(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2025년05월08일
(11) 등록번호 10-2803480
(24) 등록일자 2025년04월29일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
H01F 41/02 (2006.01) *C22C 38/00* (2006.01)
H01F 1/057 (2006.01)
(52) CPC특허분류
H01F 41/0293 (2013.01)
C22C 38/005 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2024-0002045
(22) 출원일자 2024년01월05일
심사청구일자 2024년01월05일
(56) 선행기술조사문헌
인용발명1 : 'Enhancing the grain boundary diffusion efficiency of Tb for Nd-Fe-B magnets using dual-alloy diffusion source' *
인용발명2 : Magnetic performance and microstructure of NdFeB sintered magnet by diffusing Tb10Pr90-x(Cu,Al,Ga)x alloys' *
인용발명3 : 일본 공개특허공보 특개2018-164004호(2018.10.18.) 1부.*
인용발명4 : 공개특허공보 제10-2015-0033423호(2015.04.01.) 1부.*
*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
한국재료연구원
경상남도 창원시 성산구 창원대로 797 (상남동)
(72) 발명자
김태훈
경상남도 창원시 성산구 가음정로67번길 57
이정구
경기도 성남시 분당구 백현로 265
이설미
경상남도 창원시 성산구 용지로111번길 8
(74) 대리인
특허법인 피씨알

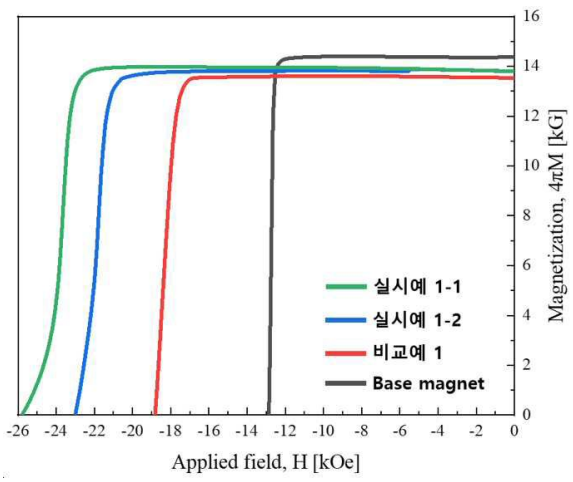
전체 청구항 수 : 총 9 항 심사관 : 최진호

(54) 발명의 명칭 **난융금속 합금 및 희토류 합금이 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석의 제조방법 및 이로부터 제조된 R-Fe-B계 영구자석**

(57) 요 약

본 발명은 난융금속 합금 및 희토류 합금이 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석의 제조방법 및 이로부터 제조된 R-Fe-B계 영구자석에 관한 것으로, 값 비싼 중희토류 원소보다 저렴한 경희토류 원소를 포함하는 경희토류 합금을 입계확산하여 제조비용이 저렴할 수 있고, 영구자석 내부의 결정립 성장(조대화)을 효과적으로 제한하고, Pr-쉘의 두께를 감소시키며, 상기 결정립 주변의 Pr 농도를 증가시켜 보자력 등의 자기적 특성이 향상된 영구자석을 제조할 수 있다.

대 표 도 - 도2



(52) CPC특허분류
H01F 1/057 (2013.01)

명 세 서

청구범위

청구항 1

R-Fe-B계 영구자석에 난융금속 합금 및 희토류 합금을 도포 및 건조하는 단계; 및

상기 난융금속 합금 및 희토류 합금이 도포 및 건조된 R-Fe-B계 영구자석을 열처리하여 입계확산하는 단계;를 포함하고,

상기 R은 Nd, Pr, Dy, Ce, La, Gd, Tb 또는 Y인 것이고,

상기 난융금속 합금은 Zr, Fe, Ti, Ni, Ta, W, Nb, V, Mo, Cu, Al, Ga, Mn, Zn 및 Co로부터 선택되는 하나 이상으로 이루어지는 것인, 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석의 제조방법.

청구항 2

삭제

청구항 3

제1항에 있어서,

상기 난융금속 합금의 도포량은 상기 R-Fe-B계 영구자석 100 중량부에 대하여, 0.1 중량부 내지 5 중량부인 것인, 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석의 제조방법.

청구항 4

제1항에 있어서,

상기 희토류 합금은 Dy, Tb, La, Ce, Pr, Nd 및 Sm으로부터 선택되는 하나 이상을 포함하는 것인, 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석의 제조방법.

청구항 5

제1항에 있어서,

상기 희토류 합금은 Pr, Al, Cu 및 Ga을 포함하는 것인, 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석의 제조방법.

청구항 6

제1항에 있어서,

상기 희토류 합금의 도포량은 상기 R-Fe-B계 영구자석 100 중량부에 대하여, 1 중량부 내지 20 중량부인 것인, 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석의 제조방법.

청구항 7

제1항에 있어서,

상기 건조는 30 ℃ 내지 500 ℃의 온도로 1 분 내지 60 분 동안 수행하는 것인, 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석

의 제조방법.

