



저작자표시-비영리-변경금지 2.0 대한민국

이용자는 아래의 조건을 따르는 경우에 한하여 자유롭게

- 이 저작물을 복제, 배포, 전송, 전시, 공연 및 방송할 수 있습니다.

다음과 같은 조건을 따라야 합니다:



저작자표시. 귀하는 원저작자를 표시하여야 합니다.



비영리. 귀하는 이 저작물을 영리 목적으로 이용할 수 없습니다.



변경금지. 귀하는 이 저작물을 개작, 변형 또는 가공할 수 없습니다.

- 귀하는, 이 저작물의 재이용이나 배포의 경우, 이 저작물에 적용된 이용허락조건을 명확하게 나타내어야 합니다.
- 저작권자로부터 별도의 허가를 받으면 이러한 조건들은 적용되지 않습니다.

저작권법에 따른 이용자의 권리는 위의 내용에 의하여 영향을 받지 않습니다.

이것은 [이용허락규약\(Legal Code\)](#)을 이해하기 쉽게 요약한 것입니다.

[Disclaimer](#)

공 학 석 사 학 위 논 문

저융점 절연성 산화물 첨가를 이용한  
Nd-Fe-B계 영구자석의 전기비저항  
향상

Enhancing electrical resistivity of  
Nd-Fe-B-type magnet with addition of  
dielectric oxide with low melting point

2019년 2월

부 경 대 학 교 대 학 원

재 료 공 학 과

강 민 석

공 학 석 사 학 위 논 문

저용점 절연성 산화물 첨가를 이용한  
Nd-Fe-B계 영구자석의 전기비저항  
향상

지도교수 권 해 응

이 논문을 공학석사학위논문으로 제출함.

2019년 2월

부 경 대 학 교 대 학 원

재 료 공 학 과

강 민 석

# 강민석의 공학석사 학위논문을 인준함



위 원 장    공학박사    정 해 용 (인)

위    원    공학박사    권 해 응 (인)

위    원    공학박사    김 부 안 (인)

Abstract .....	iii
1. 서론 .....	1
2. 경자성 기초이론 .....	3
2.1 포화자화 및 잔류자화 .....	3
2.2 결정자기이방성 및 보자력 .....	4
2.3 각형비 및 최대에너지적 .....	6
2.4 큐리온도 .....	9
3. 실험방법 .....	12
3.1 초기 시작재료의 물성 .....	12
3.2 열간 압축성형 자석의 제조 .....	23
3.3 열간 압축성형 자석의 특성평가 .....	26
4. 실험 결과 및 고찰 .....	29
4.1 등방성 열간 압축성형 자석 .....	29
4.1.1 등방성 열간 압축성형 자석의 전기비저항 .....	29
4.1.2 등방성 열간 압축성형 자석의 자기적 특성 .....	32
4.2 이방성 열간 압축성형 자석 .....	39
4.2.1 이방성 열간 압축성형 자석의 전기비저항 .....	39
4.2.2 이방성 열간 압축성형 자석의 자기적 특성 .....	42

4.2.3 이방성 열간 압축성형 자석의 압축강도 .....49

5. 결론 .....51

[참고문헌]

[부록]



Enhancing electrical resistivity of Nd-Fe-B-type magnet with addition of dielectric oxide with low melting point

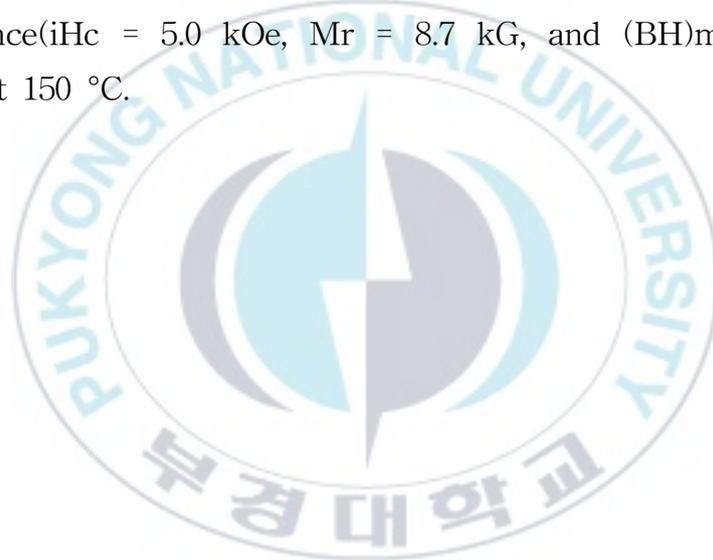
Min Seok Kang

Department of Materials Science and Engineering, The Graduate School,  
Pukyong National University

### **Abstract**

Ceramics-bonded Nd-Fe-B-type magnet with high electrical resistivity was fabricated with the intention of suppressing induction of eddy current thus lowering operating temperature of the magnet used as rotor magnet in high speed motor. The ceramics-bonded Nd-Fe-B-type magnets were fabricated by consolidating mixture of melt-spun flake and HDDR-treated powder and oxide ceramics with low melting point. The ceramics-bonded Nd-Fe-B-type magnets had remarkably enhanced electrical resistivity with respect to the magnet without ceramics binder. Coercivity of the isotropic ceramics-bonded magnet decreased with increasing the addition of ceramics binder, and this was attributed to the increased demagnetizing factor. Thin oxidized layer on the flake surface formed by reaction between the flake and oxide binder also contributed to reducing coercivity in the ceramics-bonded magnet. Highly resistive ceramics-bonded magnet containing 30 vol% ceramics binder still had good magnetic performance and high mechanical strength at 175 °C:  $iH_c = 5$  kOe,  $M_r = 4.8$  kG,  $(BH)_{max} = 4.3$  MGOe, and

over 900 MPa. In the anisotropic ceramics-bonded magnet, thanks to low temperature consolidation of Nd-Fe-B-type particles using oxide ceramic binder with low melting point the detrimental reaction between magnetic particle surface and oxide was profoundly suppressed, thus retaining the high coercivity of initial magnetic particles even in the ceramics-bonded magnets. Ceramics-bonded (15 vol%) magnet, which had good room temperature magnetic performance ( $iH_c = 12.7$  kOe,  $M_r = 9.4$  kG, and  $(BH)_{max} = 17.0$  MGOe), still had reasonably good performance ( $iH_c = 5.0$  kOe,  $M_r = 8.7$  kG, and  $(BH)_{max} = 10.2$  MGOe) at 150 °C.



## 1. 서론

Nd-Fe-B계 영구자석은 신재생에너지 및 각종산업분야를 중심으로 사용분야가 확대되고 있으며, 특히, 높은 자기적 특성으로 인해 EV(Electric Vehicle) 및 HEV(Hybrid Electric Vehicle)의 구동모터에서의 사용이 증가하고 있다[1-3]. 기존 Nd-Fe-B계 영구자석은 정방정계(tetragonal system)  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  금속간 화합물을 기초로 하고 있으며, 상온에서 포화자화( $M_s = 16 \text{ kG}$ ), 이방성자장( $H_A = 67 \text{ kOe}$ ), 최대에너지적( $(\text{BH})_{\text{max}} = 64 \text{ MGOe}$ )이 우수한 것으로 보고되어지고 있다[4-5]. 그러나 Nd-Fe-B계 영구자석은 낮은 큐리온도( $T_c = 315 \text{ }^\circ\text{C}$ )를 가지기 때문에, EV나 HEV의 구동모터에 사용되는 영구자석의 작동온도인  $200 \text{ }^\circ\text{C}$  부근에서 보자력이 현저히 감소하는 문제점이 있다. EV 혹은 HEV의 구동모터용 영구자석은 고온에서도 충분한 보자력이 요구되기 때문에, 이를 해결하기 위해 Nd-Fe-B계 영구자석의 보자력을 높이기 위한 여러 가지 해결방법들이 개발되어 왔다. Nd-Fe-B계 영구자석의 보자력 향상은 일반적으로 입계확산공정(Grain Boundary Diffusion Process, GBDP)을 통해 이루어진다 [6-10]. 입계확산공정은 중희토류 원소(Dy, Tb)의 확산에 의해  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  결정립 표면의 일부 Nd 원자를 중희토류 원자로 치환시켜 결정립 표면의 결정자기이방성을 향상시켜 보자력을 향상시킨다 [11-12]. 그러나 중희토류의 치환은 필연적으로 잔류자화( $M_r$ )의 감소와 더불어 중희토류의 비싼 가격으로 인한 비용의 상승이 문제가 된다. EV 및 HEV의 구동모터용 영구자석의 가열은 작동 중 모터내부

의 전기자에서 생성되는 교차 슬롯자장에 의해 발생하는 와전류 (eddy current)에 의해 발생한다[13-16]. 따라서, 자석의 전기비저항을 향상시키면 구동모터용 영구자석에 발생하는 와전류를 억제하여 구동모터의 작동온도를 감소시키는데 효과적일 것이다. 그러나 Nd-Fe-B계 영구자석은 기본적으로 금속이 다량 함유된 금속합금이기 때문에 전기비저항을 향상시키는 것은 쉽지 않았다. 이전, 절연체인 fluoride염을 첨가하여 Nd-Fe-B계 영구자석의 전기비저항을 향상시키기 위한 시도가 있었다[17]. 그러나 fluoride염을 첨가한 Nd-Fe-B계 영구자석은 fluoride염을 첨가하지 않은 Nd-Fe-B계 영구자석과 비교하여 압축강도가 상당량 감소함을 보였다. 때문에 본 연구에서는 높은 전기비저항을 갖는 저융점 세라믹바인더를 Nd-Fe-B계 영구자석에 첨가하여 자기적 특성 및 압축강도의 감소를 최소화 하며, 전기비저항을 향상시키는 연구를 진행하였다.

## 2. 경자성 기초이론

### 2.1 포화자화 및 잔류자화

그림 1은 강자성체의 자기이력곡선을 나타낸 그림이다. 자기이력곡선이란, 가해진 외부의 자기장에 따라 변화하는 자화값의 변화를 나타낸 곡선이다. 완전한 탈자상태의 강자성체에 외부자장을 가해서 원점에서부터 강자성체에 가해주는 자장의 세기를 증가시키면 자화값(M)은 그림 1의 초기자화곡선과 같은 경로를 통해 그림 1(a)까지 증가한다. 그러나 그림 1(a) 이상의 자장을 가해주어도 자화 값은 포화에 도달하여 더 이상 증가하지 않는다. 이때, 그림 1(a)지점을 포화자화라 하며, 기호로  $M_s$ 로 나타낸다. 이 포화자화는 영구자석이 공급 가능한 자속을 결정하는 중요한 특성이다. 강자성체 재료에서는 재료를 구성하는 각 원자의 자기모멘트가 교환상호작용으로 주위 원자와 동일한 방향으로 향하며, 그로인해 자화가 발생한다. 이때 자기모멘트의 합을 자발자화라고 하며, 포화자화는 이 자발자화의 세기와 같다. 또한, 포화자화는 자화와 자장의 세기의 관계를 나타내는 곡선(M - H 곡선)에서는 존재하지만, 자속밀도와 자장의세기의 관계를 나타내는 곡선(B - H 곡선)에서는 자속밀도는 자화 값과 그때의 자장의 세기의 합( $B = M + H$ )이므로 포화 값이 존재하지 않고 가해주는 자장의 세기가 증가할수록 계속해서 증가한다. 이런 포화자화에서부터 서서히 자장의 세기를 감소시키면, 자화 값은 초기 자화곡선을 통해 원점으로 돌아오는 것이 아니라 다른 경로를 통해

여 감소하게 된다. 이후, 외부에서 가해주는 자장의 세기가 '0'일 때 남아있는 자화 값은 그림 1(b)점에 도달하게 된다. 그림 1(b)점은 자화와 자장의 세기의 관계를 나타내는 곡선(M - H 곡선)에서는 잔류자화라 하며, 기호  $M_r$ 로 나타낸다. 자속밀도와 자장의 세기의 관계를 나타내는 곡선(B - H 곡선)에서는 잔류자속밀도라고 하며 기호로  $B_r$ 로 나타낸다. 다만, 자장의 세기가 '0'이기 때문에 잔류자화와 잔류자속밀도는 같은 값을 가진다. 이 잔류자화는 자기회로에서 자석으로부터 나올수 있는 최대의 자화값이라 할 수 있다.

## 2.2 결정자기이방성 및 보자력

결정자기이방성은 영구자석의 결정구조에 따라 자화의 방향이 특정한 방향으로 배향되려고 하는 성질이다. 자화가 쉬운 방향을 자화 용이 방향(Easy Magnetization Direction, EMD)이라 하며, 반대로 자화가 어려운 방향을 자화 곤란 방향(Hard Magnetization Direction, HMD)이라 한다. 원자 내의 자기모멘트를 자화 용이 방향으로부터 자화 곤란 방향으로 회전시키는데 필요한 에너지를 결정자기이방성에너지( $E_a$ )라 부른다. 결정자기이방성에너지는 결정의 구조에 따라 실험식을 이용하여 구할 수 있으며  $Nd_2Fe_{14}B$ 와 같은 정방정계 결정구조에서는 식 (1)과 같이 나타낸다.

$$E_a = K_1 \sin^2 \theta \quad (1)$$

이 식에서  $\theta$ 는 자화 용이 방향에서 벗어난 각도,  $K_1$ 은 결정자기이방성 상수이다. 만약  $K_1 < 0$  면 자화 용이 방향은  $c$  축에 수직인 평면이 되고,  $K_1 > 0$  면 자화 용이 방향은  $c$  축이 된다.

영구자석의 이방성 자장( $H_A$ )은 보자력을 결정하는 중요한 요소이며 영구자석 재료의 이론적 최대보자력이다. 이 이방성 자장은 결정자기이방성 상수( $K_1$ )와 관련된 식 (2)로 나타낼 수 있다.

$$H_A = \frac{2K_1}{\mu_0 M_s} \quad (2)$$

이방성 자장은 식 (2)와 같은 계산식이 아닌 열탈자 상태의 자성 재료를 자화 용이 방향과 자화 곤란 방향으로 자장을 가하여 측정된 자기이력곡선을 통해 실험적으로 구할 수 있다. 그림 2는 강자성체의 자화 용이 방향 및 자화 곤란 방향으로 측정된 자화곡선이다. 이 두 자화곡선의 교점에서부터 자장이 '0'일 때 까지 곡선의 면적을 결정자기이방성 에너지( $E_a$ )라 한다.

강자성체의 자기이력곡선에서 초기에 강자성체에 가하던 자장을 제거한 후 잔류자화 상태에 있는 강자성체에 초기에 가해준 방향과는 반대방향의 자장을 가해주어 자화 값이 '0'가 되는 지점을 보자력이라 한다. 이러한 보자력은 Y축의 종류에 따라 고유보자력과 유도보자력으로 분류된다. 그림 1의 자화와 자장의 세기의 관계를 나타내는 곡선(M - H 곡선)에서 자화 값이 '0'가 되는 (c)점을 고유보자력이라 하며 기호로  $iH_c$ 로 나타낸다. 영구자석 재료 관련 분야에서는 고유보자력을 보자력이라 부른다.

그림 1의 자속밀도와 자장의 세기의 관계를 나타내는 곡선(B - H 곡선)에서 자속밀도의 값이 '0'가 되는 (d)점을 유도보자력이라 하며 기호로  $bH_c$ 로 나타낸다. 자기회로 관련분야에서 유도보자력을 보자력이라 부른다.

### 2.3 각형비 및 최대에너지적

각형비는 잔류자속밀도( $B_r$ )의 90 %에 해당하는 자속밀도가 가지는 자장의 세기와 고유보자력의 비로 정의한다. 이러한 각형비는 탈자가 이루어지는 동안 영구자석의 안정성을 평가하는데 사용되며, 각형비가 '1'에 가까울수록 유리하다. 최대에너지적은 자속밀도와 자장의 세기의 관계를 나타내는 B - H곡선에서 자속밀도(B)와 자장(H)의 곱의 최대치로 기호  $(BH)_{max}$ 로 나타낸다(그림 1(e)). 높은 최대에너지적을 얻기 위해서는 앞서 설명한 유도보자력, 고유보자력, 잔류자화, 각형비와 같은 기본적인 자기적 특성이 높아야하기 때문에 자석으로서의 종합적인 성능을 나타내는 지표로서 널리 이용되고 있으며 현재 대중적으로 사용되고 있는 영구자석인 Nd-Fe-B계 영구자석의 최대에너지적은 약 64 MGOe로 보고되어 있다.

