2-1, 3-1, 4-1 또는 5-1에서 제조한 다상 구조 자석을 700 ℃ 에서 3시간 동안 후열처리하여 다상 구조 자석을 제조하였다.

[0149] **비교예 1**

[0150] 제조예 4에서 제조한 제4 분말을 준비한 후, 가압소결 장비에 투입하여 장착하고, 700 ℃ 에서 100MPa로 3분간 가압 소결하여 벌크자석으로 제조하였다. 제조된 벌크자석을 700 ℃에서 0.1 s^{-1}의 변형속도로, 변형률이 1.5가 되도록 열간 변형하여 이방 벌크 자석을 제조하였다. 제조한 자석을 700 ℃ 에서 1시간 동안 후열처리하여 단상

구조 자석을 제조하였다.

[0152] **비교예 2**

[0153] 비교예 1에 있어서, 제4 분말 대신 제7 분말을 사용한 것을 제외하고는 비교예 1과 동일한 방법으로 단상 구조 자석을 제조하였다.

[0155] **SEM 이미지의 확인**

[0156] 실시예 1-1 및 2-1 에서 제조한 다상 구조 자석을 절단하고, 절단면을 주사 전자 현미경(SEM, JEOL ltd., 7001F)을 이용하여 x5000 내지 x50000 배율로 촬영하였다.

[0157] 도 4 및 도 5에 실시예 1-1 및 2-1 에서 제조한 다상 구조 자석의 절단면의 SEM 이미지를 각각 나타내었다.

[0158] 도 4를 참조하면, 실시예 1-1 에서 제조한 다상 구조 자석은 약 200 nm의 직경을 갖는 결정립을 포함하는 것을 관찰할 수 있다. 또한, 도 5를 참조하면 실시예 2-1에서 제조한 다상 구조 자석 역시 유사한 형상의 결정립을 포함하며, 내부 결정립이 단일 방향으로 보다 잘 정렬되어 있는 것을 확인할 수 있다. 후술하는 바와 같이 이러한 결정립 형상에 따라 잔류자화값과 같은 자석의 자기 특성이 비교적 더 우수할 수 있고, 자기교환상호작용이 더 효과적으로 나타날 수 있다.

[0160] **보자력 및 잔류자화도의 측정 및 평가**

[0161] 실시예 1-1 내지 5-5에서 제조한 다상 구조 자석 및 비교예 1에서 제조한 단상 구조 자석을 3 cm x 3 cm x 1 cm 크기로 가공한 후 7T의 펄스 자계를 이용하여 착자하였다. 착자된 시료는 진동 시료 분석장치 (VSM, LakeShore)을 이용하여 -1.8 T 내지 1.8 T 범위의 자기장을 가하여 스윕하며 보자력 및 잔류자화도의 자기 특성을 측정하였다.

[0162] 도 6에는 실시예 1-4(적색) 및 비교예 1(흑색)에서 제조한 자석의 감자곡선을 나타내었고, 도 7에는 실시예 2-4(적색) 및 비교예 2(흑색)에서 제조한 자석의 감자곡선을 나타내었다.

[0163] 도 6 및 7을 참조하면, 단상 구조 자석보다 다상 구조 자석의 자기적 특성이 더 우수한 것을 확인할 수 있다. 또한, 다상 구조 자석에 있어서는 결정질 분말을 사용한 경우보다 비정질 분말을 사용한 경우의 자석의 자기적 특성(잔류자화)이 우수한 것을 확인할 수 있다.

[0164] 도 8 내지 12에 각각 실시예 1-1 내지 1-5, 실시예 2-1 내지 2-5, 실시예 3-1 내지 3-5, 실시예 4-1 내지 4-5, 실시예 5-1 내지 5-5에서 제조한 다상 구조 자석의 보자력, 잔류자화도 및 최대자기에너지적 그래프를 나타내었다.