청구항 8

제1항에 있어서,

상기 입계확산하는 단계는 700 ℃ 내지 1100 ℃의 온도로 1 시간 내지 30 시간 동안 1차 열처리하고, 400 ℃ 내지 700 ℃의 온도로 1 시간 내지 10 시간 동안 2차 열처리하는 것인, 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석의 제조방법.

청구항 9

제1항에 있어서,

상기 R-Fe-B계 영구자석에 난융금속 합금 및 희토류 합금을 도포 및 건조하는 단계 전에,

상기 R-Fe-B계 영구자석에 폴리비닐알코올(polyvinyl alcohol)을 포함하는 혼합물을 도포하는 단계;를 더 포함하는 것인, 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석의 제조방법.

청구항 10

제1항의 제조방법으로 제조되고, 보자력이 15 kOe 내지 35 kOe인 것인, R-Fe-B계 영구자석.

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] 본 발명은 난융금속 합금 및 희토류 합금이 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석의 제조방법 및 이로부터 제조된 R-Fe-B계 영구자석에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0003] Nd-Fe-B계 영구자석과 같은 R-Fe-B계 영구자석은 전자 정보, 자동차 공업, 의료 기기, 에너지, 교통 등 여러 분야에서 쓰인다. 특히 최근 경량, 소형화 추세에 맞춰서 공작 기기, 전자 정보기기, 가전용 전자 제품, 휴대 전화, 로봇용 모터, 풍력 발전기, 자동차용 소형 모터 및 구동 모터 등의 여러가지 제품에 사용되고 있다.

[0004] 이러한 영구자석에 대하여, 자기적 성능을 개선하기 위하여 후처리 방법 중 하나로 입계확산공정(Grain Boundary Diffusion Process)이 제안되고 있다. 입계확산공정은 영구자석의 계면상에서 화학 반응성이 매우 큰 점을 이용하여 영구자석의 표면에 중희토류 원소를 코팅한 후 열처리하는 방법이다. 이러한 입계확산공정은 중희토류 원소를 입계 주변, 즉 강자성 결정립 표면 부위에만 집중 분포하도록 하여 결정립이 자기이방성이 높은 층으로 둘러싸이는 코어-쉘 구조를 형성하도록 함으로써 높은 보자력을 얻을 수 있다.

[0005] 다만, 기존에 계면 확산법에서 사용하는 중희토류 원소는 가격이 매우 비싸다는 문제점이 있고, 가격이 저렴한 경희토류 원소를 사용하면 중희토류 원소를 사용할 때보다 보자력이 낮은 문제점이 있다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0007] 본 발명이 해결하고자 하는 과제는 가격이 저렴한 경희토류 원소를 입계확산하여 우수한 보자력을 가지는 R-Fe-B계 영구자석의 제조방법을 제공하는 것이다.

[0008] 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

[0010] 본 발명의 일 측면에 따르면, R-Fe-B계 영구자석에 난융금속 합금 및 희토류 합금을 도포 및 건조하는 단계; 및 상기 난융금속 합금 및 희토류 합금이 도포 및 건조된 R-Fe-B계 영구자석을 열처리하여 입계확산하는 단계;를 포함하고, 상기 R은 Nd, Pr, Dy, Ce, La, Gd, Tb 또는 Y인 것인, 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석의 제조방법을 제공한다.

[0011] 본 발명의 다른 일 측면에 따르면, 상기 제조방법으로 제조되고, 보자력이 15 kOe 내지 35 kOe인 것인, R-Fe-B계 영구자석을 제공한다.

발명의 효과

[0013] 본 발명의 일 실시상태에 따른 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석의 제조방법은 영구자석 내부의 결정립 성장(조대화)을 효과적으로 제한하고, Pr-쉘의 두께를 감소시키며, 상기 결정립 주변의 Pr 농도를 증가시켜 보자력 등의 자기적 특성이 향상된 영구자석을 제조할 수 있다.

[0014] 본 발명의 일 실시상태에 따른 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석의 제조방법은 희토류 합금으로 값 비싼 중희토류 원소 대신 저렴한 경희토류 원소를 사용하여 제조비용이 저렴할 수 있다.

[0015] 본 발명의 일 실시상태에 따른 제조방법으로 제조된 난융금속 합금 및 희토류 합금이 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석은 보자력 등의 자기적 특성이 우수할 수 있다.

[0016] 본 발명의 효과는 상술한 효과로 한정되는 것은 아니며, 언급되지 아니한 효과들은 본원 명세서로부터 당업자에게 명확히 이해될 수 있을 것이다.

도면의 간단한 설명

[0018] 도 1은 $Pr_{70}Cu_{15}Al_{10}Ga_5$ 합금의 융점을 측정한 결과를 나타낸 것이다.

도 2는 난융금속 합금($Zr_{25}Fe_{75}$) 및 희토류 합금이 입계확산된 영구자석(실시예 1-1 및 실시예 1-2), 희토류 합금이 입계확산된 영구자석(비교예 1) 및 입계확산 공정을 하지 않은 기본 자석(Base magnet)의 보자력 및 자속밀도를 측정한 결과를 나타낸 것이다.