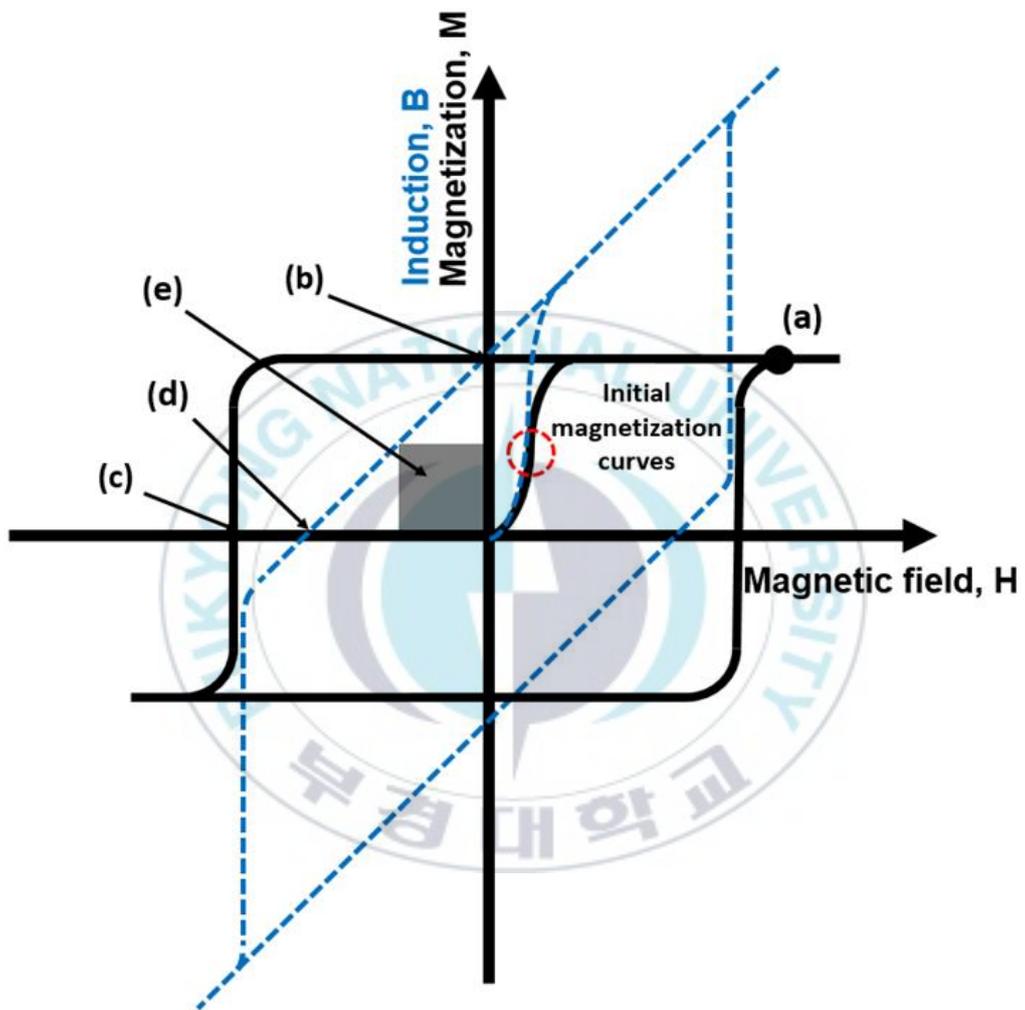


Fig. 1. Hysteresis loop of permanent magnet.

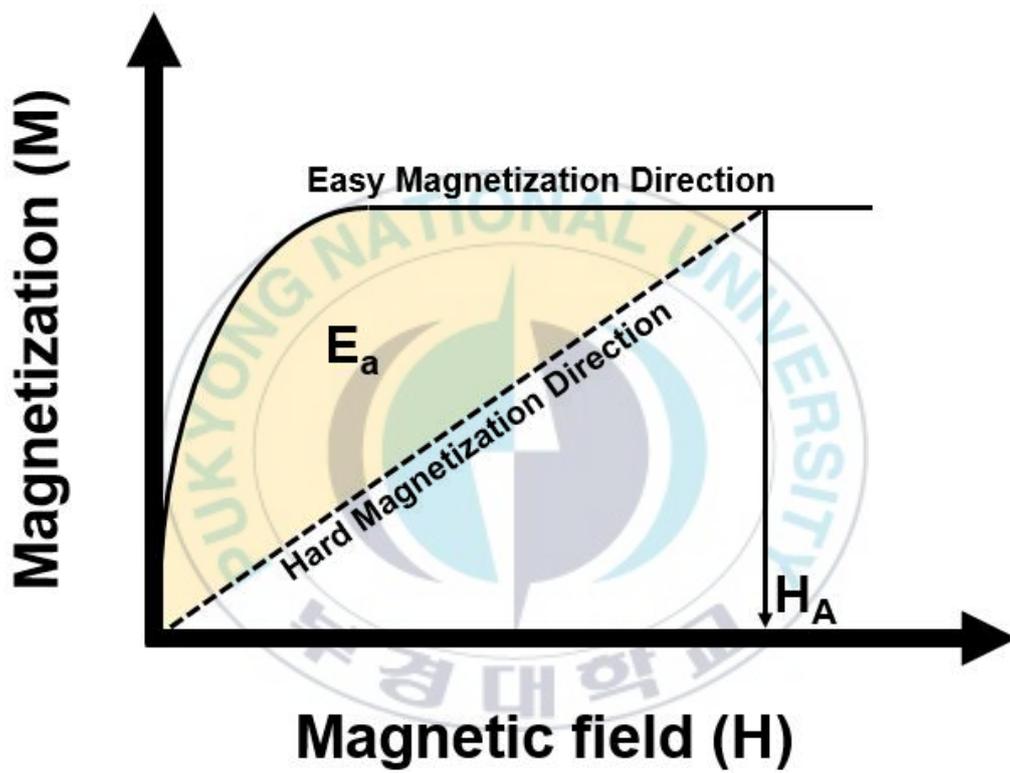


Fig 2. Magnetization curves of hard magnetic material for easy magnetization and hard magnetization direction.

## 2.4 큐리온도 (Curie Temperature)

그림 3와 같이 강자성체가 높은 온도로 가열되면 대부분의 강자성체는 자기모멘트의 배향이 흐트러지게 되며, 결과적으로 일정온도에 도달하면 강자성체는 자기모멘트의 배향이 사라진 상자성체로 바뀌어 자성을 상실하게 된다. 이렇게 강자성체에서 상자성체로 변하는 온도를 큐리온도(curie temperature)라 하며 기호  $T_c$ 로 나타낸다. Nd-Fe-B계 영구자석의 큐리온도는 약 315 °C로 그리 높지 않기 때문에 산업에 적용하기 위해 여러 가지 제약을 받는다. 반면, Sm-Co계 영구자석 및 AlNiCo자석 등은 상온에서의 자기적 특성은 Nd-Fe-B계 영구자석에 비하여 낮지만 높은 큐리온도를 가지기 때문에 비교적 높은 온도에서도 구동이 가능하다는 장점을 가지고 있다. 이와 같이 영구자석에서는 온도에 따른 특성 또한 중요시 되는데 이러한 특성 중 하나는 온도의 안정성이다. 온도의 안정성은 온도계수로 나타내며, 온도가 증가할수록 영구자석의 자기적 특성이 감소하는 비율을 나타낸다. 이러한 온도계수는 잔류자화의 온도계수( $\alpha$ )와 보자력의 온도계수( $\beta$ )로 분류되며,  $\alpha$ ,  $\beta$ 는 식 (3), (4)를 이용하여 구할 수 있다.

$$\alpha(\%/K) = \frac{M_{r_T} - M_{r_{RT}}}{M_{r_{RT}} \times (T - RT)} \times 100\% \quad (3)$$

$$\beta(\%/K) = \frac{iHc_T - iHc_{RT}}{iHc_{RT} \times (T - RT)} \times 100\% \quad (4)$$

※  $\alpha$  : 잔류자화의 온도계수

$\beta$  : 보자력의 온도계수

T : 측정하는 온도

RT : 상온

$M_{r_T}$  : 측정온도에서의 잔류자화

$M_{r_{RT}}$  : 상온에서의 잔류자화

$iHc_T$  : 측정온도에서의 보자력

$iHc_{RT}$  : 상온에서의 잔류자화



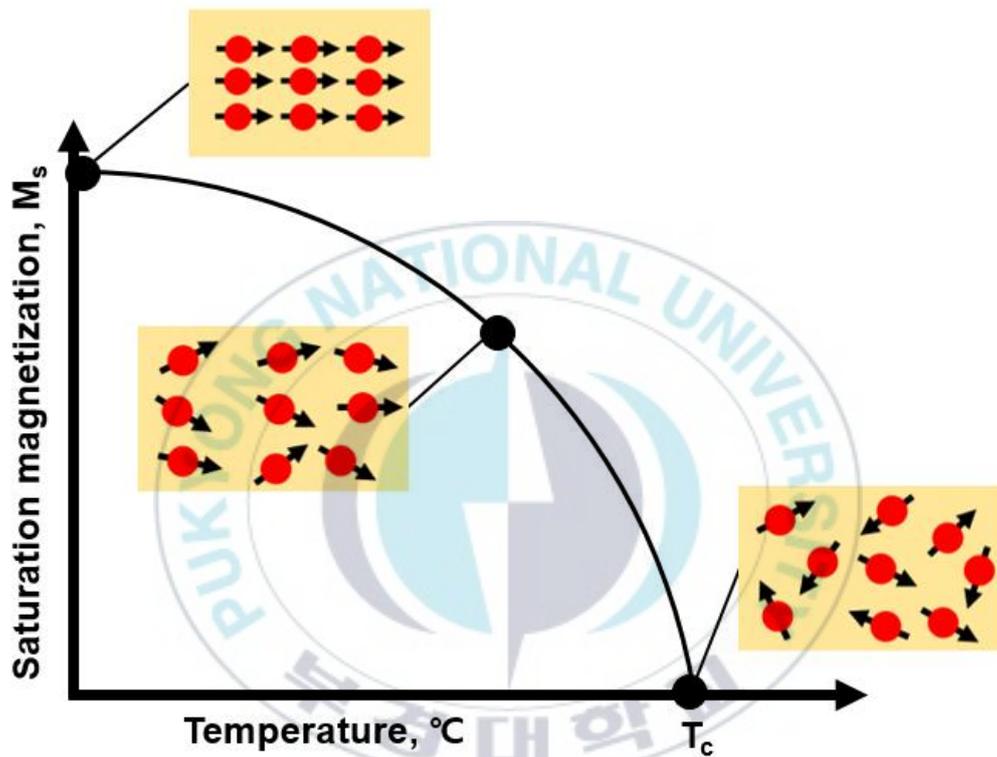


Fig 3. Temperature dependence of magnetic moment of ferromagnetic material.

### 3. 실험 방법

#### 3.1 초기 시작재료의 물성

본 연구는 등방성, 이방성의 열간 압축성형 자석을 제조하여 실험을 진행하였다. 등방성 열간 압축성형 자석의 초기재료로서 급냉응고법(melt-spinning)으로 제조된 상업용 Nd-Fe-B계 플레이크 분말(MQU-F :  $\text{Nd}_{13.6}\text{Fe}_{73.6}\text{Co}_{6.6}\text{Ga}_{0.6}\text{B}_{5.6}$ )을 사용하였으며, 이 플레이크 분말의 감자곡선을 그림 4에 나타내었다. 플레이크 분말의 너비는 SEM으로 관찰한 결과 너비는 약  $150\ \mu\text{m} - 300\ \mu\text{m}$  이며, 두께는 약  $20\ \mu\text{m}$  이다(그림 5). 열간 압축성형 자석의 제조 시 첨가되는  $\text{Bi}_2\text{O}_3 - \text{SiO}_2 - \text{B}_2\text{O}_3$ 계 세라믹 분말(약  $1\ \mu\text{m}$ , HTCB)의 용점을 조사하기 위해 시차열분석법(Differential Thermal Analysis, DTA)을 이용하여 아르곤분위기에서 약  $800\ ^\circ\text{C}$ 로 가열하여 열 반응을 조사하였으며 시차열분석장치의 모식도를 그림 6에 나타내었다. 그림 7(a)는 HTCB의 시차열분석 결과를 나타낸 그림이다. 시차열분석 결과 약  $550 - 570\ ^\circ\text{C}$ 의 범위에 걸쳐 흡열반응이 일어나는 것을 볼 수 있다. 그림 7(b)는 HTCB의 X-선 회절패턴을 나타내었다. X-선 회절패턴에서  $20 - 40$  도의 범위에서 단범위 규칙성이 존재함을 확인할 수 있었으며, 이는 HTCB가 비정질 상태임을 나타낸다. 또한, HTCB를 약  $800\ ^\circ\text{C}$ 에서 1시간동안 가열 시킨 후 급냉시켜 벌크 상태로 만든 뒤, 비커스경도계를 이용하여 HTCB의 비커스 경도를 측정하였다.

표 1.은 위에서 측정한 HTCБ의 기본적인 물성을 나타내었다.

이방성 열간 압축성형 자석의 초기재료로서 HDDR(Hydrogenation Disproportionation Desorption Recombination) 처리를 통하여 제조된  $\text{Nd}_{12.5}\text{Fe}_{80.6}\text{B}_{6.4}\text{Ga}_{0.3}\text{Nb}_{0.2}$  조성의 이방성 분말을 사용하였다. 이 HDDR분말의 감자곡선을 그림 8에 나타내었으며 입자크기는 약 150  $\mu\text{m}$  이었다(그림 9). 열간 압축성형 자석의 제조시 첨가되는  $\text{V}_2\text{O}_5 - \text{P}_2\text{O}_5 - \text{TeO}_2$  계 세라믹 분말(약 2  $\mu\text{m}$ , LTCB)의 용점을 조사하기 위해 시차주사열량분석법(Differential Scanning Calorimetry, DSC)을 이용하여 아르곤분위기에서 약 400 $^{\circ}\text{C}$ 까지 가열하여 열 반응을 조사하였다. 그림 10(a)는 LTCB의 시차주사열량분석 결과를 나타내었다. 시차주사열량분석 결과 260 - 284  $^{\circ}\text{C}$ 의 범위에 걸쳐 흡열반응이 일어났다. 또한 그림 10(b)는 X-선 회절패턴을 나타내었다. X-선 회절패턴에서 20 - 40 도의 범위에서 단범위 규칙성이 존재하여 LTCB가 비정질 상태임을 알 수 있었다. 또한, LTCB를 약 800 $^{\circ}\text{C}$ 까지 가열 후 급냉시켜 벌크상태로 만든 뒤, 비커스 경도계를 이용하여 LTCB의 비커스 경도를 측정하였다. 표 2.는 LTCB의 기본적인 물성을 나타내었다.