[0165] 도 8 내지 12을 참조하면, 후열처리를 함으로써 다상 구조 자석의 보자력, 잔류자화도 및 최대자기에너지적이 향상되는 것을 확인할 수 있다. 구체적으로, 대부분의 실시예에 있어 600 ℃에서 3 시간동안 후열처리하거나 또는 700 ℃에서 1 시간동안 후열처리한 경우에 가장 우수하게 자기적 특성이 향상되는 것을 확인할 수 있다. 특히, 실시예 3-4의 자기 특성이 가장 우수한 것을 확인할 수 있다.

[0167] **후열처리에 따른 확산 영역 확장 확인**

[0168] 실시예 1-1 및 실시예 1-4에서 제조한 다상구조 자석의 주사전자현미경(SEM) 이미지를 촬영하였다. 구체적으로, 주사전자현미경(SEM, JEOL ltd., 7001F)를 이용하여 x5000 배율로 실시예 1-1 및 실시예 1-4에서 제조한 다상구조 자석의 SEM 이미지를 촬영하고, SEM 이미지 상에 분말 간의 경계 곡선을 나타내었다. 또한, 에너지 분산형 분광기(EDS)로 Ce 및 Nd 원소의 맵핑 이미지를 촬영하고, 결정립 간의 직선(SEM 이미지 상의 직선) 상 라인 스캔으로 Ce 및 Nd 원소의 함량을 측정하였다.

[0169] 도 13에 실시예 1-1 및 실시예 1-4에서 제조한 다상구조 자석의 SEM 이미지(a), Ce 및 Nd 조성 분포에 대한 맵핑 이미지(b, c) 및 라인 스캔 결과(d)를 나타내었다. 실시예 1-4에서 제1 분말과 제2 분말의 경계면에서 Ce 과 Nd의 확산영역이 더 넓은 것을 확인할 수 있다. 즉, 후열 처리를 통해 서로 다른 조성의 희토류 금속이 더 깊은

영역까지 확산될 수 있으며, 이에 따라 제조된 다상 구조 자석의 자성 특성이 우수한 것을 알 수 있다.

[0170] 도 8 내지 13을 종합하면, 적절한 온도 및 시간에서 후열처리를 통해 제 1분말의 Re^1 성분과 제 2분말의 Re^2 성분이 서로 확산되는 영역이 증가함으로써 보다 우수한 자기특성을 지니는 다상 구조를 형성할 수 있고, 후열처리 온도 및 시간이 제조되는 다상 구조 자석의 자기적 특성에 큰 영향을 미치는 것을 확인할 수 있다.

[0172] 상기 내용을 종합하면, 본 발명의 일 구현예에 따른 제조방법으로 제조된 다상 구조 자석은 제1상 결정립, 제2상 결정립 및 확산영역을 포함하여 보자력 및 잔류자화도가 우수한 것을 확인할 수 있다.