도 3은 난융금속 합금($Ti_{74}Ni_{26}$) 및 희토류 합금이 입계확산된 영구자석(실시예 2-1 및 실시예 2-2), 희토류 합금이 입계확산된 영구자석(비교예 1) 및 입계확산 공정을 하지 않은 기본 자석(Base magnet)의 보자력 및 자속밀도를 측정한 결과를 나타낸 것이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0019] 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.

[0020] 본원 명세서 전체에서, 단위 “중량부”는 각 성분간의 중량의 비율을 의미한다.

[0021] 본원 명세서 전체에서, 단위 “at%”는 각 성분간의 원소의 비율을 의미한다.

[0022] 본원 명세서 전체에서, “희토류 합금”은 희토류 금속을 하나 이상 포함하는 합금을 의미한다. 또한, “경희토류 합금”은 경희토류 금속을 하나 이상 포함하는 합금을 의미하고, “중희토류 합금”은 중희토류 금속을 하나 이상 포함하는 합금을 의미한다.

[0023] 본원 명세서 전체에서 “난융금속 합금”은 난융금속을 하나 이상 포함하는 합금을 의미한다.

[0024] 이하, 본 발명에 대하여 더욱 상세하게 설명한다.

[0026] 본 발명의 일 실시상태는 R-Fe-B계 영구자석에 난융금속 합금 및 희토류 합금을 도포 및 건조하는 단계; 및 상기 난융금속 합금 및 희토류 합금이 도포 및 건조된 R-Fe-B계 영구자석을 열처리하여 입계확산하는 단계;를 포함하고, 상기 R은 Nd, Pr, Dy, Ce, La, Gd, Tb 또는 Y인 것인, 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석의 제조방법을 제공한다. 상기 난융금속 합금을 입계확산하여 R-Fe-B계 영구자석 내부의 결정립 성장(조대화)을 효과적으로 제한하고, Pr-쉘의 두께를 감소시키며, 상기 결정립 주변의 Pr 농도를 증가시켜 보자력 등의 자기적 특성이 향상된

R-Fe-B계 영구자석을 제조할 수 있다. 따라서, 상기 제조방법으로 제조된 난융금속 합금 및 희토류 합금이 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석은 희토류 합금만 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석 및 입계확산되지 않은 R-Fe-B계 영구자석(기본 자석)보다 보자력 등의 자기적 특성이 우수할 수 있다.

[0027] 본 발명의 일 실시상태에 따르면, R-Fe-B계 영구자석에 난융금속 합금 및 희토류 합금을 도포 및 건조하는 단계;는 순서와 상관없이 동시에 또는 순차적으로 수행될 수 있다. 구체적으로, 난융금속 합금 및 희토류 합금을 동시에 도포 및 건조, 난융금속 합금을 도포 및 건조한 다음 희토류 합금을 도포 및 건조, 또는 희토류 합금을 도포 및 건조한 다음 난융금속 합금을 도포 및 건조하는 것일 수 있다. 또한, 난융금속 합금(또는 희토류 합금)을 먼저 도포 및 건조하는 경우, 후술하는 폴리비닐알코올을 포함하는 혼합물을 추가로 도포한 다음 희토류 합금(또는 난융금속 합금)을 도포 및 건조하는 것일 수 있다.

[0028] 본 발명의 일 실시상태에 따르면, 상기 난융금속 합금은 Zr, Fe, Ti, Ni, Ta, W, Nb, V, Mo, Cu, Al, Ga, Mn, Zn 및 Co로부터 선택되는 하나 이상을 포함하는 것일 수 있다. 구체적으로, 상기 난융금속 합금은 Zr, Fe, Ti 및 Ni 로부터 선택되는 하나 이상을 포함하는 것일 수 있다. 또한, 상기 난융금속 합금은 전술한 금속을 둘 이상 포함하고, 유테틱(eutectic) 합금을 이루는 것일 수 있다. 상기 난융금속 합금이 유테틱 성질을 가짐으로써, 용융 온도가 높은 난융금속을 포함하는 난융금속 합금의 용융 온도를 낮출 수 있고, 이로 인하여 난융금속 합금의 입계확산 효율을 향상시킬 수 있다. 더욱 구체적으로, 상기 난융금속 합금은 유테틱 성질을 가지는 $Zr_{25}Fe_{75}$ 또는 $Ti_{74}Ni_{26}$일 수 있다. 전술한 난융금속 합금으로 입계확산함으로써, 영구자석 내부의 결정립 성장(조대화)을 효과적으로 제한하고, Pr-쉘의 두께를 감소시키며, 상기 결정립 주변의 Pr 농도를 증가시켜 보자력 등의 자기적 특성이 향상된 R-Fe-B계 영구자석을 제조할 수 있다.