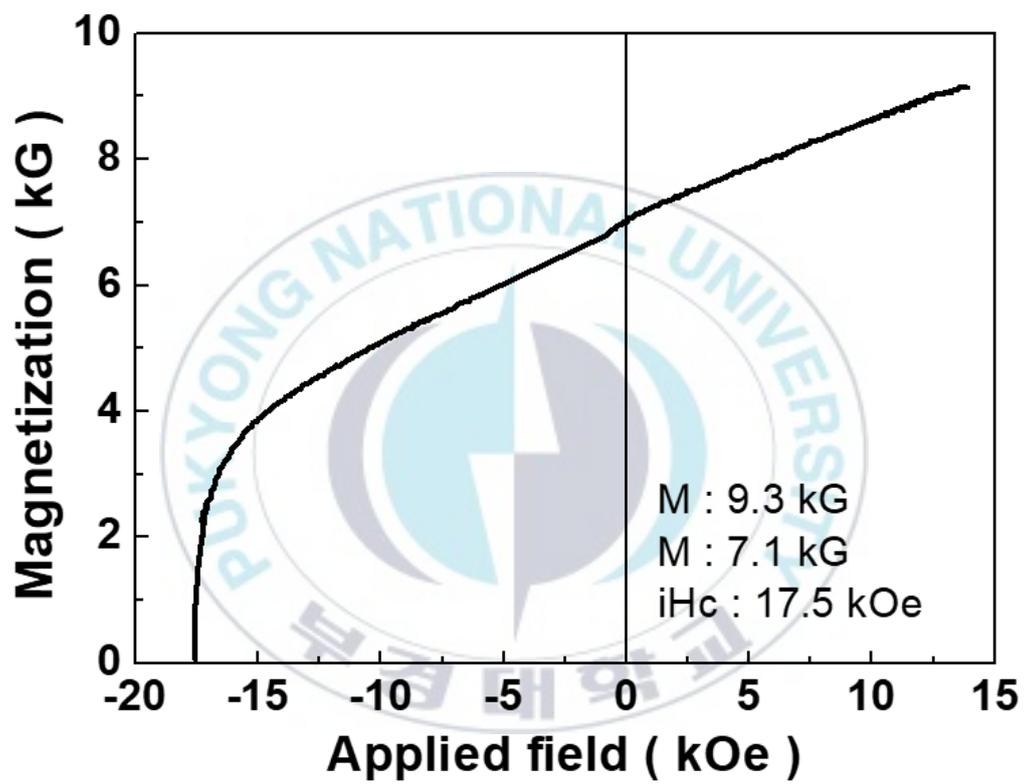


Fig 4. Demagnetization curve of MQU-F melt-spun flake

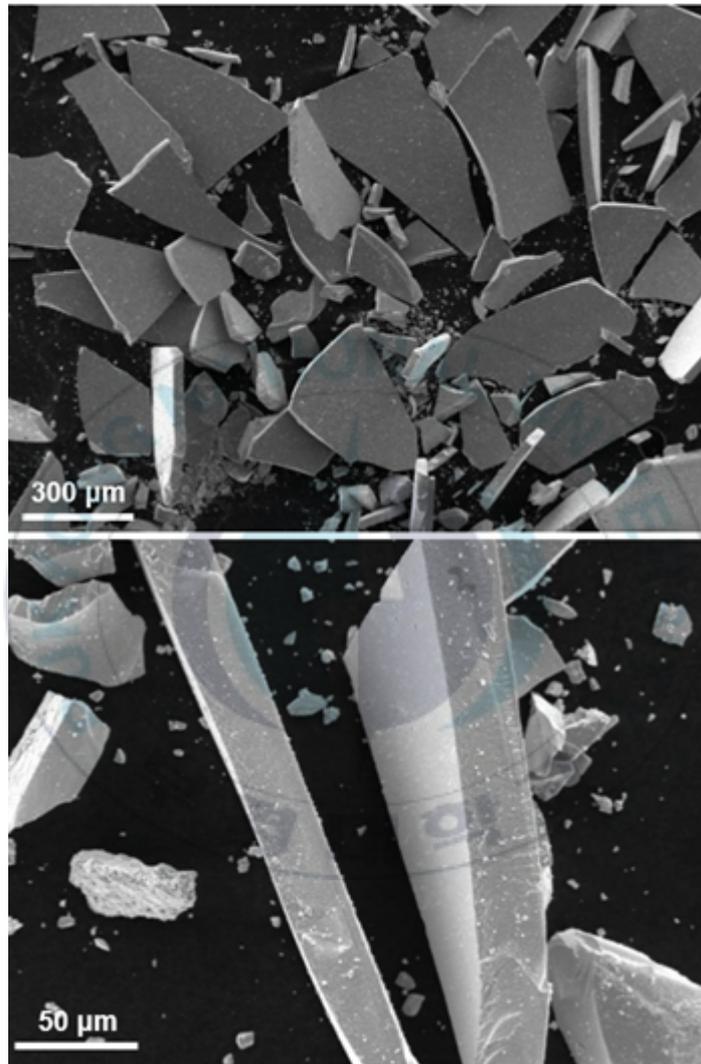


Fig. 5. SEM image showing the morphology of Nd<sub>13.6</sub>Fe<sub>73.6</sub>Co<sub>6.6</sub>Ga<sub>0.6</sub>B<sub>5.6</sub> MQU-F flake.

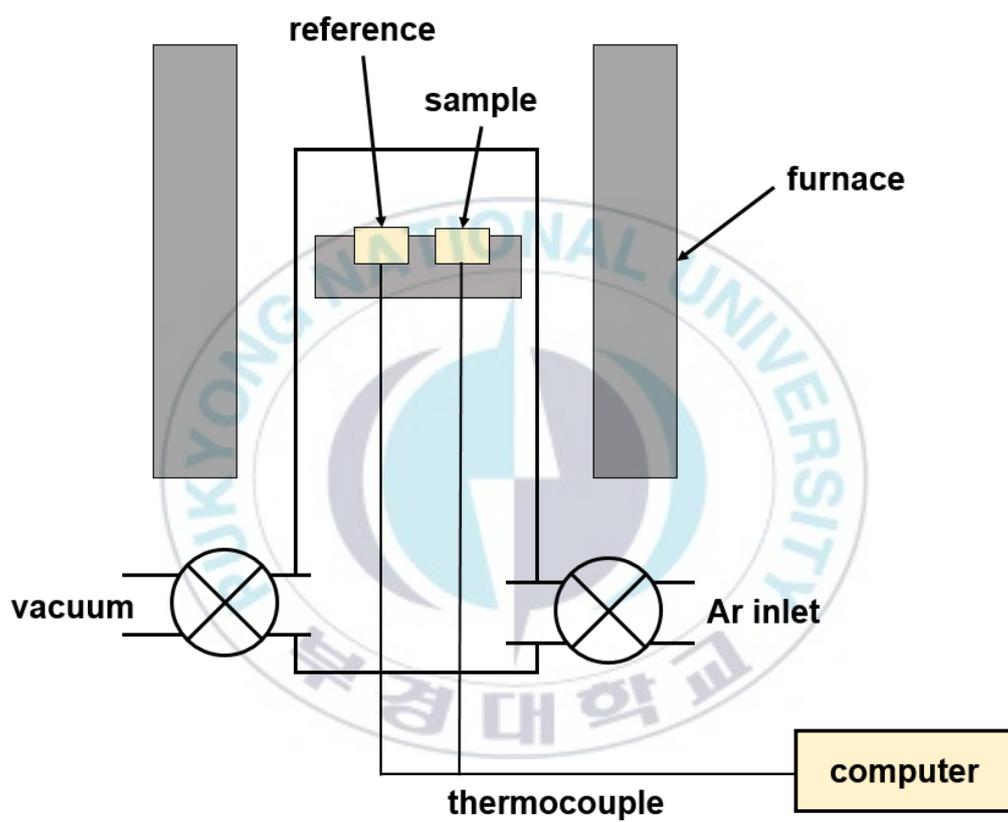


Fig 6. Schematic diagram of DTA equipment.

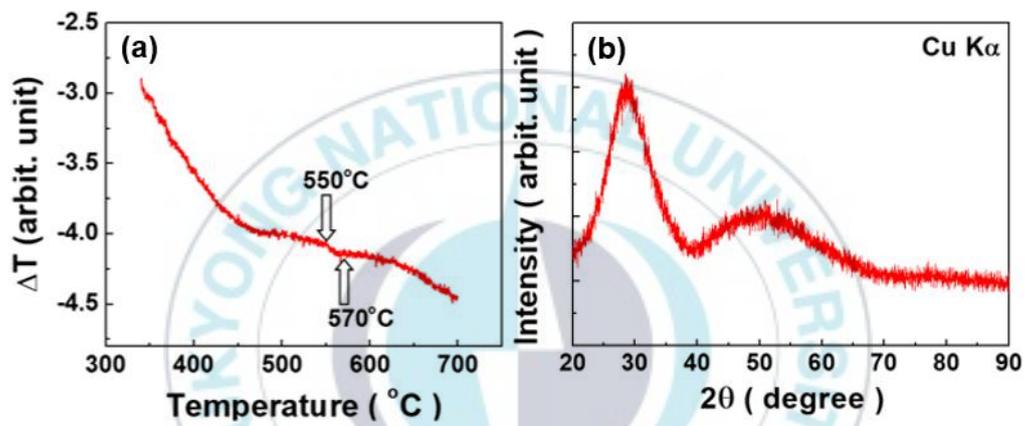


Fig. 7. (a) DTA (3°C/min, in Ar) result, (b) XRD (CuK $\alpha$ ) patterns of Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> - SiO<sub>2</sub> - B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramics binder.

Table. 1. Physical properties of the  $\text{Bi}_2\text{O}_3 - \text{SiO}_2 - \text{B}_2\text{O}_3$  ceramics binder.

<b>structure</b>	<b>melting point ( °C )</b>	<b>density ( g/cm<sup>3</sup> )</b>	<b>electrical resistivity ( Ω·cm )</b>	<b>mechanical hardness</b>
amorphous glass	550 ~ 570	5.4	$\sim 1.5 \times 10^{12}$ [18]	513 H <sub>v0.3</sub> 50 HRC

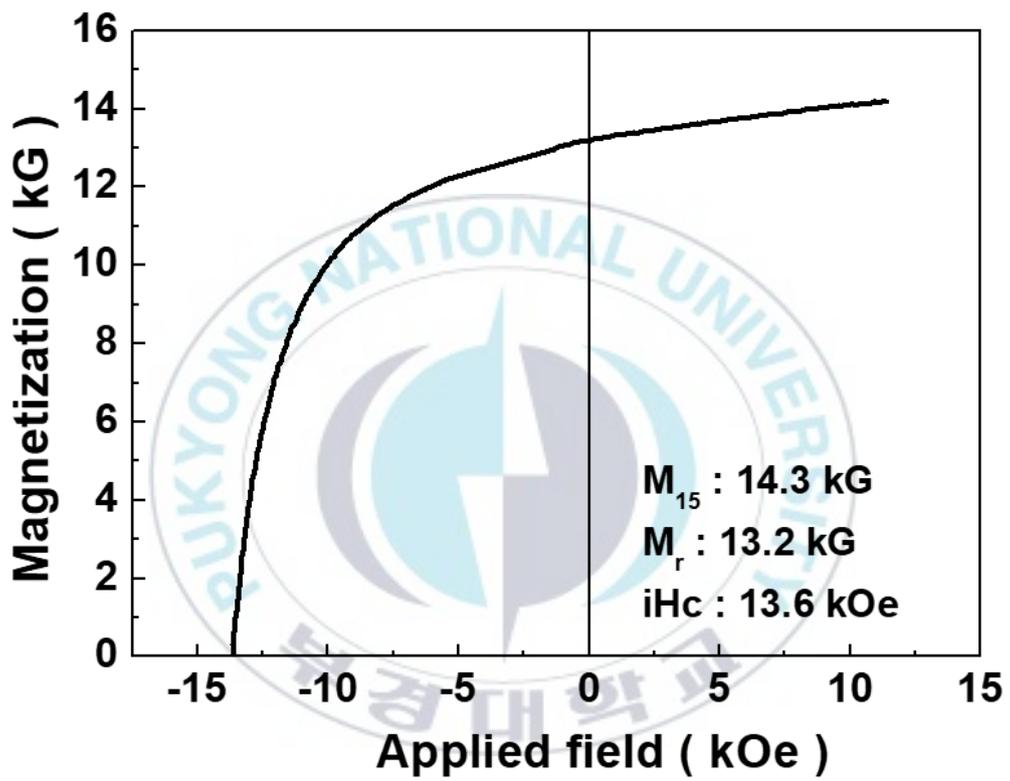


Fig 8. Demagnetization of HDDR treated powder.

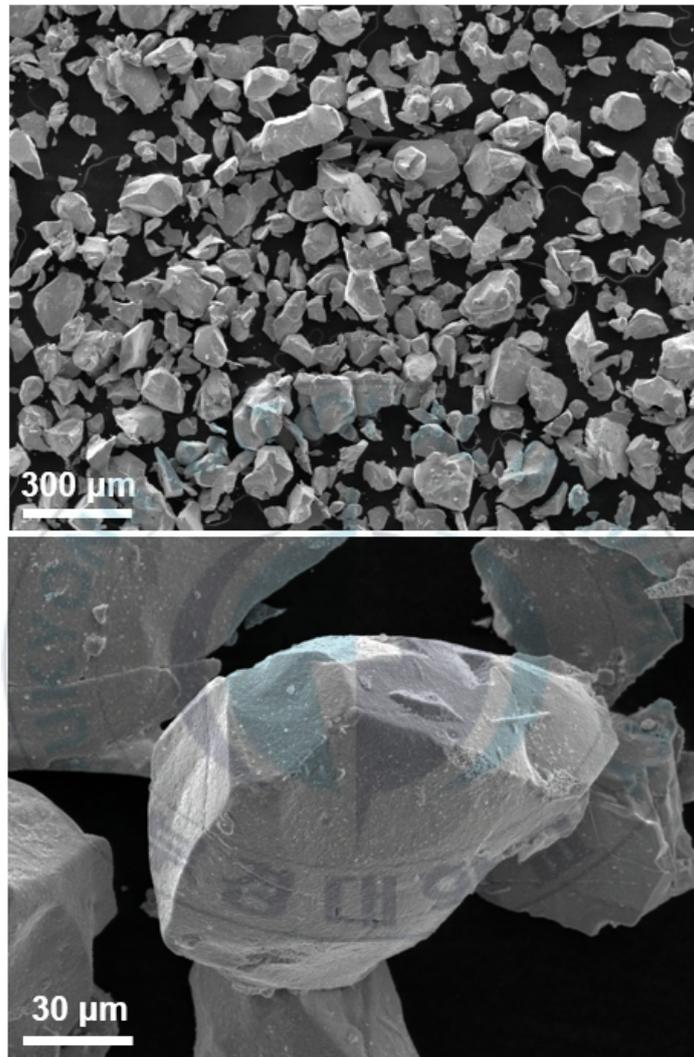


Fig. 9. SEM image showing the morphology of  $\text{Nd}_{12.5}\text{Fe}_{80.6}\text{B}_{6.4}\text{Ga}_{0.3}\text{Nb}_{0.2}$  HDDR powder.

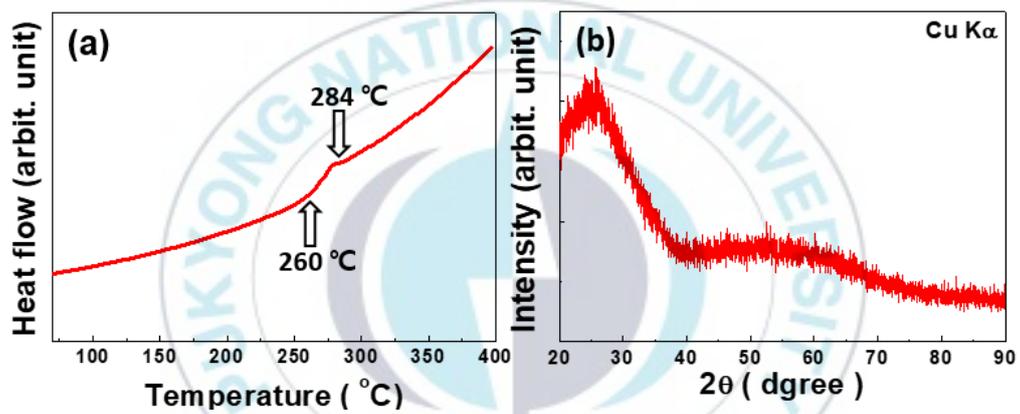


Fig. 10. (a) DTA (3°C/min, in Ar) result, (b) XRD (CuKα) patterns of  $V_2O_5 - P_2O_5 - TeO_2$  ceramics binder.

Table. 2. Physical properties of the  $V_2O_5 - P_2O_5 - TeO_2$  ceramics binder.

<b>structure</b>	<b>melting point ( °C )</b>	<b>density ( g/cm<sup>3</sup> )</b>	<b>electrical resistivity ( Ω·cm )</b>	<b>mechanical hardness</b>
amorphous glass	260 ~ 284	3.3	$\sim 1 \times 10^6$ [19]	293 H <sub>v0.3</sub> 28.7 HRC

### 3.2 열간 압축성형 자석의 제조

등방성 열간 압축성형 자석의 제조를 위해 등방성 플레이크 분말에 HTCB를 첨가하여 690℃에서 열간 압축성형 자석을 제작하였다. HTCB를 690℃에서 열간 압축성형을 제조한다면 첨가한 세라믹 분말은 열간 압축성형을 하는 동안 액상으로 존재하게 되며, 각 플레이크 분말의 계면에 균일하고 연속적으로 존재할 것이다. 열간 압축성형법으로 0 - 38 vol%의 HTCB를 첨가하여 400℃에서부터 약 460 MPa의 압력을 가하여 일정하게 유지한 후 690℃에 도달하면 압력을 제거하고 아르곤가스를 흘리며 냉각시켜 등방성 자석을 제조하였다. 이때, 첨가한 세라믹 분말이 진공에서 가열되어 부풀어 올랐다. 이를 방지하기 위해 열간 압축성형중의 분위기를 아르곤으로 만들고 열간 압축성형을 실시하였다. 실제 열간 압축성형에 사용된 장치를 그림 11에 나타내었다. 이방성 열간 압축성형 자석의 제조를 위해 이방성 HDDR 분말에 LTCB를 첨가하여 혼합 후, 혼합물을 자장성형기를 이용하여 한 방향으로 배향시킨 후 압력을 가해 성형체를 제작하였다. 그 후, 성형체를 420℃에서 열간 압축성형을 실시하여 열간 압축성형 자석을 제조하였다. LTCB를 420℃에서 열간 압축성형을 통해 열간 압축성형 자석을 제조한다면 첨가한 LTCB는 열간 압축성형을 하는 동안 액상으로 존재하게 되며, 각 분말 계면에 균일하고 연속적으로 존재할 것이다. 열간 압축성형법을 통해 10 - 30 vol% 세라믹 분말을 첨가하여 약 200℃에서부터 약 660 MPa의 압력을 가하여 일정하게 유지한 후 420℃에 도달하면 압력을 제거

하고 아르곤가스를 흘리며 냉각시켜 이방성 자석을 제조하였다. 이때, 첨가한 세라믹 분말은 열간 압축성형 과정이 낮은 온도에서 이루어지기 때문에 HTCB처럼 부풀어 오르지 않을 것으로 생각되어 진공분위기에서 열간 압축성형을 실시하였다.