부호의 설명

[0174] 1: 다상 구조 자석

10: 제1상 결정립

20: 제2상 결정립

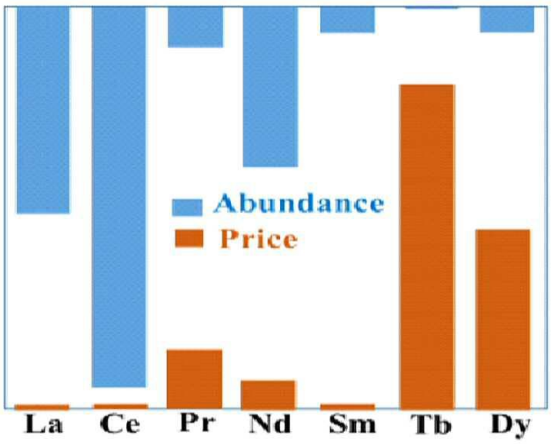
30: 입계상

110: 제1 확산영역

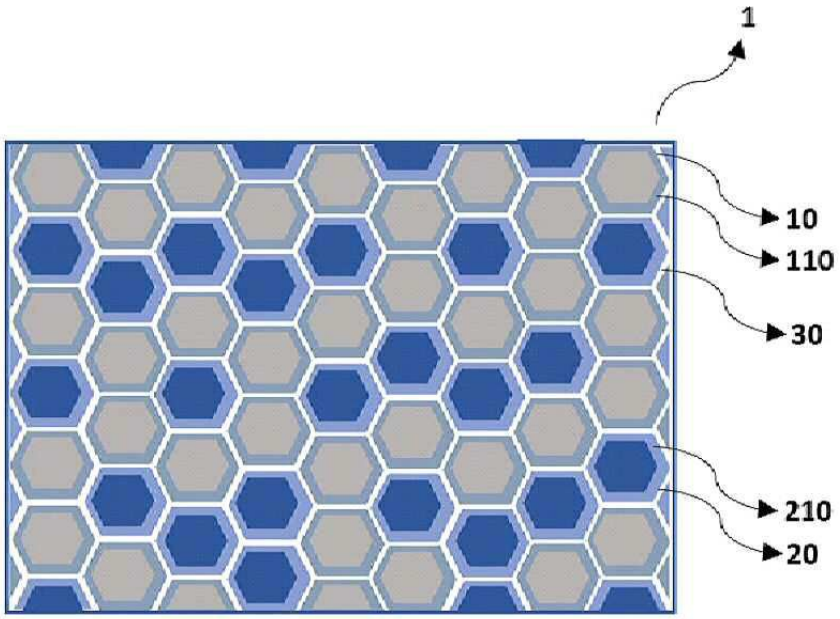
210: 제2 확산영역

도면

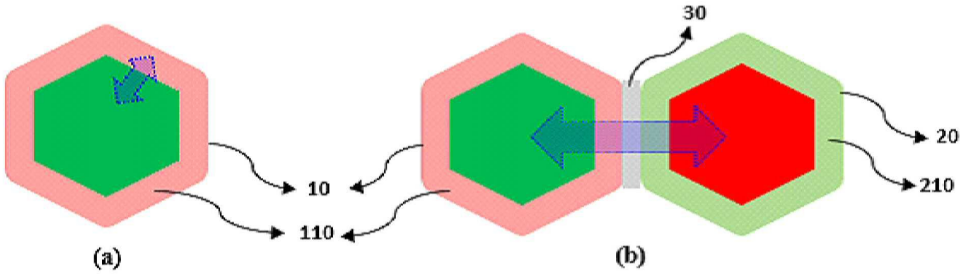
도면1



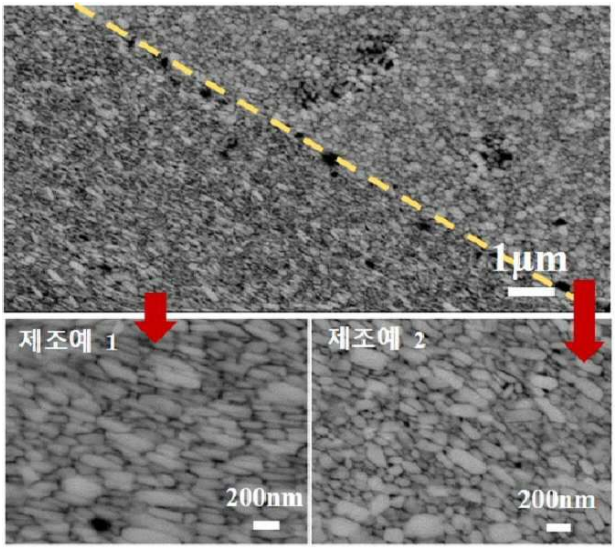