[0029] 본 발명의 일 실시상태에 따르면, 상기 난융금속 합금의 도포량은 상기 R-Fe-B계 영구자석 100 중량부에 대하여, 0.1 중량부 내지 5 중량부인 것일 수 있다. 구체적으로, 상기 난융금속 합금의 도포량은 0.1 중량부 내지 5 중량부, 0.1 중량부 내지 3 중량부, 0.1 중량부 내지 2 중량부, 0.1 중량부 내지 1.5 중량부, 0.1 중량부 내지 1 중량부, 0.5 중량부 내지 5 중량부, 0.5 중량부 내지 4 중량부, 0.5 중량부 내지 2 중량부, 0.5 중량부 내지 1.5 중량부 또는 0.5 중량부 내지 1 중량부일 수 있다. 전술한 도포량으로 난융금속 함금을 도포하고, 입계확산함으로써, 영구자석 내부의 결정립 성장(조대화)을 효과적으로 제한하고, Pr-쉘의 두께를 감소시키며, 상기 결정립 주변의 Pr 농도를 증가시켜 보자력 등의 자기적 특성이 향상된 R-Fe-B계 영구자석을 제조할 수 있다. 반면, 난융금속 합금의 도포량이 전술한 범위보다 적을 경우, 상기 난융금속 합금으로 입계확산하는 효과가 미미할 수 있고, 난융금속 합금의 도포량이 전술한 범위보다 많을 경우, 희토류 합금의 입계확산을 방해하여 입계확산된 영구자석의 자기적 특성이 저하될 수 있다.

[0030] 본 발명의 일 실시상태에 따르면, 상기 희토류 합금은 Dy(디스프로슘), Tb(터븀), La(란탄넘), Ce(세륨), Pr(프라세오디뮴), Nd(네오디뮴) 및 Sm(사마륨)으로부터 선택되는 하나 이상을 포함하는 것일 수 있다. 전술한 희토류 원소를 포함하는 희토류 합금이 입계확산된 영구자석은 입계확산되지 않은 기본자석보다 보자력이 우수할 수 있다. 나아가, 상기 희토류 합금은 경희토 합금인 La, Ce, Pr, Nd 및 Sm으로부터 선택되는 하나 이상일 수 있다. 중희토류 원소(금속)보다 저렴한 전술한 경희토류 원소(금속)을 포함하는 경희토류 합금을 사용하여, 제조비용이 저렴할 수 있다.

[0031] 본 발명의 일 실시상태에 따르면, 상기 희토류 합금은 Pr(프라세오디뮴), Al(알루미늄), Cu(구리) 및 Ga(갈륨)을 포함하는 것일 수 있다. 구체적으로, 상기 Dy, Tb, La, Ce, Pr, Nd 및 Sm으로부터 선택되는 하나 이상을 포함하고, Al, Cu 및 Ga를 더 포함할 수 있다. 상기 희토류 합금은 총 원소에 대하여 60 at% 내지 80 at%, 65 at% 내지 80 at%, 70 at% 내지 80 at%, 75 at% 내지 80 at%, 60 at% 내지 75 at%, 65 at% 내지 75 at%, 67.5 at% 내지 72.5 at% 또는 70 at%의 Pr을 포함할 수 있고, 희토류 합금 총 원소에 대하여 5 at% 내지 25 at%, 10 at% 내지 25 at%, 15 at% 내지 25 at%, 20 at% 내지 25 at%, 5 at% 내지 20 at%, 10 at% 내지 20 at%, 15 at% 내지 20 at%, 12.5 at% 내지 17.5 at% 또는 15 at%의 Cu를 포함할 수 있고, 희토류 합금 총 원소에 대하여 5 at% 내지 15 at%, 7.5 at% 내지 15 at%, 10 at% 내지 15 at%, 12.5 at% 내지 15 at%, 5 at% 내지 12.5 at%, 7.5 at% 내지 12.5 at%, 10 at% 내지 12.5 at% 또는 10 at%의 Al을 포함할 수 있고, 희토류 합금 총 원소에 대하여 0.1 at% 내지 10 at%, 0.5 at% 내지 10 at%, 1 at% 내지 10 at%, 3 at% 내지 10 at%, 5 at% 내지 10 at%, 7 at% 내지 10 at%, 0.1 at% 내지 8 at%, 0.5 at% 내지 8 at%, 1 at% 내지 8 at%, 2 at% 내지 8 at%, 4 at% 내지 6 at% 또는 5 at%의 Ga를 포함할 수 있다. 상기 희토류 합금이 전술함 범위의 Pr, Cu, Al 및 Ga의 함량을 포함할 경우, 순수한 Pr보다 융점을 낮출 수 있고, 이로 인하여 희토류 합금의 입계확산 효율을 향상시킬 수 있다.

[0032] 구체적으로, 도 1은 $Pr_{70}Cu_{15}Al_{10}Ga_5$ 합금의 융점을 측정한 결과를 나타낸 것으로, 순수한 Pr의 융점은 930 ℃이지만, $Pr_{70}Cu_{15}Al_{10}Ga_5$ 합금의 융점은 711 ℃로 순수한 Pr보다 융점이 낮은 것을 확인하였다.