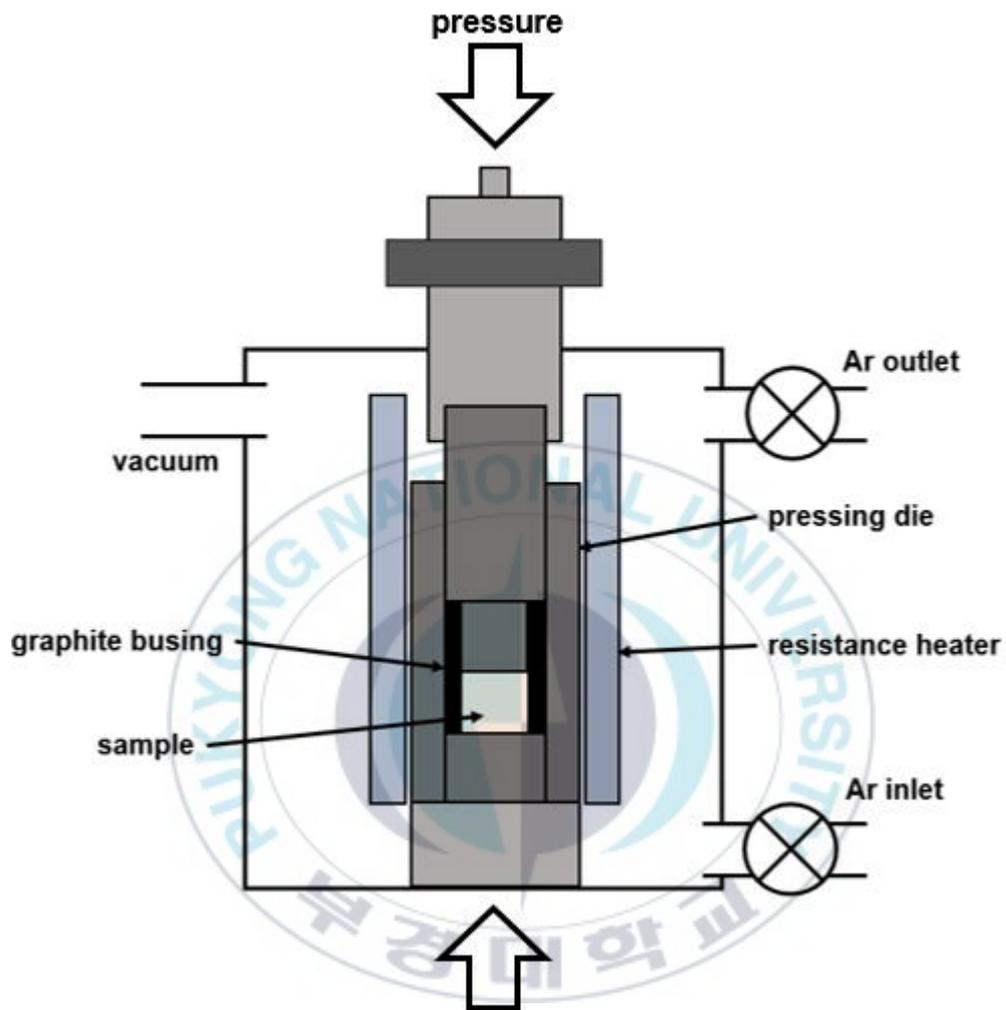


Fig. 11. Schematic diagram of hot-press equipment.

### 3.3 열간 압축성형 자석의 특성평가

열간 압축성형 자석의 전기비저항은 4침법(4-point probe)를 이용하여 측정되었으며, 그 모식도를 그림 12 에 나타내었다. 전기비저항을 측정하기 위해 등방성 열간 압축성형 자석은 두께(t) 1.5 mm, 직경 약 9 mm인 동전 형상으로, 이방성 열간 압축성형 자석은 두께(t) = 1.5 mm, 길이 10 mm, 너비 5 mm의 직사각형 형상으로 가공하였다. 그림 12에서와 같이 탐침간의 거리(s)가 2 mm인 탐침 4개를 제조된 시편에 접촉시킨 후 10 mA의 전류를 가하는 동안 발생하는 전압을 측정하여 식(5)를 이용하여 전기비저항을 구하였다.

$$\rho = 4.5324t \frac{V}{I} (s > t) \quad (5)$$

시료 진동형 자성측정기(Vibrating Sample Magnetometer, VSM)를 이용하여 시편의 자기적 특성을 측정하였으며 대략적인 모식도를 그림 13에 나타내었다. 이후, 온도계수의 측정을 위해 상온 - 175 °C 까지 가열한 기름에 담구어 측정하였다. 미세구조 관찰 및 원소의 분포분석을 SEM(Scanning Electron Microscope) 및 EPMA(Electrone Probe X-ray Microanalyzer)를 이용해 실시하였다.

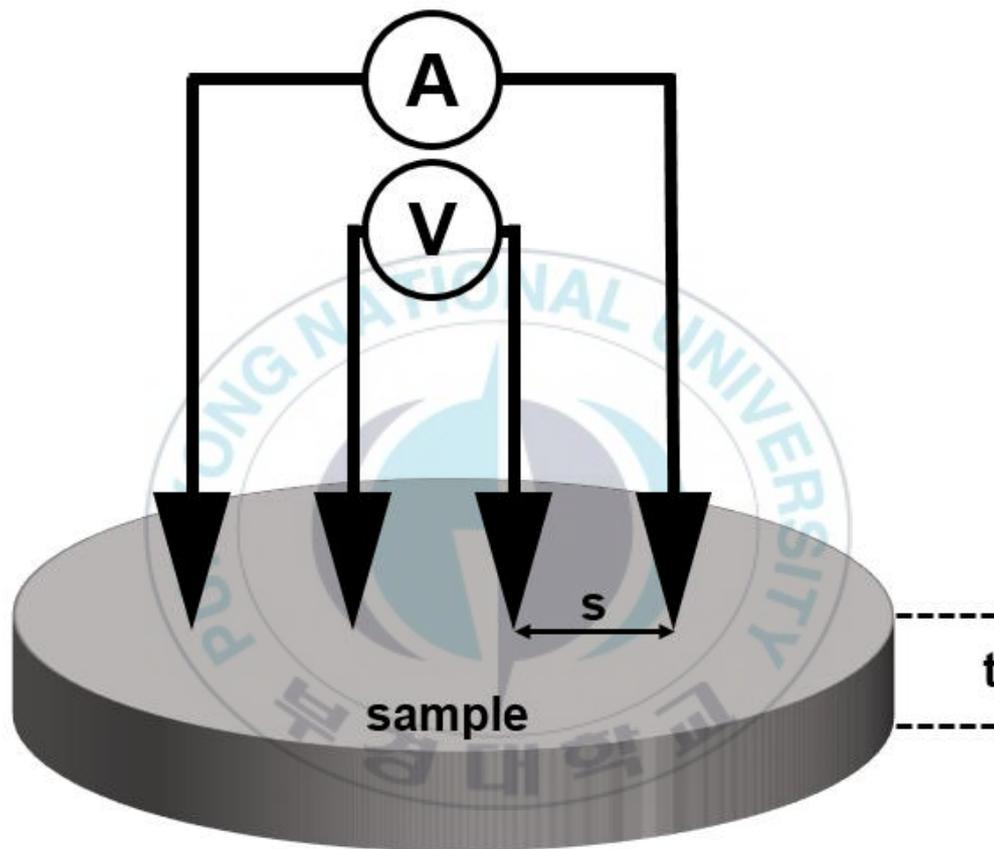


Fig. 12. Schematic diagram of 4-point probe for measuring electrical resistivity.

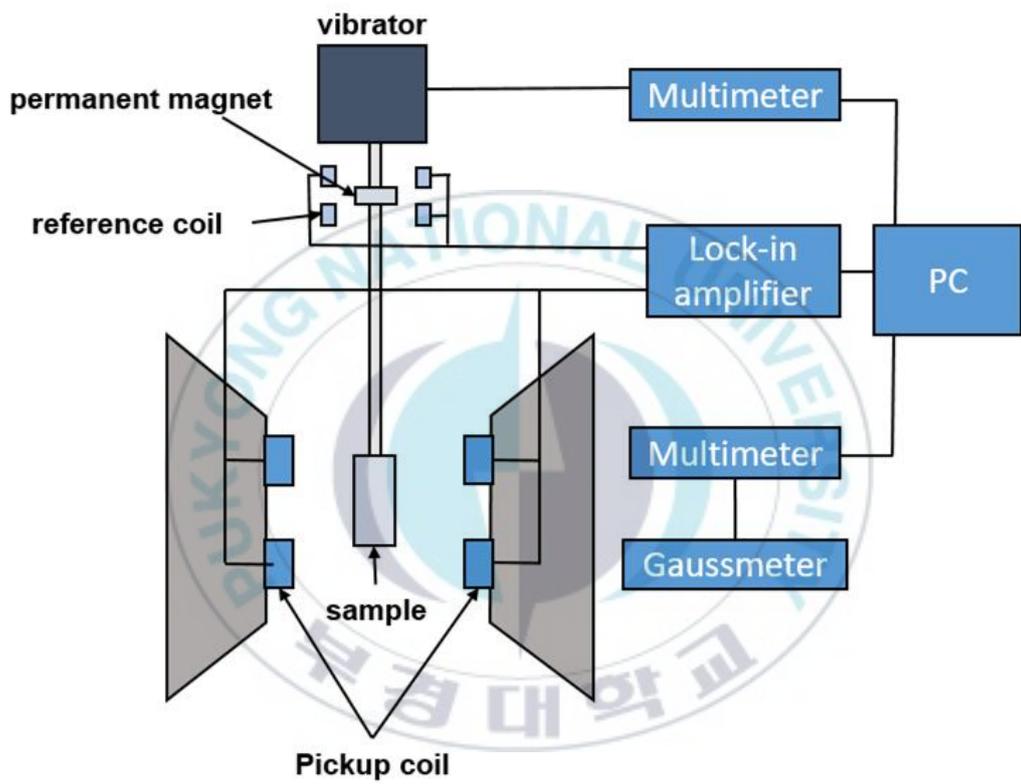


Fig. 13. Schematic diagram of VSM(Vibrating Sample magnetometer).

## 4. 실험 결과 및 고찰

### 4.1 등방성 열간 압축성형 자석

#### 4.1.1 등방성 열간 압축성형 자석의 전기비저항

그림 14는 제조된 열간 압축성형 자석의 HTCB의 첨가량에 따른 전기비저항의 변화를 나타내었다. 그림 14에서 볼 수 있듯이 열간 압축성형 자석의 전기비저항은 HTCB의 첨가량이 증가함에 따라 상당한 향상을 보여주었으며, HTCB를 첨가하지 않은 열간 압축성형 자석의 전기비저항( $200 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ )과 비교하여 약 30 vol%의 HTCB를 첨가한 열간 압축성형 자석의 전기비저항( $1303 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ )은 약 6.5배가량 높은 전기비저항을 보여주었다. 이처럼 HTCB를 약 30 vol% 첨가한 열간 압축성형 자석의 전기비저항의 상당한 향상은 HTCB가  $690 \text{ }^\circ\text{C}$ 의 온도에서 열간 압축성형동안 액상으로 존재하여 플레이크 분말을 전기적으로 분리시키기 때문으로 생각된다. 그림 15는 HTCB를 약 30 vol% 첨가하여 제조한 열간 압축성형 자석의 미세 구조를 나타내었다.

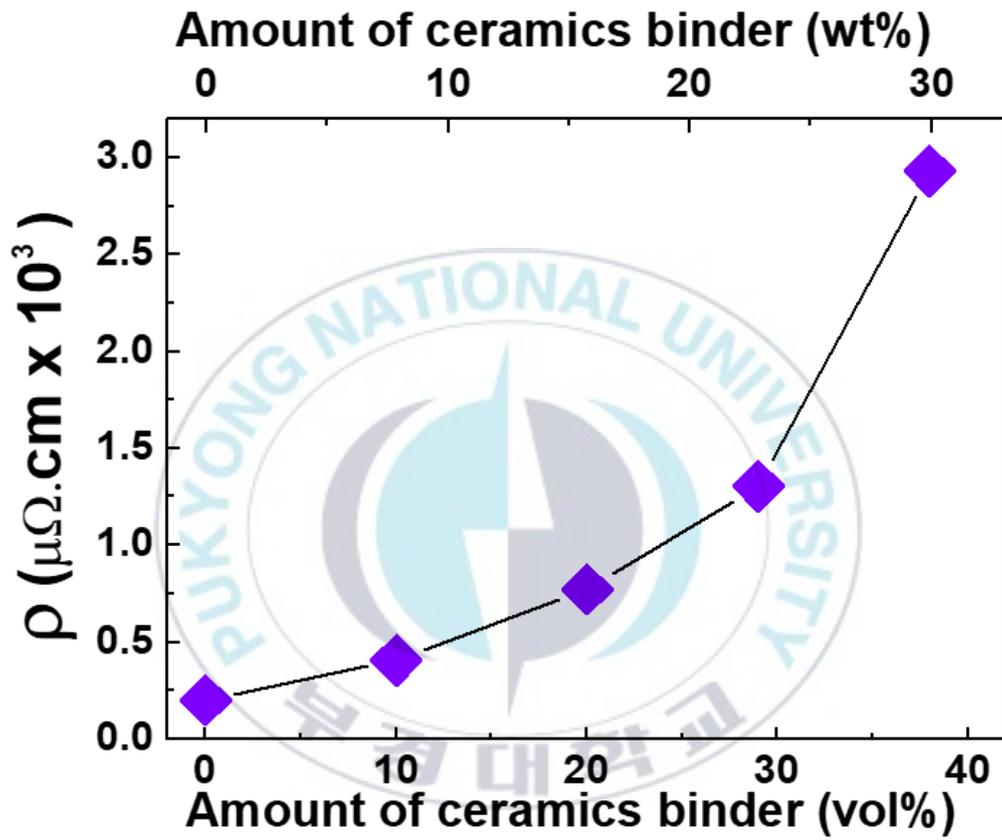


Fig. 14. Dependence of electrical resistivity of the ceramics-bonded magnet of the amount of added ceramics binder.

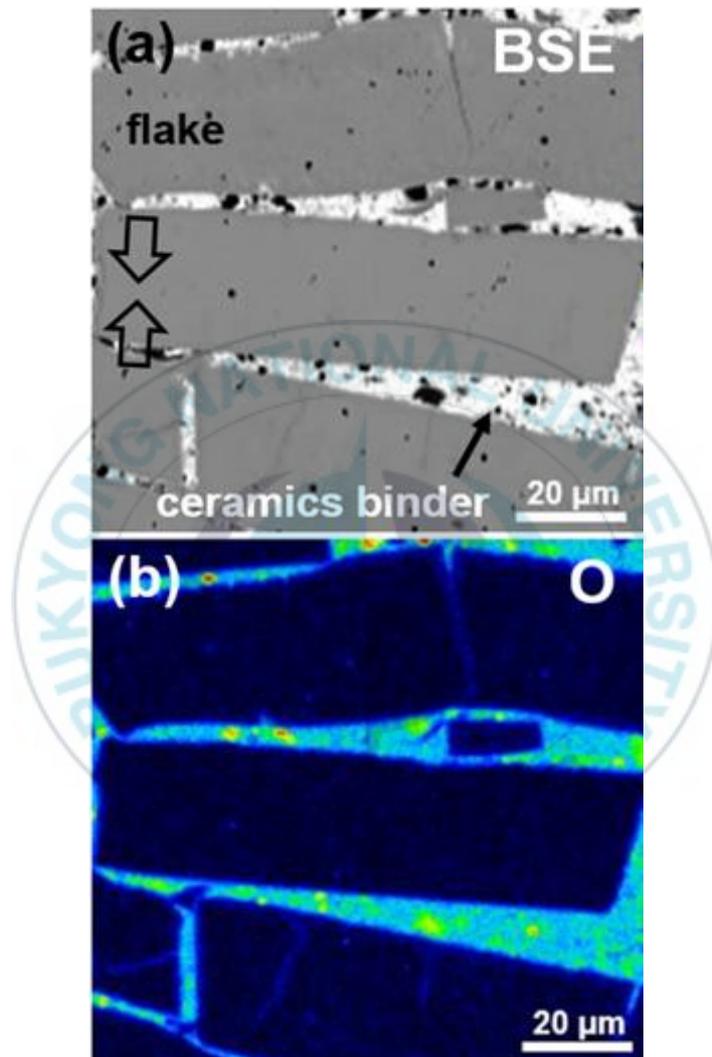


Fig. 15. SEM photos of the ceramics-bonded magnet containing 30 vol% oxide binder. Arrow in (a) indicates pressing direction.