도면2



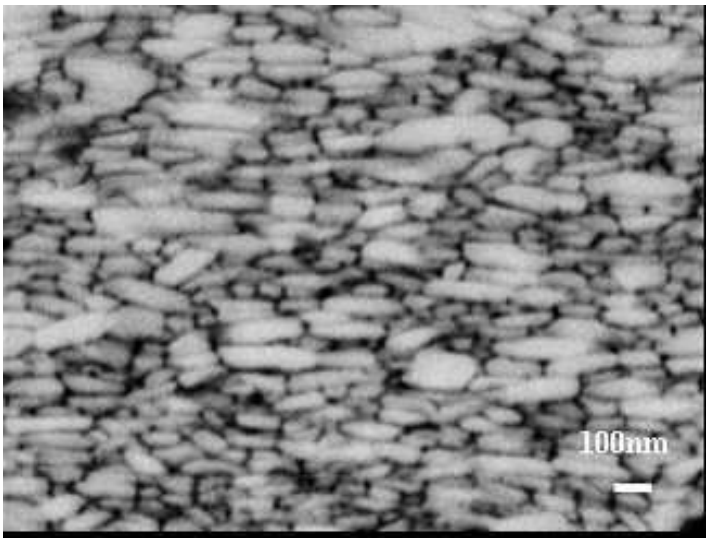
도면3



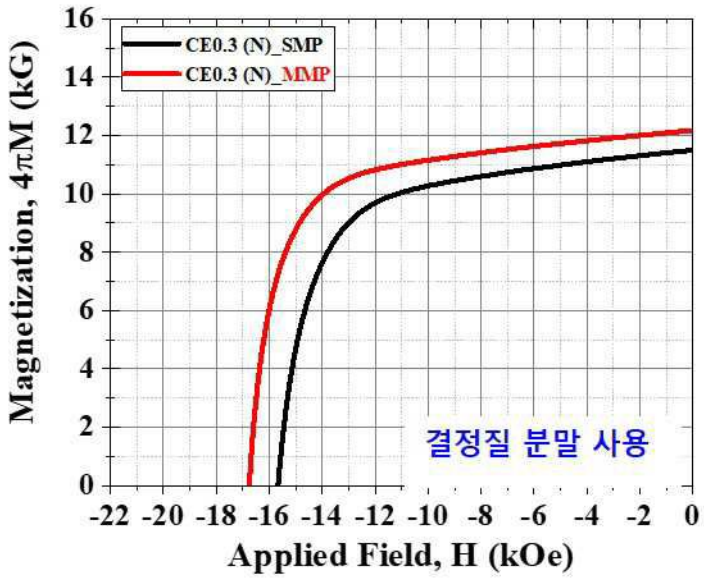
도면4



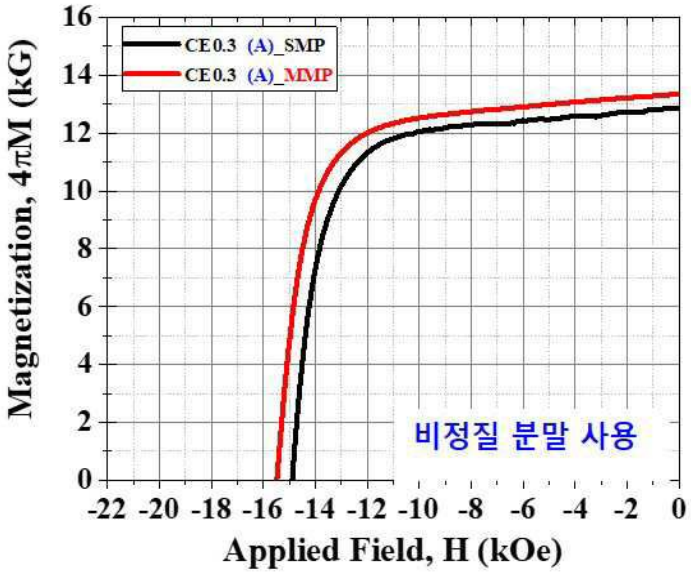
도면5


100nm

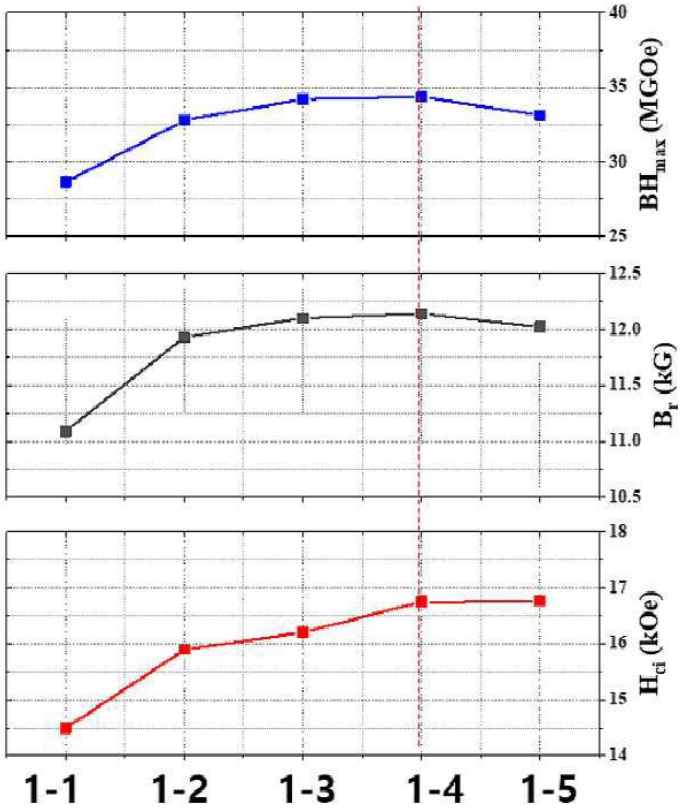
도면6


CE0.3 (N)_SMP
CE0.3 (N)_MMP