[0033] 본 발명의 일 실시상태에 따르면, 상기 희토류 합금의 도포량은 상기 R-Fe-B계 영구자석 100 중량부에 대하여, 1 중량부 내지 20 중량부인 것일 수 있다. 구체적으로, 상기 희토류 합금의 도포량은 1 중량부 내지 20 중량부, 1 중량부 내지 15 중량부, 1 중량부 내지 10 중량부, 5 중량부 내지 15 중량부, 5 중량부 내지 13 중량부, 5 중량부 내지 10 중량부, 7 중량부 내지 15 중량부, 7 중량부 내지 12 중량부 또는 7 중량부 내지 9 중량부일 수 있다. 전술한 도포량으로 희토류 함금을 도포하고, 입계확산함으로써, 입계확산되지 않은 R-Fe-B계 영구자석(기본 자석)보다 보자력 등의 자기적 특성이 우수한 R-Fe-B계 영구자석을 제조할 수 있다.

[0034] 본 발명의 일 실시상태에 따르면, 상기 건조는 30 ℃ 내지 500 ℃의 온도로 1 분 내지 60 분 동안 수행하는 것일 수 있다. 구체적으로, 상기 건조 온도는 30 ℃ 내지 500 ℃, 30 ℃ 내지 250 ℃, 30 ℃ 내지 150 ℃, 30 ℃ 내지 100 ℃, 50 ℃ 내지 500 ℃, 50 ℃ 내지 300 ℃, 50 ℃ 내지 150 ℃, 50 ℃ 내지 100 ℃, 60 ℃ 내지 100 ℃ 또는 70 ℃ 내지 90 ℃이고, 상기 건조 온도는 1 분 내지 60 분, 1 분 내지 40 분, 1 분 내지 20 분, 1 분 내지 10 분, 5 분 내지 60 분, 5 분 내지 30 분, 5 분 내지 20 분 또는 5 분 내지 15 분일 수 있다. 전술한 온도 및 시간 범위로 건조함으로써, 후술하는 폴리비닐알코올을 포함하는 혼합물을 효과적으로 건조시킬 수 있고, 난융금속 합금 및 희토류 합금의 입계확산 효율을 향상시킬 수 있다.

[0035] 본 발명의 일 실시상태에 따르면, 상기 입계확산하는 단계는 700 ℃ 내지 1100 ℃의 온도로 1 시간 내지 30 시간 동안 1차 열처리하고, 400 ℃ 내지 700 ℃의 온도로 1 시간 내지 10 시간 동안 2차 열처리하는 것일 수 있다. 구체적으로, 상기 1차 열처리 온도는 700 ℃ 내지 1100 ℃, 700 ℃ 내지 1050 ℃, 700 ℃ 내지 1000 ℃, 800 ℃ 내지 1100 ℃, 800 ℃ 내지 1050 ℃, 800 ℃ 내지 1000 ℃, 900 ℃ 내지 1100 ℃, 900 ℃ 내지 1050 ℃, 900 ℃ 내지 1000 ℃, 950 ℃ 내지 1100 ℃, 950 ℃ 내지 1050 ℃ 또는 950 ℃ 내지 1000 ℃일 수 있고, 상기 1차 열처리 시간은 1 시간 내지 30 시간, 1 시간 내지 25 시간, 1 시간 내지 15 시간, 5 시간 내지 30 시간, 5 시간 내지 25 시간, 5 시간 내지 20 시간, 10 시간 내지 30 시간, 10 시간 내지 25 시간, 10 시간 내지 20 시간 또는 12 시간 내지 18 시간일 수 있다. 또한, 상기 2차 열처리 온도는 400 ℃ 내지 700 ℃, 400 ℃ 내지 650 ℃, 400 ℃ 내지 600 ℃, 450 ℃ 내지 700 ℃, 450 ℃ 내지 650 ℃, 450 ℃ 내지 600 ℃, 500 ℃ 내지 700 ℃, 500 ℃ 내지 650 ℃ 또는 500 ℃ 내지 600 ℃일 수 있고, 상기 2차 열처리 시간은 1 시간 내지 10 시간, 1 시간 내지 8 시간, 1 시간 내지 5 시간, 1 시간 내지 3 시간, 1 시간 내지 2 시간, 2 시간 내지 10 시간, 2 시간 내지 6 시간 또는 2 시간 내지 4 시간일 수 있다. 전술한 온도 및 시간 범위로 1차 열처리함으로써, 난융금속 합금 및 희토류 금속이 용융되어 R-Fe-B계 영구자석의 내부로 입계확산이 원활하게 이루어 질 수 있다. 또한, 전술한 온도 및 시간 범위로 2차 열처리함으로써, 입계확산된 희토류, Cu, Al, Ga 등과 같은 원소들에 의하여 R-Fe-B계 영구자석 내부에 R-rich 상이 증가할 수 있고, 보자력 등의 자기적 특성이 향상된 R-Fe-B계 영구자석을 제조할 수 있다.