#### 4.1.2 등방성 열간 압축성형 자석의 자기적 성질

그림 16은 HTCB의 첨가량에 따른 열간 압축성형 자석의 자기적 특성의 변화를 나타낸 그림이다. 열간 압축성형 자석의 잔류자화는 HTCB의 첨가량이 증가 할수록 소량 감소하였다. 이는 비자성 물질인 세라믹 분말의 첨가에 의한 자화의 희석(dilution of magnetization) 때문에 감소된 것으로 생각된다. 열간 압축성형 자석의 고유보자력은 HTCB의 첨가량이 증가 할수록 상당한 비율의 감소를 보였다. 이는 다음과 같은 두가지 요인으로 추측할 수 있다. (1)유효반자장계수( $N_{eff}$ )의 증가와 (2)HTCB와 MQU-F 플레이크 분말 사이의 반응으로 인해 플레이크 분말 표면에 얇은 산화막의 생성으로 인해 고유보자력이 감소할 것으로 생각된다.

(1)영구자석의 유효반자장계수( $N_{eff}$ )는 세부분으로 구성되며 식 6.과 같이 나타낼 수 있다.

$$N_{eff} = N_{macro} + N_{grain} + N_{structure} \quad (6)$$

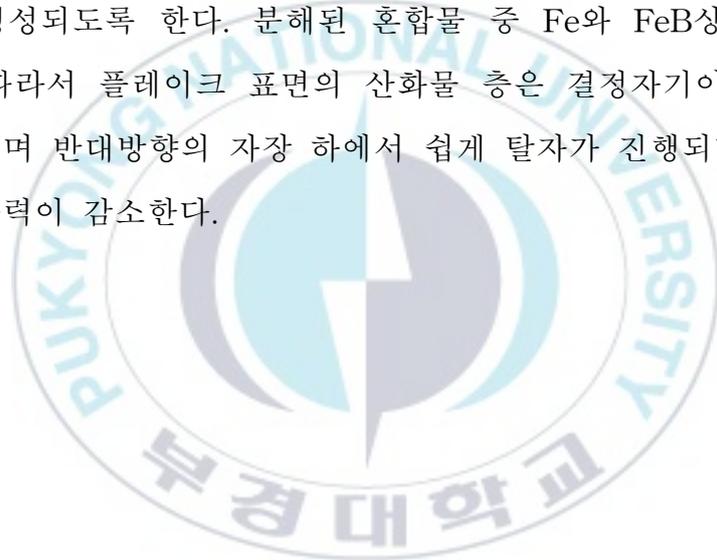
$N_{macro}$ 는 자석의 외형에 의해 결정되는 거시적 반자장계수를 나타낸다.  $N_{grain}$ 은 자석내부의 고립된 결정립의 반자장계수를 나타내며,  $N_{structure}$ 는 비자성 물질들이 만드는 결정립들 사이의 다중 접합부에 생기는 누설자장(stray field)에 의한 반자장계수를 나타낸다. 본 연구에서 사용된 열간 압축성형 자석의 경우는 외형이 모두 동일하기 때문에 첨가한 HTCB의 첨가 여부에 상관없이  $N_{macro}$ 는 동일하다.

$N_{\text{grain}}$ 의 경우는 플레이크 내 결정립들은 대단히 미세하고 결정립들 상호간에 자기적 결합(magnetic coupling)이 잘 되어있기 때문에  $N_{\text{grain}}$ 은 본 연구에서 사용된 열간 압축 성형자석의 경우에는 전체 반자장계수에 기여하는 정도가 대단히 작다.  $N_{\text{flake}}$ 는 본 연구에서 사용된 열간 압축성형 자석의 경우는 그 기여가 다소 클 것으로 판단된다. 그림 15에서 보는 것처럼 플레이크들은 첨가한 HTCB에 의해 거의 완벽하게 고립되어 있기 때문에 플레이크들은 그 판상의 형상으로 인하여 상당히 큰 반자장 계수를 가지는 것으로 판단된다. 또 플레이크의 판상의 형상에 더하여, 열간 압축시 압축으로 인하여 플레이크들의 넓은 표면이 압축방향과 수직인 방향으로 배열되어 그 판상의 형상에 의한 반자장계수의 증가도 있을것으로 판단된다. 자기적 특성을 압축방향과 평행한 방향으로 측정하였기 때문에  $N_{\text{flake}}$ 는 더 크게 될 것으로 판단된다. 마지막으로, 산화물 다중점(multiple junction)에서 발생하는 누설자장에 의한  $N_{\text{structure}}$ 는 본 연구에서 사용한 열간 압축성형 자석의 경우 산화물 다중점이 크고 더 많이 형성되기 때문에 그 크기가 더욱 커질 것으로 판단된다. 따라서 본 연구에서 사용한 자석의 경우 더 정확한 유효반자장계수는 식 7과 같이 나타낼 수 있다.

$$N_{\text{eff}} = N_{\text{macro}} + N_{\text{structure}} + N_{\text{flake}} \quad (7)$$

$N_{\text{structure}}$ 는 본 연구에서 제작한 세라믹 본드자석의 경우 HTCB의 첨가량이 많아질수록 더 커지고 따라서 보자력은 낮아진다. 또 세라믹

본드자석에서 보자력 저하의 영향을 주는 또 다른 중요 인자는 플레이크와 HTCB사이의 반응으로 생긴 플레이크 표면의 얇은 산화층의 존재이다. 열간 압축을 첨가한 HTCB가 액상이 되는 온도인 670°C의 고온에서 실시하였기 때문에 플레이크 표면의 산화는 불가피하고 신속하게 일어난다. 그 결과, 그림 17에서 보는 것처럼 플레이크의 표면 아주 가까운 곳에 수 마이크로미터 두께의 산화물 층이 형성된다. Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B상과 산소의 반응은 Nd상의 분해를 일으켜 NdO<sub>x</sub>+ 혼합물이 형성되도록 한다. 분해된 혼합물 중 Fe와 FeB상은 연자성상이다. 따라서 플레이크 표면의 산화물 층은 결정자기이방성이 크게 낮아지며 반대방향의 자장 하에서 쉽게 탈자가 진행되며 그로 인하여 보자력이 감소한다.



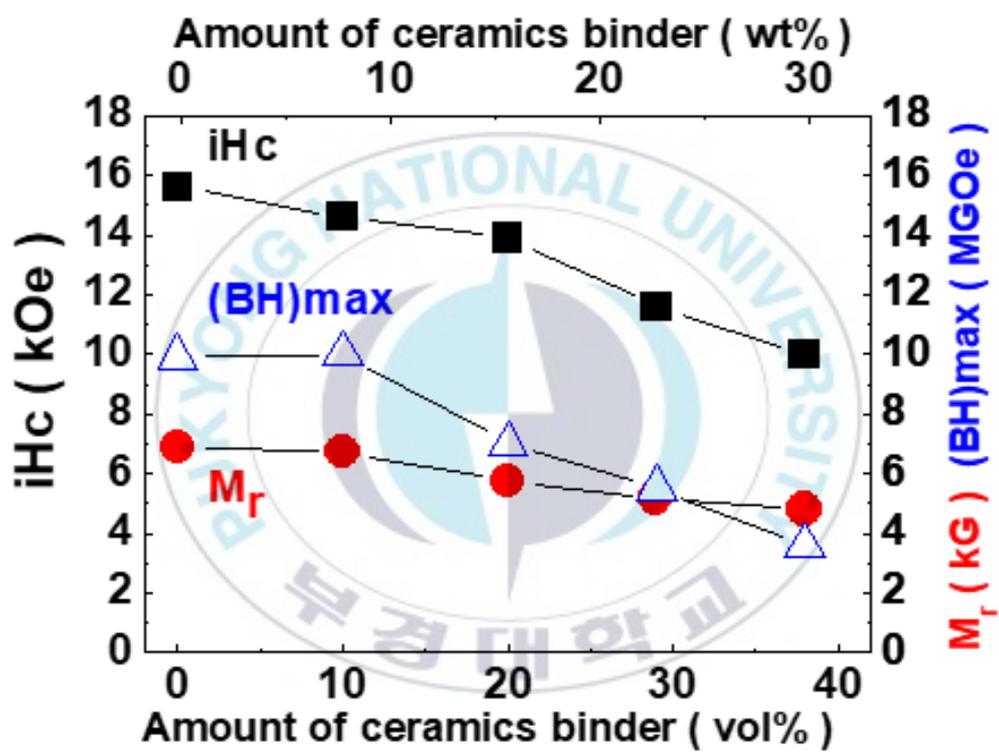


Fig. 16. Dependence of magnetic performance of the ceramics-bonded magnet on the amount of added ceramics binder.

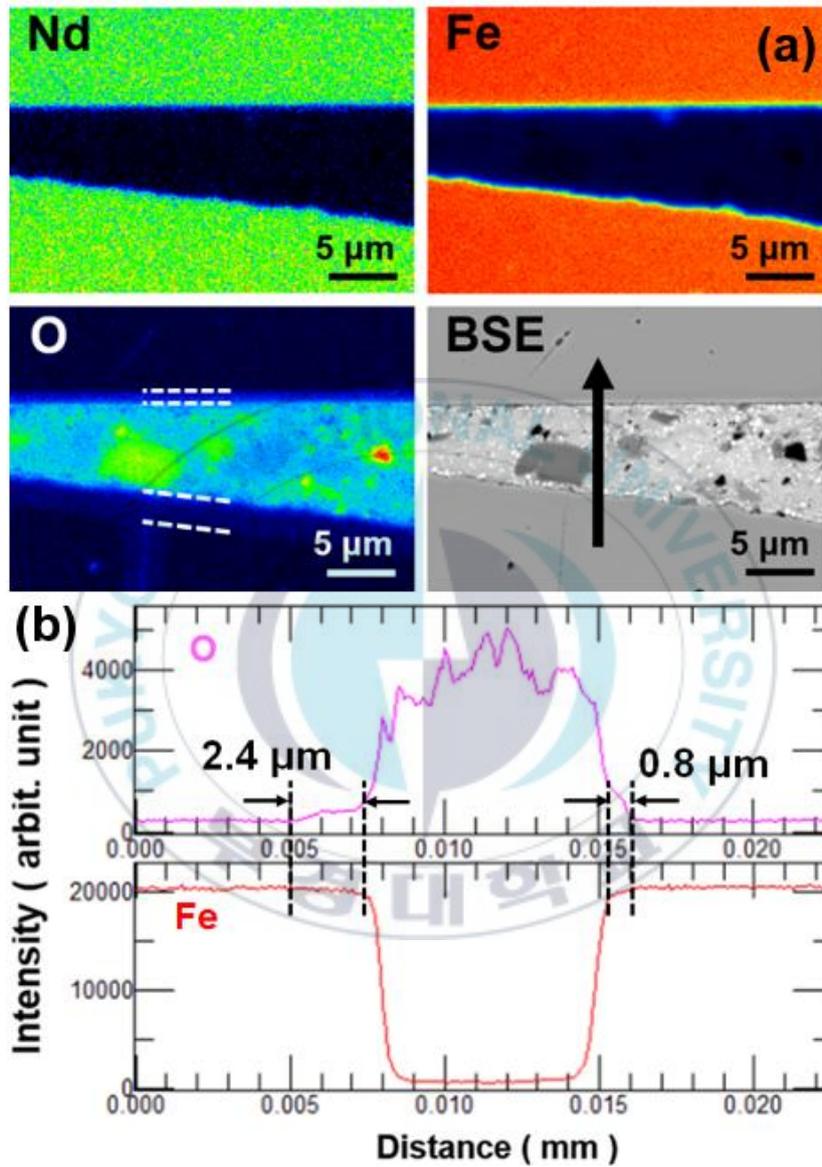


Fig. 17. EPMA X-ray mapping and distribution of elements in the interface between magnetic flake and oxide binder in the ceramics-bonded magnet with 30 vol% oxide binder.

그림 18은 HTCB의 첨가량에 따른 열간 압축성형 자석의 자기적 특성의 온도의존성을 나타낸다. 그 중 HTCB가 30 vol% 첨가된 열간 압축성형 자석은 상온에서 고유보자력이 11.6 kOe, 잔류자화가 5.2 kG, 최대에너지적이 5.5 MGOe의 의미있는 결과를 보였다. HTCB가 30 vol% 첨가된 전기비저항이 대단히 큰 열간 압축세라믹 본드자석은 175 °C에서도 고유보자력은 5 kOe, 잔류자화는 4.8 kG, 최대에너지적은 4.3 MGOe 정도의 우수한 자기적 성능을 보여주었다. HTCB를 첨가하지 않은 자석과 30 vol%의 HTCB를 첨가한 세라믹 본드자석의 잔류자화의 온도계수( $\alpha$ ) 및 보자력의 온도계수( $\beta$ )는 상온에서부터 175°C 온도구간에서 거의 동일하였다.



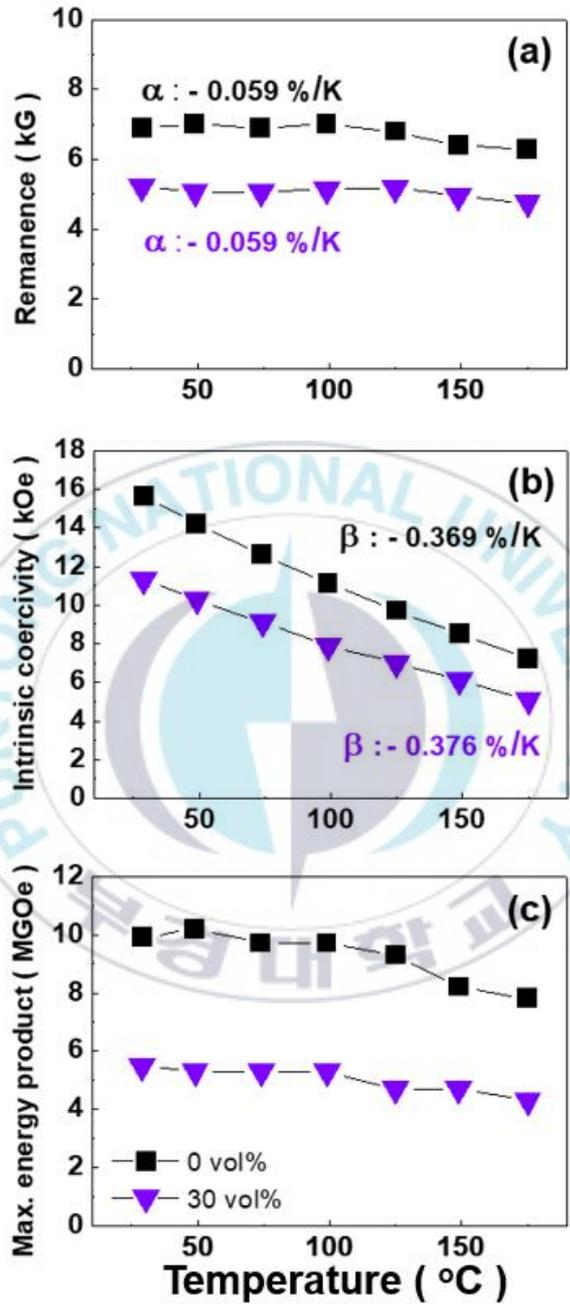


Fig. 18. Temperature dependence of magnetic performance of the ceramics-bonded magnet with and without 30 vol% oxide binder.