결정질 분말 사용
Magnetization, 4πM (kG)
Applied Field, H (kOe)
16
14
12
10
8
6
4
2
0
-22 -20 -18 -16 -14 -12 -10 -8 -6 -4 -2 0

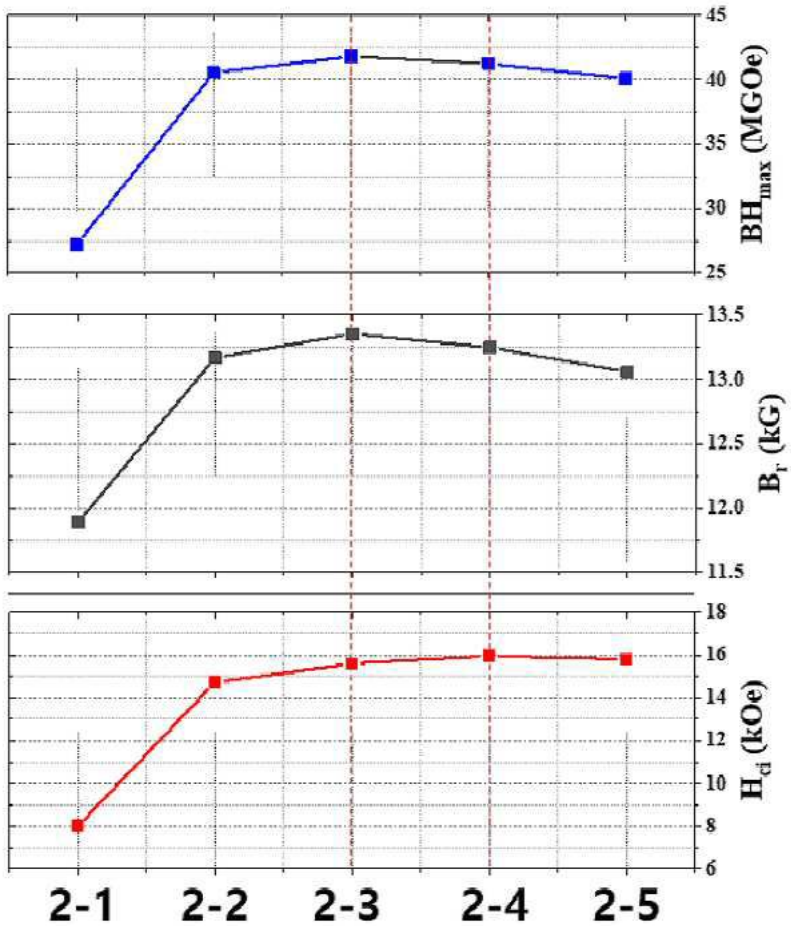
도면7


CE0.3 (A)_SMP
CE0.3 (A)_MMP
비정질 분말 사용
Magnetization, 4πM (kG)
Applied Field, H (kOe)