[0036] 본 발명의 일 실시상태에 따르면, 상기 R-Fe-B계 영구자석에 난융금속 합금 및 희토류 합금을 도포 및 건조하는 단계 전에, 상기 R-Fe-B계 영구자석에 폴리비닐알코올(polyvinyl alcohol)을 포함하는 용액을 도포하는 단계;를 더 포함하는 것일 수 있다. 상기 폴리비닐알코올을 포함하는 혼합물은 용매를 더 포함할 수 있고, 상기 용매는 메탄올, 에탄올, 프로판올 등의 C1-C4의 알코올일 수 있다. 상기 폴리비닐알코올을 포함하는 혼합물은 접착제 역할로써, R-Fe-B계 영구자석에 난융금속 합금 및 희토류 금속이 더 잘 부착될 수 있게 하고, 이로 인하여 상기 난융금속 합금 및 희토류 합금의 입계확산 효율을 향상시킬 수 있다.

[0037] 본 발명의 일 실시상태는 상기 제조방법으로 제조되고, 보자력이 15 kOe 내지 35 kOe인 것인, R-Fe-B계 영구자석을 제공한다. 구체적으로, 상기 R-Fe-B계 영구자석은 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석일 수 있고, 더욱 구체적으로 난융금속 합금 및 희토류 합금이 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석일 수 있다. 또한, 상기 난융금속 합금 및 희토류 합금이 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석의 결정립은 코어-쉘 구조일 수 있고, 구체적으로, $R_2Fe_{14}B$ 상의 코어와 $R_{2-x}R^1_xFe_{14}B$ 상의 쉘을 가지는 것일 수 있다. 여기서, 상기 R^1은 입계확산된 희토류 합금의 희토류 원소일 수 있다.

[0038] 상기 난융금속 합금 및 희토류 합금이 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석의 보자력은 15 kOe 내지 35 kOe, 15 kOe 내지 30 kOe, 15 kOe 내지 28 kOe, 20 kOe 내지 35 kOe, 20 kOe 내지 30 kOe, 20 kOe 내지 28 kOe, 22 kOe 내지 35 kOe, 22 kOe 내지 30 kOe, 22 kOe 내지 28 kOe 또는 22 kOe 내지 26 kOe일 수 있고, 상기 보자력은 5 T 자장을 인가하여 측정된 것일 수 있다. 상기 난융금속 합금 및 희토류 금속이 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석이

전술한 보자력을 가짐으로써, 희토류 합금만 입계확산된 R-Fe-B계 영구자석 또는 기본 R-Fe-B계 영구자석보다 더 우수한 보자력 등의 자기적 특성을 나타낼 수 있다.

[0040] 이하, 본 발명을 구체적으로 설명하기 위해 실시예, 실험예를 들어 상세하게 설명하기로 한다. 그러나, 본 발명에 따른 실시예, 실험예들은 여러 가지 다른 형태로 변형될 수 있으며, 본 발명의 범위가 아래에서 기술하는 실시예, 실험예들에 한정되는 것으로 해석되지 않는다. 본 명세서의 실시예, 실험예들은 당업계에서 평균적인 지식을 가진 자에게 본 발명을 보다 완전하게 설명하기 위해 제공되는 것이다.

[0042] **제조예 1. 희토류 합금의 제조**

[0043] Pr 34.504 g, Al 0.944 g, Cu 3.336 g 및 액상의 Ga 1.22 g을 3.5 kW 전기를 인가하여 용융시킨 후, 빠른 속도로 회전하는 휠(wheel)에 부어서 급냉하였고(멜트 스피닝 공정), 리본 형태의 희토류 합금을 얻었다. 상기 희토류 합금의 조성비는 Pr 70 at%, Cu 15 at%, Al 10 at% 및 Ga 5 at%($Pr_{70}Cu_{15}Al_{10}Ga_5$)이다.

[0045] **실시예 1-1. 난융금속 합금 및 희토류 합금이 입계확산된 영구자석의 제조**

[0046] 상기 Nd-Fe-B계 영구자석(기본 자석, Base magnet, 가로 12.6 mm, 세로 13.5 mm, 두께 3.7 mm)을 샌드페이퍼(sand paper)로 닦은 다음, 폴리비닐알코올(polyvinyl alcohol, PVA), 에탄올이 혼합된 혼합물(접착 물질)을 도포하였다.

[0047] 상기 폴리비닐알코올이 도포된 영구자석에 난융금속 합금($Zr_{25}Fe_{75}$)을 도포하고, 80 ℃의 온도로 10 분 동안 건조하였다. 그 후, 상기 건조된 영구자석에 상기 제조예 1의 희토류 합금($Pr_{70}Cu_{15}Al_{10}Ga_5$)을 도포하고, 80 ℃에서 10 분 동안 건조하였다. 이 때, 상기 난융금속 합금($Zr_{25}Fe_{75}$)은 상기 영구자석 100 중량부에 대하여, 0.5 중량부를 도포하였고, 상기 희토류 합금($Pr_{70}Cu_{15}Al_{10}Ga_5$)은 상기 영구자석 100 중량부에 대하여, 8 중량부를 도포하였다.