## 4.2 이방성 열간 압축성형 자석

### 4.2.1 이방성 열간 압축성형 자석의 전기비저항

그림 19는 열간 압축성형 자석의 LTCB의 첨가량에 따른 전기비저항 변화를 나타내었으며, 그림 19에서와 같이 LTCB가 첨가되지 않은 열간 압축성형 자석의 전기비저항( $220 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ )과 비교하여 LTCB가 15 vol% 첨가된 열간 압축성형 자석의 전기비저항( $730 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ )은 약 3.3배 향상되었다. 이는 그림 20과 같이 열간 압축성형 과정 중 LTCB가  $420^\circ\text{C}$ 에서 용융되어 HDDR 분말을 둘러싸서 전기적으로 분리시키기 때문으로 판단된다. 다만, 전기비저항의 측정 시 LTCB가 첨가되지 않은 열간 압축성형 자석은 밀도가 높지 않았고, 부서지기 쉬워 전기비저항을 측정하는데 적합하지 않았다. 때문에, 훨씬 더 높은 온도인  $735^\circ\text{C}$ 에서 열간 압축성형을 실시하여 높은 밀도의 열간 압축성형 자석을 제조하여 전기비저항을 측정하였다.

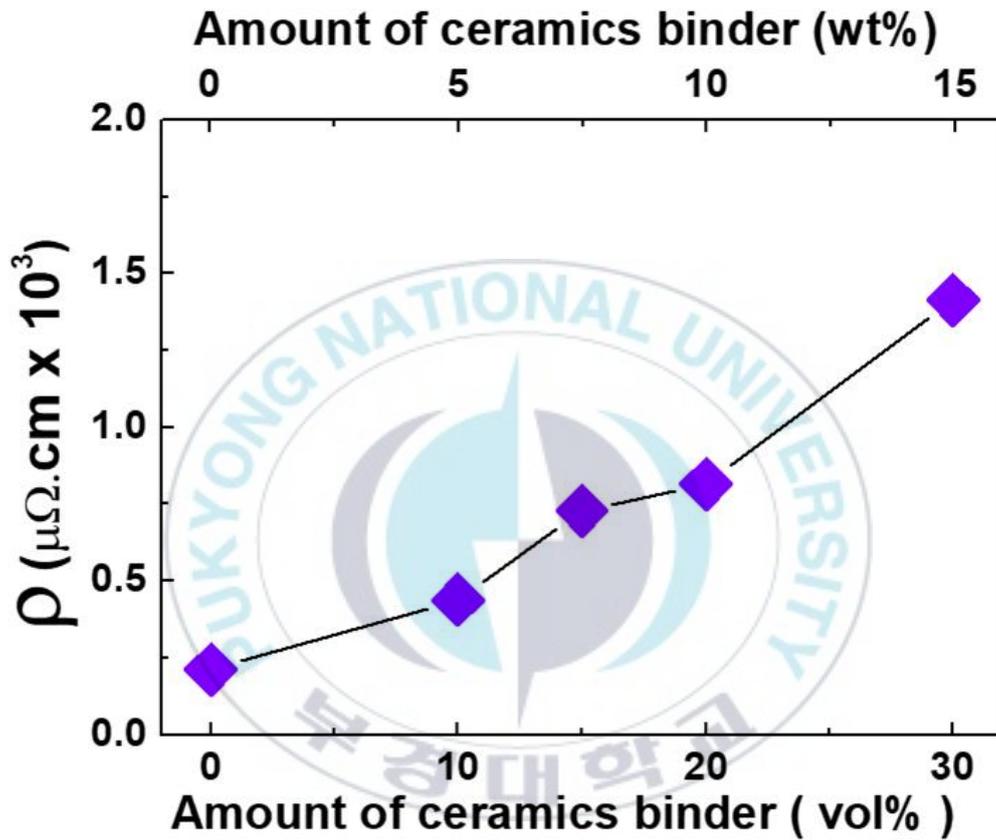


Fig. 19. Dependence of electrical resistivity of the anisotropic ceramics-bonded Nd-Fe-B-type magnet from mixture of HDDR powder and  $\text{V}_2\text{O}_5 - \text{P}_2\text{O}_5 - \text{TeO}_2$  ceramics-binder on the amount of added ceramics binders.

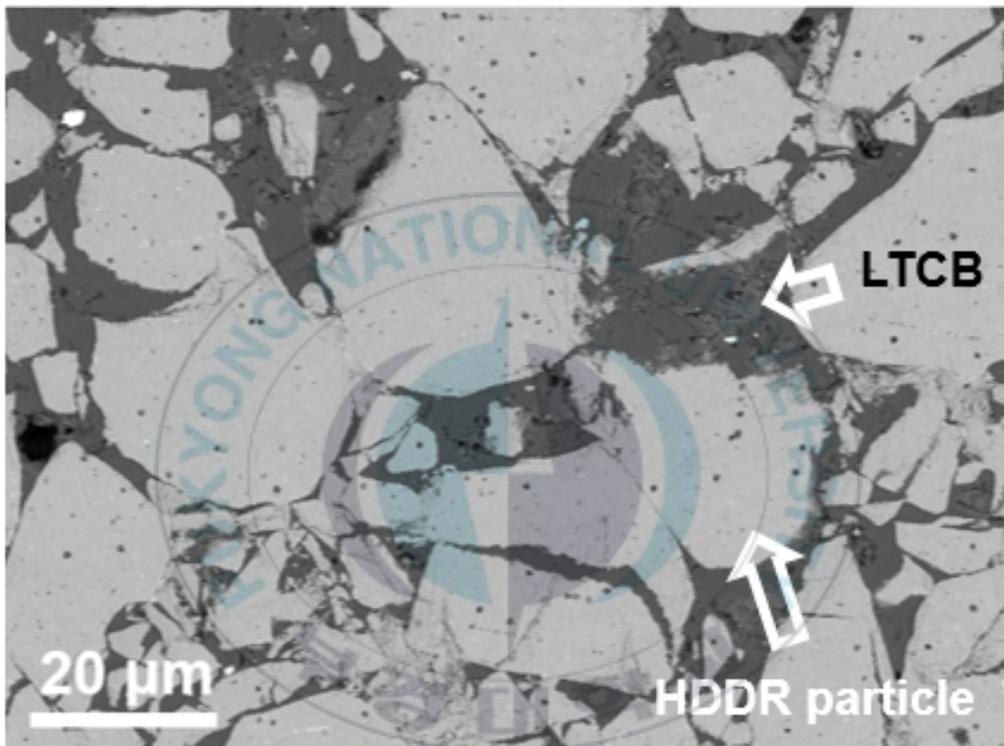


Fig. 20. SEM photo showing magnetic particles separated by dielectric ceramics binder in the ceramics-bonded magnet with 30 vol%  $V_2O_5 - P_2O_5 - TeO_2$  ceramics binder.

#### 4.2.2 이방성 열간 압축성형 자석의 자기적 성질

그림 21은 LTCB의 첨가량에 따른 열간 압축성형 자석의 자기적 특성의 변화를 나타낸 그림이다. 그림 21에서 고유보자력은 첨가된 LTCB의 첨가량에 관계없이 큰 변화를 보이지는 않았다. 이는, 첨가된 LTCB가 열간 압축성형과정에서 액상이 되었지만, 420 °C의 낮은 압축성형온도로 인해 HDDR 입자 표면과 LTCB가 산화반응을 일으키지 않아 입자의 표면손상을 방지하고 초기의 고유보자력을 유지하게 되었으리라 판단된다(그림 22). 잔류자화는 비자성상인 LTCB의 첨가량이 증가함에 따라 감소하였다. 그러나 LTCB를 첨가한 열간 압축성형 자석의 잔류자화는 자화의 희석(dilution of magnetization)에 의해 감소되는 잔류자화 값보다 낮았다. 이는 열간 압축성형 자석에서 HDDR 분말의 정렬의 정도가 감소되었기 때문으로 생각된다. 그 이유는, HDDR 분말은 입자의 크기가 더 컸고(150 - 200  $\mu$  m), 윤활제가 없는 조건에서 큰 입자로 인해 자기장 중에서 HDDR 분말의 정렬(magnetic alignment)은 분말사이의 마찰로 인해 다소 방해받을 가능성이 있다. 이는 그림 23에서 서로 다른 조건 하에서 정렬된 HDDR 분말의 감자곡선으로 인해 확인되었다. 윤활제의 역할을 하는 액상 파라핀 왁스와 함께 정렬된 HDDR 분말(그림 23(a))은 높은 잔류자화(13.2 kG)를 가졌지만, 윤활제 없이 정렬시킨 HDDR 분말(그림 23(b))은 훨씬 낮은 잔류자화(11.2 kG)를 보였다. 이로 인해 액상 윤활제가 첨가되지 않으면 HDDR 분말의 정렬이 크게 방해받아 액상 윤활제와 함께 정렬된 HDDR 분말에 비해서 약

85 %의 정렬정도를 보였다. 또한, HDDR 분말과 15 vol%의 LTCB를 첨가한 혼합물(그림 23(c))은 9.4 kG의 잔류자화를 가지며 이는 HDDR 분말 단독으로 정렬한 잔류자화 값에서 15 vol% 자화의 희석(dilution of magnetization)에 기초해 추정된 값과 유사하다. 이는 LTCB의 첨가유무와 관계없이 HDDR 분말의 정렬의 정도가 동일함을 나타내며, 이는 LTCB가 HDDR 분말의 정렬을 방해하지 않는다는 것을 나타낸다. HDDR 분말과 15 vol%의 LTCB 혼합물의 성형체는 열간 압축성형을 통해 제작된 자석에서도 9.4 kG의 동일한 잔류자화를 보였다. 이는 열간 압축성형 과정에서 HDDR 분말의 흐트러짐이 거의 발생하지 않았고 열간 압축성형 후에도 성형체의 정렬이 손상되지 않았음을 보여주었다. 이로 인해, 더 우수한 입자정렬방법을 개발하면 LTCB를 첨가한 열간 압축성형 자석의 자기적 성능이 훨씬 향상될 것으로 보인다.

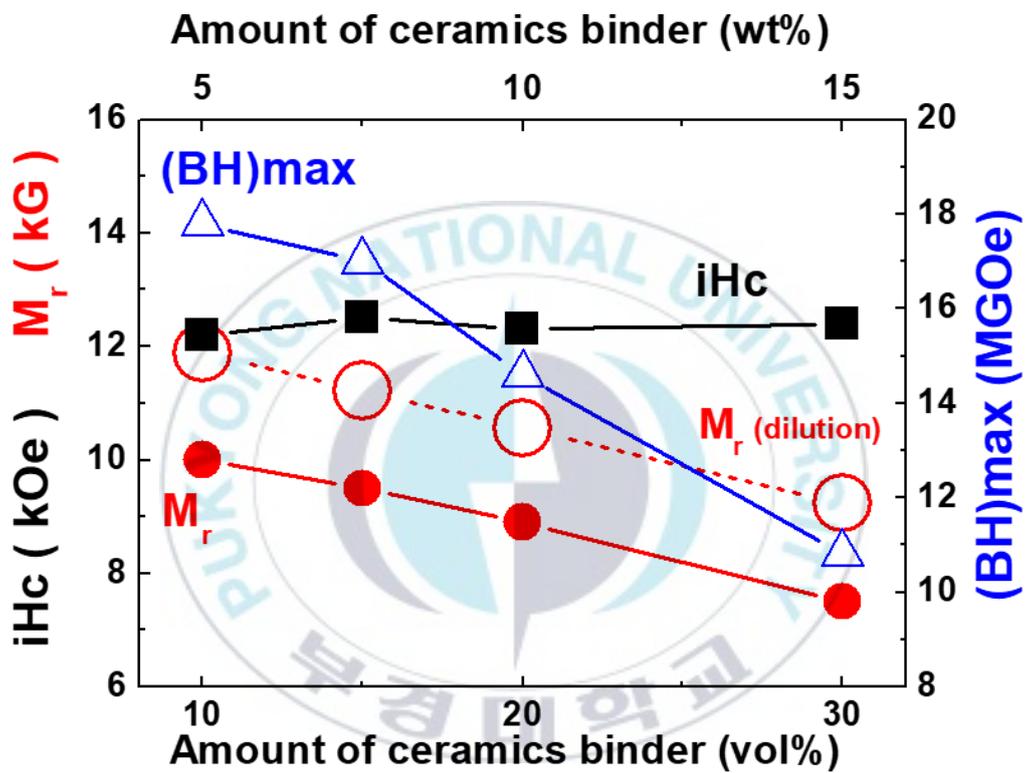


Fig. 21. Dependence of magnetic performance of the anisotropic ceramics-bonded Nd-Fe-B-type magnet from mixture of HDDR and  $V_2O_5 - P_2O_5 - TeO_2$  ceramic binder on the amount of added ceramics binders.

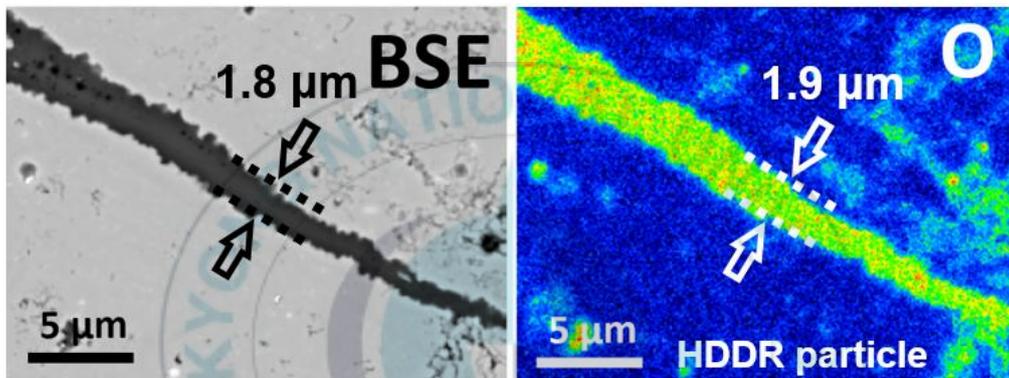


Fig. 22. EPMA element mapping showing surface oxidation of HDDR particle in the anisotropic ceramics-bonded Nd-Fe-B-type magnet with  $V_2O_5 - P_2O_5 - TeO_2$  ceramics binder.

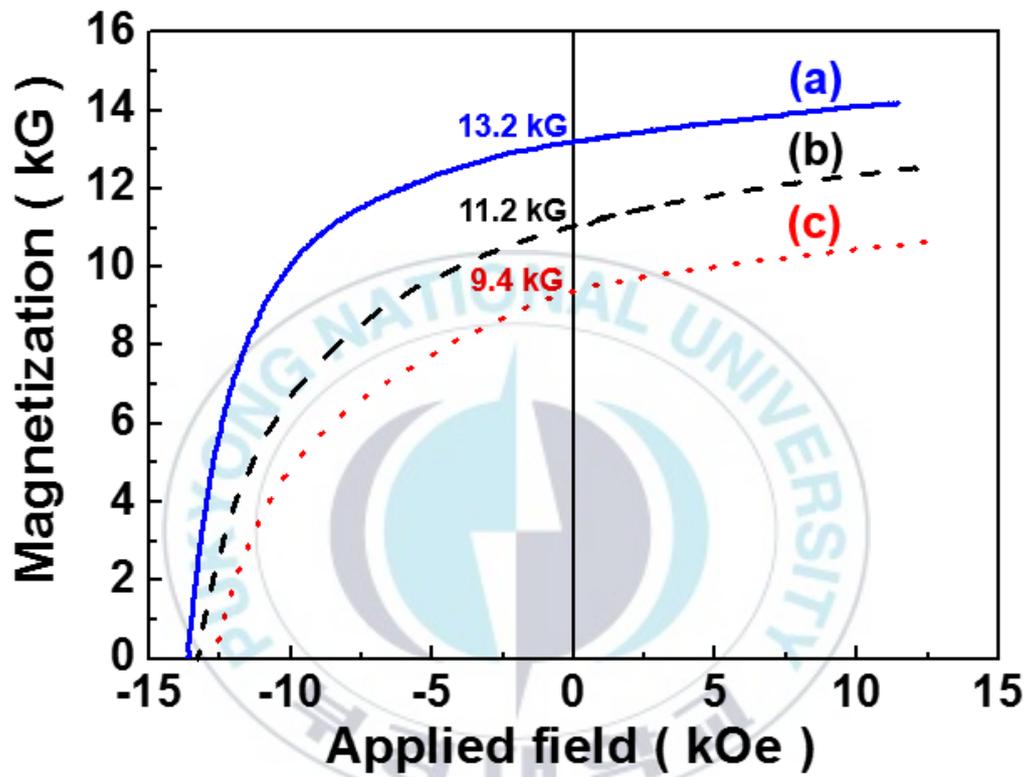
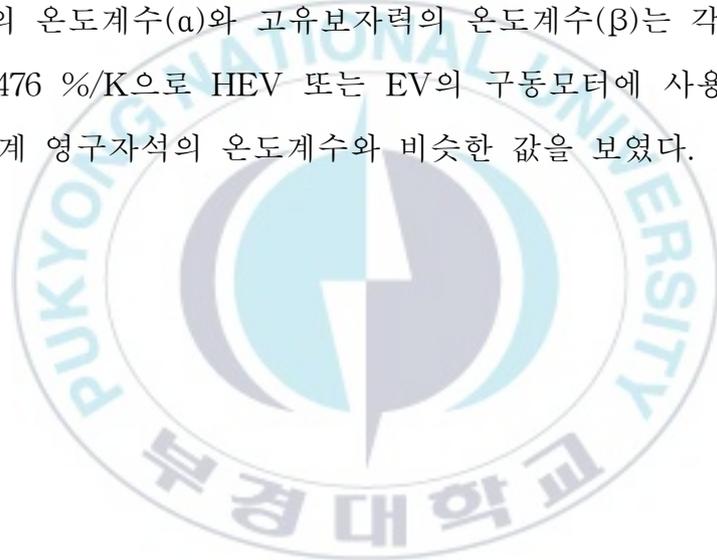


Fig. 23. Demagnetization curves of the HDDR particles aligned (a) with liquid paraffin wax, (b) particles alone, (c) with 15 vol%  $V_2O_5 - P_2O_5 - TeO_2$  ceramics binder.