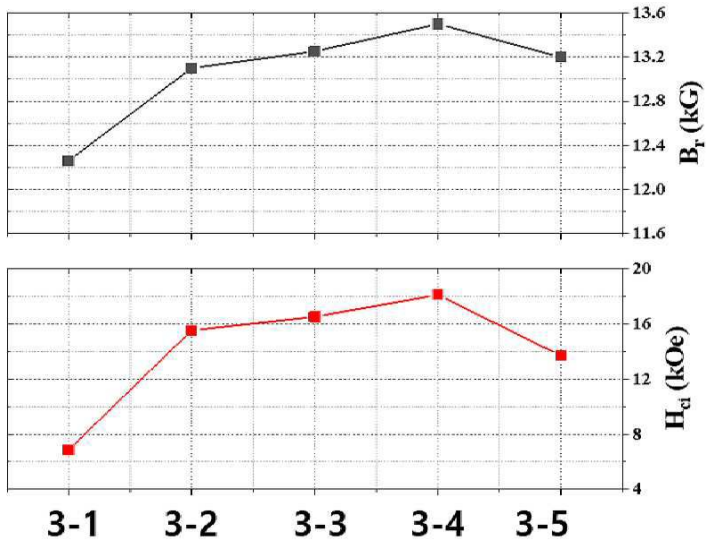
도면8


BHmax (MGOe)
Br (kG)
Hci (kOe)
1-1
1-2
1-3
1-4
1-5

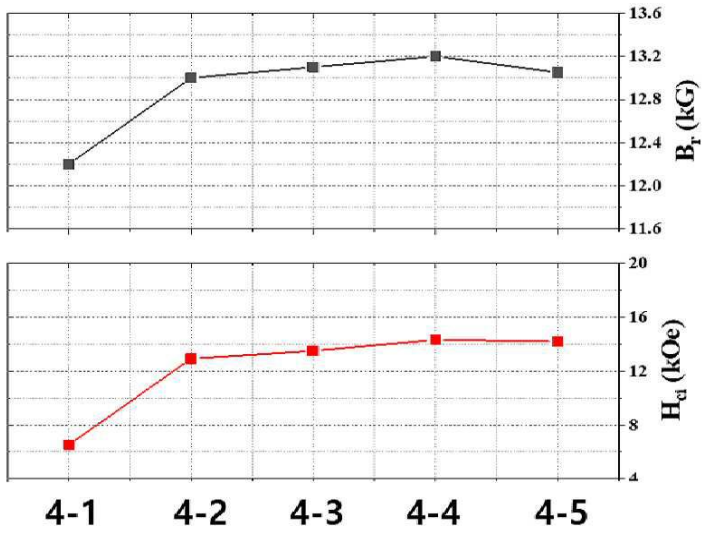
도면9


45
40
35
30
25
BH_{max} (MGOe)
13.5
13.0
12.5
12.0
11.5
B_r (kG)
18
16
14
12
10
8
6
H_{cJ} (kOe)
2-1
2-2
2-3
2-4
2-5

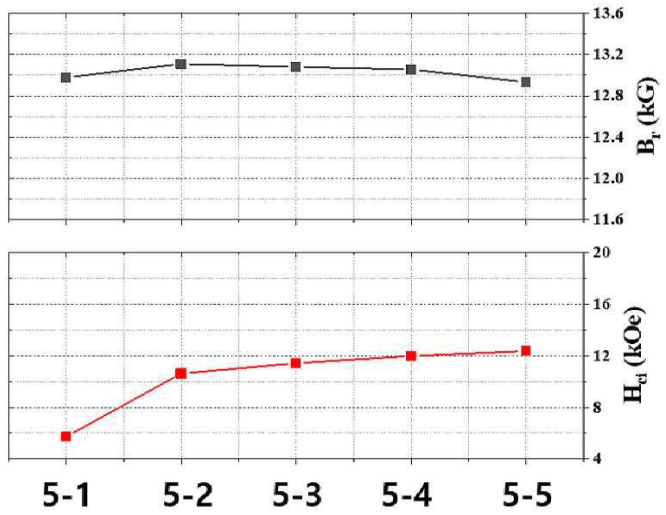
도면10


13.6
13.2
12.8
12.4
12.0
11.6
B_r (kG)
20
16
12
8
4
H_{cJ} (kOe)
3-1
3-2
3-3
3-4
3-5

도면11



도면12



도면13