[0048] 상기 난융금속 합금($Zr_{25}Fe_{75}$) 및 희토류 합금($Pr_{70}Cu_{15}Al_{10}Ga_5$)이 건조된 영구자석을 970 ℃의 온도로 15 시간 동안 1차 열처리하고, 550 ℃의 온도로 2 시간 동안 2차 열처리하여 난융금속 합금($Zr_{25}Fe_{75}$) 및 희토류 합금($Pr_{70}Cu_{15}Al_{10}Ga_5$)이 입계확산된 영구자석을 제조하였다.

[0050] **실시예 1-2, 실시예 2-1 및 실시예 2-2**

[0051] 난융금속 합금의 종류 및 도포량을 하기 표 1과 같이 조절한 것을 제외하고, 상기 실시예 1-1과 동일한 방법으로, 난융금속 합금($Zr_{25}Fe_{75}$ 또는 $Ti_{74}Ni_{26}$) 및 희토류 합금($Pr_{70}Cu_{15}Al_{10}Ga_5$)이 입계확산된 영구자석을 제조하였다. 하기 표 1의 난융금속 합금 및 희토류 합금의 도포량은 상기 영구자석(기본자석, Base magnet) 100 중량부 기준의 중량부를 나타낸 것이다. 또한, 난융금속합금 및 희토류 합금의 종류에서 숫자는 at %를 나타낸 것이다.

표 1

[0052]

	난융금속 합금의 종류	난융금속 합금의 도포량	희토류 합금의 종류	희토류 합금의 도포량
실시예 1-1	$Zr_{25}Fe_{75}$	0.5	$Pr_{70}Cu_{15}Al_{10}Ga_5$	8
실시예 1-2	$Zr_{25}Fe_{75}$	1	$Pr_{70}Cu_{15}Al_{10}Ga_5$	8
실시예 2-1	$Ti_{74}Ni_{26}$	0.5	$Pr_{70}Cu_{15}Al_{10}Ga_5$	8
실시예 2-2	$Ti_{74}Ni_{26}$	1	$Pr_{70}Cu_{15}Al_{10}Ga_5$	8
비교예 1	-	-	$Pr_{70}Cu_{15}Al_{10}Ga_5$	8

[0054] **비교예 1. 희토류 합금이 입계확산된 영구자석의 제조**

[0055] 난융금속 합금을 도포 및 건조하는 공정을 수행한 것을 제외하고, 상기 실시예 1-1과 동일한 방법으로 희토류 합금($Pr_{70}Cu_{15}Al_{10}Ga_5$)이 입계확산된 영구자석을 제조하였다.

[0057] **실험예 1. 자기적 특성 평가**

[0058] 상기 실시예 1-1, 실시예 1-2, 실시예 2-1, 실시예 2-2 및 비교예 1의 입계확산된 영구자석 및 입계확산 공정을 하지 않은 기본 자석(Base magnet, Nd-Fe-B계 영구자석)을 펄스 자기장(pulsed magnetic field)을 이용하여 5 T의 자장에서 인가하여 착자하였다. 그 다음, 상온에서 BH 히스테리시스 루프 측정기(BH Hysteresis loop tracer)를 사용하여 인가자장 0 kOe에서 -30 kOe까지 변화를 주어 착자된 자석의 탈자곡선(보자력 및 자속밀도)을 측정하였다. 이때, 자장인가 방향은 자석이 착자된 방향의 반대 방향으로 인가하였으며, 그 결과를 도 2 및 도 3에 나타내었다.

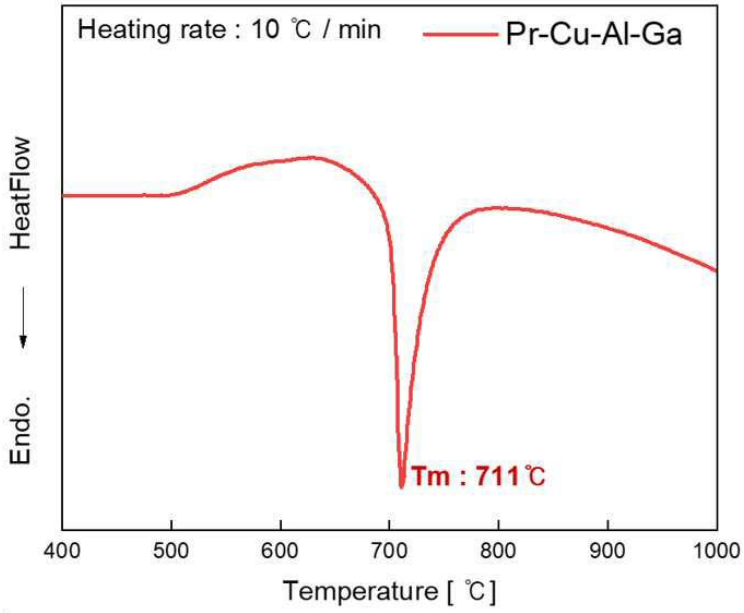
[0059] 도 2를 보면, 본 발명의 난융금속 합금($Zr_{25}F_{75}$) 및 희토류 합금이 입계확산된 영구자석(실시예 1-1 및 실시예 1-2)가 희토류 합금만 입계확산된 영구자석(비교예 1) 및 입계확산 공정을 수행하지 하지 않은 기본자석(Base magnet)보다 보자력이 우수한 것을 확인하였다.