그림 24는 LTCB를 15 vol% 첨가한 열간 압축성형 자석의 자기적 특성의 온도의존성을 나타낸다. 그림 24에서 열간 압축성형 자석은 상온에서 고유보자력이 12.7 kOe, 잔류자화가 9.4 kG, 최대에너지적이 17.0 MGOe로 좋은 자기적 특성을 보였다. 또한, HEV 및 EV 구동모터에서 사용되는 Nd-Fe-B계 영구자석의 작동온도로 알려진 약 150 °C의 고온에서도 고유보자력이 5.0 kOe, 잔류자화는 8.7 kG, 10.2 MGOe의 최대에너지적으로 여전히 좋은 성능을 보였다. 또한 잔류자화의 온도계수( $\alpha$ )와 고유보자력의 온도계수( $\beta$ )는 각각 -0.074 %/K, -0.476 %/K으로 HEV 또는 EV의 구동모터에 사용되는 상용 Nd-Fe-B계 영구자석의 온도계수와 비슷한 값을 보였다.



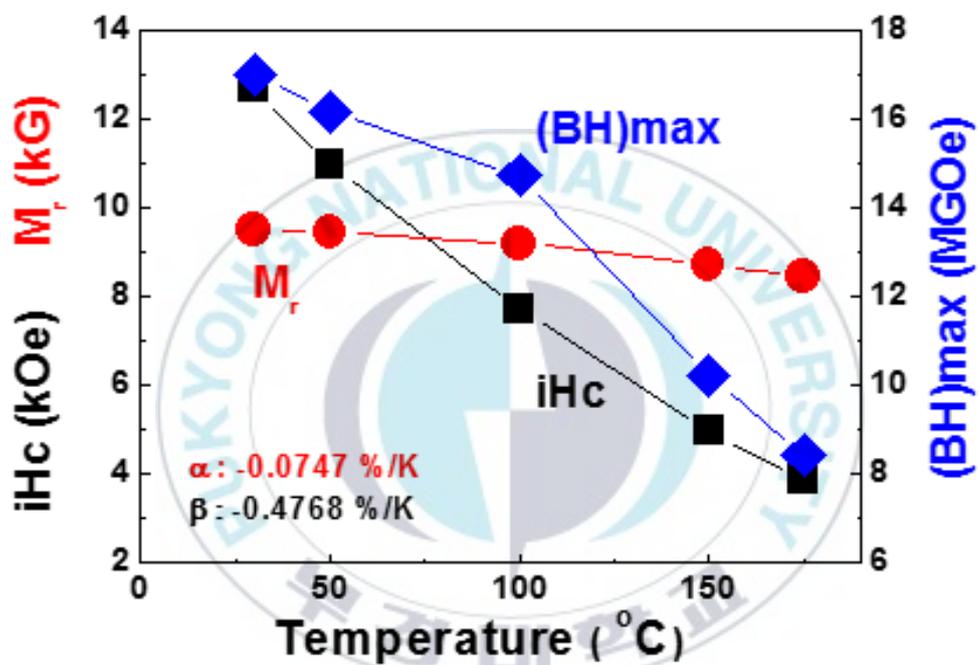


Fig. 24. Temperature dependence of magnetic performance of the anisotropic 15 vol%  $V_2O_5 - P_2O_5 - TeO_2$  ceramics-bonded Nd-Fe-B-type magnet with highly enhanced electrical resistivity.

### 4.2.3 이방성 열간 압축성형 자석의 압축강도

HEV 및 EV의 구동모터에 사용되는 Nd-Fe-B계 영구자석은 회전 구동 시 원심력의 작용으로 높은 압축응력(수백 MPa)을 받는 것으로 알려져 있다[20-21]. 그림 25는 LTCB를 15 vol% 첨가한 열간 압축성형 자석의 파괴강도를 나타낸 그림이다. 파괴강도의 측정에 사용된 시편은 시편제작의 편의를 위해 이방성이 아닌 등방성 열간 압축성형 자석( $\phi 9$  mm X 6mm)을 사용하였다. 이는 이방성 열간 압축성형 자석의 기계적 강도가 등방성 열간 압축성형 자석의 기계적 강도와 큰 차이가 없다고 가정했기 때문이다. 여기에서도 LTCB가 첨가되지 않은 열간 압축성형 자석은 앞서 설명한 이유 때문에 735 °C에서 열간 압축성형을 실시한 시편을 사용하였다. 그림 25에서 볼 수 있듯이 LTCB를 15 vol% 첨가한 열간 압축성형 자석의 파괴강도는 LTCB가 첨가되지 않은 열간 압축성형 자석보다 파괴강도가 약간 낮았다. 그러나 HEV 혹은 EV의 구동모터의 작동온도인 약 150°C에서 요구되는 수백 MPa정도 이상의 충분한 파괴강도를 보였다.

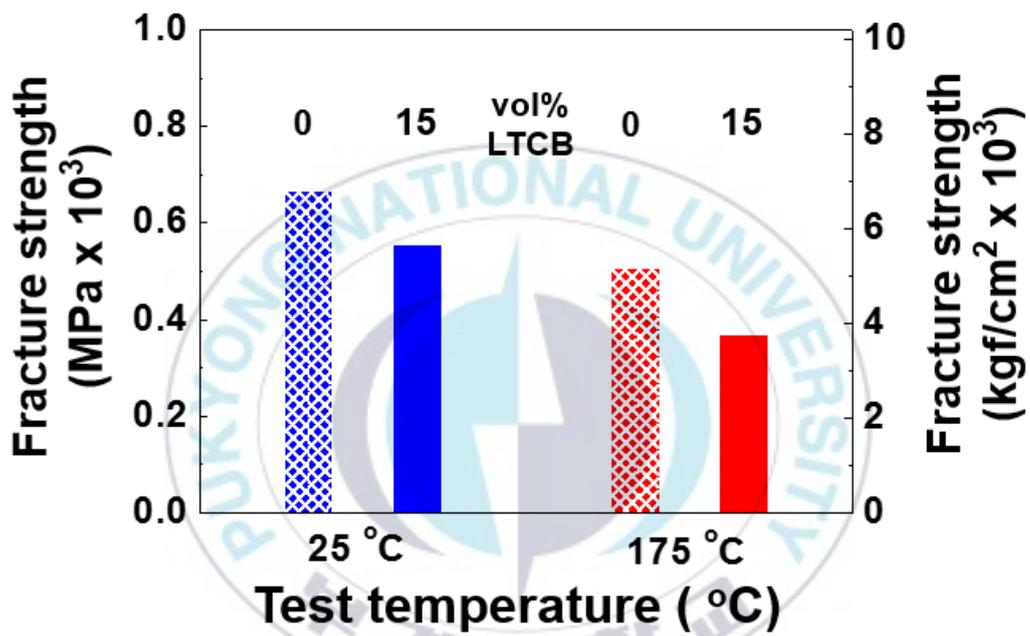


Fig. 25. Fracture strength of the anisotropic ceramics-bonded Nd-Fe-B-type magnets with and without 15 vol%  $V_2O_5 - P_2O_5 - TeO_2$  ceramics binder.

## 5. 결론

높은 전기비저항을 가지는 열간 압축성형 자석의 제조는 용점이 낮은 산화물을 첨가하여 가능해졌다. 등방성 열간 압축성형 자석에서 HTCB의 첨가량이 증가함에 따라 고유보자력은 감소하였으며, 이는 유효반자장계수의 증가 및 플레이크 분말과 HTCB사이의 반응에 의해 형성된 플레이크 분말 표면의 얇은 산화층에 의해 일어난다. 또한 30 vol%의 HTCB를 첨가한 열간 압축성형 자석의 전기비저항( $1303 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ )은 HTCB를 첨가하지 않은 열간 압축성형 자석의 전기비저항( $200 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ )에 비해 현저하게 향상되었고, 자기적 특성 또한 상온에서 좋은 자기적 특성( $iH_c = 11.3 \text{ kOe}$ ,  $M_r = 5.2 \text{ kG}$ ,  $(BH)_{\text{max}} = 5.5 \text{ MGOe}$ )을 보였으며,  $175 \text{ }^\circ\text{C}$ 에서도 좋은 자기적 특성( $iH_c = 5.1 \text{ kOe}$ ,  $M_r = 4.8 \text{ kG}$ ,  $(BH)_{\text{max}} = 4.3 \text{ MGOe}$ )을 보였다. 이방성 열간 압축성형 자석에서 15 vol%의 LTCB를 첨가한 열간 압축성형 자석의 전기비저항( $730 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ )은 LTCB를 첨가하지 않은 열간 압축성형 자석의 전기비저항( $220 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ )에 비해 현저히 향상되었다. 자기적 특성은 낮은 열간 압축성형 온도로 인해 HDDR 분말 표면과 LTCB 사이의 유해한 반응이 크게 억제되어 열간 압축성형 자석에서도 초기의 HDDR 분말의 높은 보자력을 유지할 수 있었다. 15 vol%의 LTCB가 첨가된 열간 압축성형 자석의 상온 자기적 특성( $iH_c = 12.7 \text{ kOe}$ ,  $M_r = 9.4 \text{ kG}$ ,  $(BH)_{\text{max}} = 17.0 \text{ MGOe}$ )은 좋은 특성을 보였고  $150 \text{ }^\circ\text{C}$ 에서도 좋은 자기적 특성( $iH_c = 5.0 \text{ kOe}$ ,  $M_r = 4.8 \text{ kG}$ ,  $(BH)_{\text{max}} = 4.3 \text{ MGOe}$ )과 충분한 파괴강도( $360 \text{ MPa}$ )를 보였다.

## 참고문헌

- [1] D. Brown, B. Ma, and Z. Chen, *J. Magn. Magn. Mater.*, 248, 432 (2002).
- [2] O. Gutfleisch, M. A. Willard, E. Bruck, C. H. Chen, S. G. Sankar, and J. P. Liu, *Adv. Mater.* 23, 821 (2011).
- [3] S. Sugimoto, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 44, 064001 (2011).
- [4] M. Sagawa, S. Fujimura, N. Togawa, H. Yamamoto, and Y. Matsuura, *J. Appl. Phys.*, 55, 2083 (1984).
- [5] W. Li, T. Ohkubo, K. Hono, T. Nishiuchi, and S. Hirose, *Appl. Phys. Lett.*, 93, 052505 (2008).
- [6] H. Nakamura, K. Hirota, M. Shimao, T. Minowa, and M. Honshima, *IEEE Trans. Magn.* 41, 3844 (2005).
- [7] K. Hirota, H. Nakamura, T. Minowa, and M. Honshima, *IEEE Trans. Magn.* 42, 2909 (2006).
- [8] J. Y. Kim, H. W. Kwon, J. G. Lee, and J. H. Yu, *IEEE Trans. Magn.* 51, 2104404 (2015).
- [9] J. Y. Kim, H. W. Kwon, J. G. Lee, and J. H. Yu, *IEEE Trans. Magn.* 52, 2100904 (2016).

- [10] K. M. Kim, J. Y. Kim, H. W. Kwon, D. H. Kim, J. G. Lee, and J. H. Yu, *AIP Adv.* 7, 056232 (2017).
- [11] J. F. Herbst, *Rev. Mod. Phys.* 63, 819 (1991).
- [12] G. Yan, P. J. McGuinness, J. P. G. Farr, and I. R. Harris, *J. Alloys Compd.* 491, L20 (2010).
- [13] J. R. Hendershot, Jr. and T. J. E. Miller, *Design of Brushless Permanent Magnet Motors*, Oxford, U.K., Magna Physics (1994).
- [14] Z. Q. Zhu, K. Ng, N. Schofield, and D. Howe, *Proc. Inst. Elect. Eng.-Elect. Power Appl.* 151, 641 (2004).
- [15] D. Ishak, Z. Q. Zhu, and D. Howe, *IEEE Trans. Magn.* 41, 2462 (2005).
- [16] Y. Amara, J. Wang, and D. Howe, *IEEE Trans. Energy Convers.* 20, 761 (2005).
- [17] K. M. Kim, J. Y. Kim, H. W. Kwon, D. H. Kim, J. G. Lee, and J. H. Yu, *AIP Adv.* 7, 056232 (2017).
- [18] S. P. Yawale and S. V. Pakade, *J. Mater. Sci.* 28, 5451 (1993).
- [19] N. Takashi, M. Akifumi, S. Daishi, A. Takuya, S. Yuichi, F. Tadashi, T. Shinichi, Y. Kei, H. Yuji, and Y. Mamoru, *J. Ceram.*

Soc. Japen. 121, 452-456 (2013).

[20] M. Takezawa, Y. Morimoto, J. Ejima, Y. Nakano, and T. Araki, Electr. Eng, Jpn. Vol. 203, Np. 1, 2018.

[21] M. Mito, H. Goto, K. Nagai, K. Tsuruta, H. Deguchi, T. Tajiri, and K. Konishi, J. Appl. Phys., Vol. 118, No. 14, pp. 145901-1 - 145901-6, 2015.



[부록]



be concluded that: 1. the higher setpoint amplitude is helpful in tracking the sample surface for the authenticity of the AFM image; 2. SEM-based focused ion beam (FIB) technique is more suitable for preparing the sample for MFM due to the lower roughness value; 3. Lowering the lift height will enhance the magnetic signal so that a better contrast MFM image will be obtained, with an increasing possibility of hitting the sample. Figure 1 shows the influence of lift-height on the AFM and MFM images of the SEM-FIB sample on two different locations, marked by Square X, Y, and Square X<sub>2</sub>, Y<sub>2</sub> in Figure 1(a), where MIESP-V2 probes and PPP-MFM probes were used respectively. With increasing lift-height from 40 nm to 100 nm, the magnetic domains still become blurred and the range of MFM signal response shrinks considerably from -23°~40° to -17°~25°. Note that high-resolution AFM and MFM images were obtained on the SEM-FIB sample using MIESP-V2 probes. When the lift-height is reduced from 100 nm to 40 nm, the magnetic nanodomains are present, caused by a weaker averaging effect of the magnetic field, as illustrated in Figure 1(d).

1. O. Gutfeisch, et al., *Advanced Materials*, 23(7), 821-842 (2011). 2. D. Schöbinger, et al., *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 242, 1347-1349 (2002).

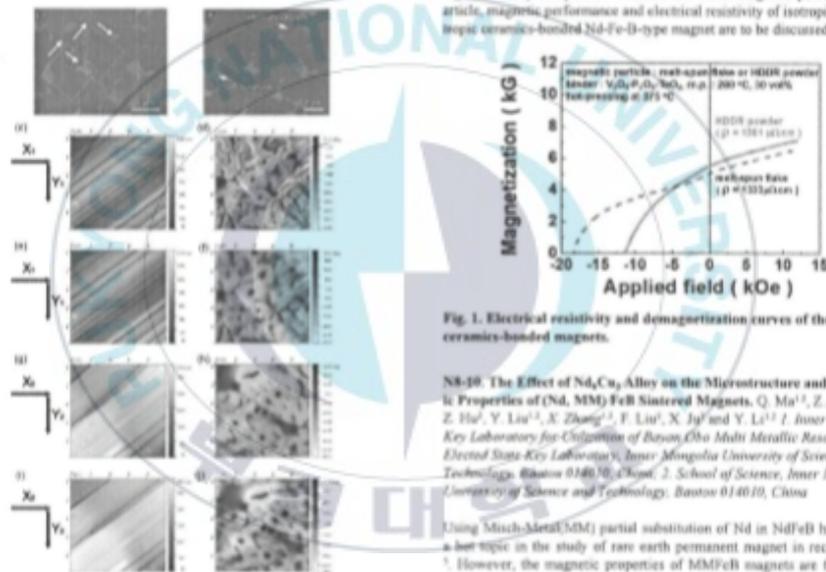


Figure 1. SE, BSE, AFM and MFM images of the SEM-FIB sample.