[0060] 도 3을 보면, 본 발명의 난융금속 합금($Ti_{74}Ni_{26}$) 및 희토류 합금이 입계확산된 영구자석(실시예 1-1 및 실시예 1-2)가 희토류 합금만 입계확산된 영구자석(비교예 1) 및 입계확산 공정을 수행하지 하지 않은 기본자석(Base magnet)보다 보자력이 우수한 것을 확인하였다.

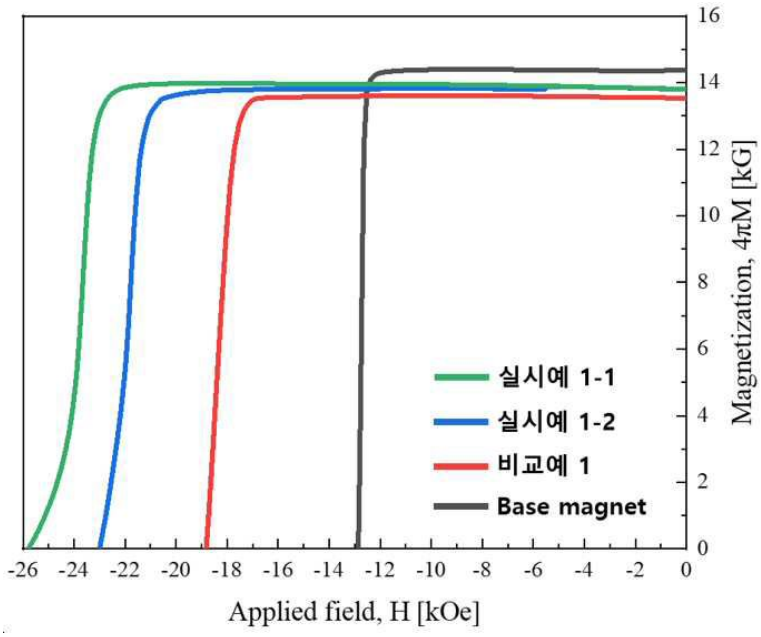
[0062] 이상에서 본 발명은 비록 한정된 실시예에 의해 설명되었으나, 본 발명은 이것에 의해 한정되지 않으며 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자에 의해 본 발명의 기술사상과 아래에 기재될 특허청구범위의 균등범위 내에서 다양한 수정 및 변형이 가능함은 물론이다.

도면

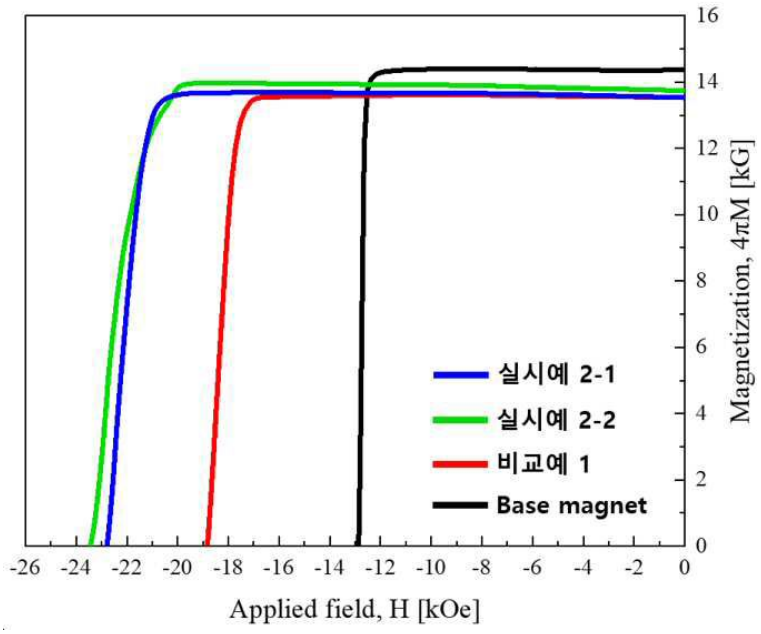
도면1



도면2


실시예 1-1
실시예 1-2
비교예 1
Base magnet
Magnetization, 4πM [kG]
Applied field, H [kOe]

도면3


실시예 2-1
실시예 2-2
비교예 1
Base magnet
Magnetization, 4πM [kG]
Applied field, H [kOe]