**N8-09. Magnetic performance and electrical resistivity of ceramics-bonded Nd-Fe-B-type magnet.** M. Kang<sup>1</sup>, H. Kwon<sup>1</sup>, D. Kim<sup>1</sup>, J. Lee<sup>2</sup> and J. Yu<sup>1</sup>. <sup>1</sup> Pohang National University, Busan, The Republic of Korea; <sup>2</sup> Star-Group Ind. Co., Daegu, The Republic of Korea; <sup>3</sup> Korea Institute of Materials Science, Changwon, The Republic of Korea

Nd-Fe-B-type permanent magnet is almost exclusively used in traction motor of EV and HEV. As operating temperature of the magnet in the traction motor is overly high (> 150 °C), large temperature coefficient of coercivity of the magnet (β) still remains as technological barrier to be overcome. Common approach for solving this problem is further enhancing coercivity. As the overly high operating temperature of the magnet is due mainly to eddy current induced in the magnet during operation, enhancing electrical

resistivity of the magnet could suppress the induction of eddy current. High electrical resistivity of the magnet would, therefore, create added synergy when combined with enhanced coercivity. We made attempt to prepare ceramics-bonded Nd-Fe-B-type magnet with high electrical resistivity using dielectric oxide binder with low melting point. Isotropic and anisotropic ceramics-bonded Nd-Fe-B-type magnets were fabricated by hot-pressing or die-upsetting mixture of magnetic particles (Nd-Fe-B-type melt-spun and HDDR materials) and multi-component oxide ceramics particles with low melting point (240 °C ~ 550 °C). Fabrication of isotropic or anisotropic ceramics-bonded Nd-Fe-B-type magnets with good magnetic performance and high electrical resistivity was feasible by the hot-pressing or die-upsetting. Electrical resistivity of the ceramics-bonded Nd-Fe-B-type magnets was remarkably high (>1300 μΩ·cm) with respect to that (< 200 μΩ·cm) of the magnets without the ceramics-binder (Fig. 1). Added dielectric binder played a key role in electrical isolation of the magnetic particles, hence leading to high electrical resistivity. Coercivity of the ceramics-bonded magnet was heavily dependent upon the pressing temperature and the melting point of binder. The isotropic and anisotropic ceramics-bonded magnets pressed at lower temperature using oxide binder with lower melting point could retain high coercivity comparable to that in the initial magnetic powder. In this article, magnetic performance and electrical resistivity of isotropic or anisotropic ceramics-bonded Nd-Fe-B-type magnet are to be discussed.

Fig. 1. Electrical resistivity and demagnetization curves of the isotropic ceramics-bonded magnets.

**N8-10. The Effect of Nd<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub> Alloy on the Microstructure and Magnetic Properties of (Nd, MM)FeB Sintered Magnets.** Q. Ma<sup>1,2</sup>, Z. Zhang<sup>2</sup>, Z. Hu<sup>2</sup>, Y. Liu<sup>1,3</sup>, X. Zhang<sup>2</sup>, F. Liu<sup>2</sup>, X. Jia<sup>2</sup> and Y. Li<sup>1,2</sup>. <sup>1</sup> Inner Mongolia Key Laboratory for Utilization of Bayan Obo Multi-Metallic Resources; <sup>2</sup> Elected State Key Laboratory, Inner Mongolia University of Science and Technology, Baotou 014010, China; <sup>3</sup> School of Science, Inner Mongolia University of Science and Technology, Baotou 014010, China

Using Match-Metal(MM) partial substitution of Nd in NdFeB has become a hot-topic in the study of rare earth permanent magnet in recent years<sup>1-3</sup>. However, the magnetic properties of MMFeB magnets are far inferior to those of Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B. Especially for the intrinsic coercivity<sup>4</sup>. The mechanism of the coercivity enhancement in (MM)NdFeB sintered magnets with the low-melting point intergranular additive was discussed in details. In the present study, Nd<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub> (at%) alloy powders were added in the (MM)NdFeB double main phases sintered magnets. The powders of MM<sub>1-x</sub>Fe<sub>14-x</sub>Cu<sub>3-x</sub>(M=Nd, Cu, Al, Zr, Ti, Zr, Nb, Ta, Ni) (wt%) alloy were prepared and mixed with commercial (Nd<sub>2</sub>Pr)<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B (wt%) powders at a mass fraction of 0.3. Then the mixed powders were aligned and compacted under a magnetic field of 1.5 T and a pressure of ~ 5 MPa in an N<sub>2</sub>-filled glove box, followed by an isostatic pressing at ~200MPa. In order to improve the microstructure and coercivity of the (Nd<sub>1-x</sub>, MM<sub>x</sub>)<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B magnets, Nd<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub> (at%) powders were added into the magnets in this work. Consequently the green compacts were sintered at the temperatures ranging from 1060-1080 °C for 2h to make sure the density of the magnets and then the as-sintered magnets were annealed at the temperatures ranging from 500 - 520 °C for 2h. When added with 5 wt.% Nd<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub> powders, the



62<sup>ND</sup> ANNUAL  
CONFERENCE ON  
MAGNETISM AND  
MAGNETIC MATERIALS  
PROGRAM

MMM 2017  
PITTSBURGH  
NOVEMBER 6-10, 2017



*Jointly sponsored by AIP Publishing, LLC and the IEEE Magnetics Society*

**FT-06. Visualization of relationship between magnetic domain and grain boundary in Nd-Fe-B sintered magnet by using soft X-ray magnetic circular dichroism microscope.** T. Mak<sup>1</sup>, D. Furusawa<sup>1</sup>, T. Nishiuchi<sup>1</sup> and M. Takezawa<sup>2</sup> *1. Magnetic Materials Research Laboratory, Hitachi Metals, Ltd., Mishima-gun, Japan; 2. Faculty of Engineering, Kyusyu Institute of Technology, Kitakyushu, Japan*

**FT-07. The magnetic properties of (La,Ce)Co<sub>5</sub> ((La,Ce)-La<sub>0.35</sub>Ce<sub>0.65</sub>-La-Ce mischmetal) nanoflakes prepared by surfactant-assisted ball milling.** X. Zhao<sup>1,2</sup>, W. Zuo<sup>1</sup>, J. Xiong<sup>1,2</sup>, D. Liu<sup>1,2</sup>, Y. Zhang<sup>1,2</sup>, S. Zuo<sup>1,2</sup>, T. Zhao<sup>1,2</sup>, X. Zheng<sup>1</sup>, F. Hu<sup>1,2</sup> and B. Shen<sup>1,2</sup> *1. State Key Laboratory of Magnetism, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing, China; 3. School of Materials Science and Engineering, University of Science and Technology Beijing, Beijing, China*

**FT-08. Coercivity enhancement of Nd-Fe-B sintered magnet by two-step grain boundary diffusion process with Pr-Tb-Cu-Al alloys.** K. Liu<sup>1</sup>, X. Bao<sup>1</sup>, M. Tang<sup>1</sup>, X. Mu<sup>1</sup>, J. Li<sup>1</sup> and X. Gao<sup>1</sup> *1. State Key Laboratory for Advanced Materials and Materials, University of Science and Technology, Beijing, China*

**FT-09. Feasibility study of electrophoresis deposition of DyF<sub>3</sub> on Nd-Fe-B particles for coercivity enhancement.** K. Kim<sup>1</sup>, H. Kwon<sup>1</sup>, J. Lee<sup>2</sup> and J. Yu<sup>3</sup> *1. Pukyong National University, Busan, The Republic of Korea; 2. Korea Institute of Materials Science, Chungwon, The Republic of Korea*

**FT-10. Corrosion Resistance and Magnetic Properties of Zinc-aluminum Coating on NdFeB Magnets.** Y. Zhou<sup>1</sup>, Y.Q. Zhou<sup>1</sup>, A. Yan<sup>1</sup> and D. Lee<sup>2</sup> *1. Magnetic Materials and Mechanical Equipment Department, Ningbo Institute of Materials Technology & Engineering, Chinese Academy of Sciences, Ningbo City, China*

**FT-11. Ceramics-bonded Nd-Fe-B-Type Magnet with High Electrical Resistivity.** M. Kang<sup>1</sup>, H. Kwon<sup>1</sup>, D. Kim<sup>1</sup>, J. Lee<sup>1</sup> and J. Yu<sup>1</sup> *1. Pukyong National University, Busan, The Republic of Korea; 2. Steel-group Ind. Co., Daejeon, The Republic of Korea; 3. Korea Institute of Materials Science, Changwon, The Republic of Korea*

**FT-12. Improved Thermal Stability of TbF<sub>3</sub>-Coated Sintered Nd-Fe-B Magnets by Electrophoretic Deposition.** X. Cao<sup>1</sup>, L. Chen<sup>1</sup>, S. Gao<sup>1</sup>, J. Di<sup>1</sup>, R. Chen<sup>1</sup> and A. Yan<sup>1</sup> *1. Zhejiang Province Key Laboratory of Magnetic Materials and Application Technology, Ningbo Institute of Materials Technology and Engineering, Chinese Academy of Sciences, Ningbo, China*

**FT-13. Magnetic and Mossbauer study of co-doped Sr<sub>1-x</sub>RE<sub>x</sub>Fe<sub>12-x</sub>Cu<sub>x</sub>O<sub>19</sub> (RE=La and Pr) and SrFe<sub>12-x</sub>Cu<sub>x</sub>O<sub>19</sub> hexaferrites.** M. Ghimire<sup>1</sup>, S. Yoon<sup>1</sup> and S. Mishra<sup>1</sup> *1. Department of Physics and Materials Science, The University of Memphis, Memphis, TN*

## Ceramics-bonded Nd-Fe-B-type magnet with high electrical resistivity

M. S. Kang,<sup>1</sup> H. W. Kwon,<sup>1,2</sup> D. H. Kim,<sup>2</sup> J. G. Lee,<sup>3</sup> and J. H. Yu<sup>3</sup>

<sup>1</sup>*Pukyong National University, Busan, Republic of Korea, 48513*

<sup>2</sup>*Star-Group Ind. Co., Daegu City, Republic of Korea, 42714*

<sup>3</sup>*Korea Institute of Materials Science, Changwon, Republic of Korea, 51508*

(Presented 9 November 2017; received 11 September 2017; accepted 29 November 2017; published online 10 January 2018)

Ceramics-bonded magnet with remarkably high electrical resistivity was fabricated by hot-pressing the mixture of Nd<sub>13.6</sub>Fe<sub>73.6</sub>Co<sub>6.6</sub>Ga<sub>0.6</sub>B<sub>5.6</sub> alloy melt-spun flakes and dielectric Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ceramics powder with low melting point. Coercivity of the ceramics-bonded magnet decreased with increasing the addition of ceramics binder, and this was attributed to the increased demagnetizing factor. Thin oxidized layer on the flake surface formed by reaction between the flake and oxide binder also contributed to reducing coercivity in the ceramics-bonded magnet. Highly resistive ceramics-bonded magnet containing 30 vol% ceramics binder still had good magnetic performance and high mechanical strength at 175 °C: iH<sub>c</sub> = 5 kOe, Mr = 4.8 kG, (BH)<sub>max</sub> = 4.3 MGOe, and over 900 MPa. © 2018 Author(s). All article content, except where otherwise noted, is licensed under a Creative Commons Attribution (CC BY) license (<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>). <https://doi.org/10.1063/1.5004094>

### I. INTRODUCTION

Nd-Fe-B-type magnet is exclusively utilized as permanent magnet part in a traction motor of HEV, EV because of its superior magnetic performance. As Curie temperature of the Nd-Fe-B-type magnet is not high enough (just above 315 °C) and operating temperature of the magnet in the traction motor is undesirably high (> 150 °C), high coercivity is definitely needed. Coercivity enhancement in the Nd-Fe-B-type magnet is commonly achieved by substitution of Nd atoms in the magnet by heavy rare earth (HRE: Dy, Tb).<sup>1,2</sup> However, the HRE-substitution inevitably leads to significant reduction of magnetic performance and cost rise. Heating of the magnet is due largely to eddy current caused in the magnet by varying magnetic field from slots of the stator (slot ripple with around 30 Oe and 3 kHz frequency) exposing to the magnet during operation.<sup>3,4</sup> As eddy current is inversely proportional to the electrical resistivity of a material, enhancing electrical resistivity of the magnet is equally important for suppressing the eddy current and hence lowering operating temperature of the magnet. Because the Nd-Fe-B-type magnet is basically metal alloy, enhancing electrical resistivity of the magnet may be by no means easy task. Previously, several attempts have been made to enhance the electrical resistivity of Nd-Fe-B-type magnet using dielectric salts, but to no avail.<sup>5-7</sup> In the present study, we made attempt to prepare ceramics-bonded Nd-Fe-B-type magnet with high electrical resistivity using oxide binder with low melting point.

### II. EXPERIMENTAL

Nd<sub>13.6</sub>Fe<sub>73.6</sub>Co<sub>6.6</sub>Ga<sub>0.6</sub>B<sub>5.6</sub> alloy melt-spun flakes (150 – 300 μm) were mixed with dielectric ceramics powder of Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> system (~ 1 μm, melting point: ~ 550 °C), and the mixture was hot-pressed with pressure of 400 MPa in Ar at 670 °C to prepare near full density isotropic magnet.

<sup>4</sup>Electronic mail: hwkwon@pknu.ac.kr



Electrical resistivity and density of the prepared specimen were measured by using a Four-Point Probe and an Archimedes' principle, respectively. Magnetic characterization was performed using VSM equipped with heating oven for sample pre-magnetized with 5 Tesla field along the pressing direction. Microstructure observation and element distribution analysis were performed by SEM and EPMA. Mechanical strength of the prepared specimen was evaluated using compressive fracture strength measured by UTM (universal testing machine).

### III. RESULTS AND DISCUSSION

Fig. 1 shows characteristics of the  $\text{Bi}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2\text{-B}_2\text{O}_3\text{-ZnO}$  ceramics powder examined by XRD and DTA. In the XRD patterns a broad hump appeared in the range  $2\theta = 20 - 40$  degree, and this was due to the presence of short-range order, indicating that the ceramics binder was in amorphous state. As can be seen in DTA trace, melting point of the ceramics powder was approximately  $550^\circ\text{C}$ . Physical properties of the ceramics powder were summarized in Fig. 1(c). The properties were measured in this work except electrical resistivity, which was referred to previous report on similar material system.<sup>8</sup>

Fig. 2(a) shows dependence of electrical resistivity of the ceramics-bonded magnet on the amount of added ceramics binder. Electrical resistivity of the ceramics-bonded magnet was drastically enhanced by addition of the ceramics binder, and the enhancement was by a factor of 6.5 when containing 30 vol% ceramic binder ( $1303 \mu\Omega\text{cm}$ ) compared to the magnet without ceramic binder ( $200 \mu\Omega\text{cm}$ ). The remarkable enhancement of resistivity was attributable to electrical isolation of the magnetic flakes by the dielectric ceramics binder as shown in Fig. 2(d). The added ceramics binder with low melting point of around  $550^\circ\text{C}$  had become a liquid with good fluidity during hot-pressing at  $670^\circ\text{C}$ , thus well penetrated into the flake boundaries. Fig. 2(b) shows dependence of density of the ceramics-bonded magnet on the amount of added ceramics binder. Calculated density of the ceramics-bonded magnet was the weighted average of both components using their volume fraction. Nearly full dense ceramics-bonded magnet was prepared and its measured density gradually decreased but relative density slightly increased with increasing addition of the ceramics binder. Fig. 2(c) shows dependence of magnetic performance of the ceramics-bonded magnet on the amount of added ceramics binder. Remanence of the ceramics-bonded magnet gradually decreased with increasing the ceramics binder, and so did energy product accordingly. This was attributable, not to dilution of magnetic performance due to addition of the non-magnetic binder. Unexpectedly, coercivity of the ceramics-bonded magnet measurably decreased with addition of the

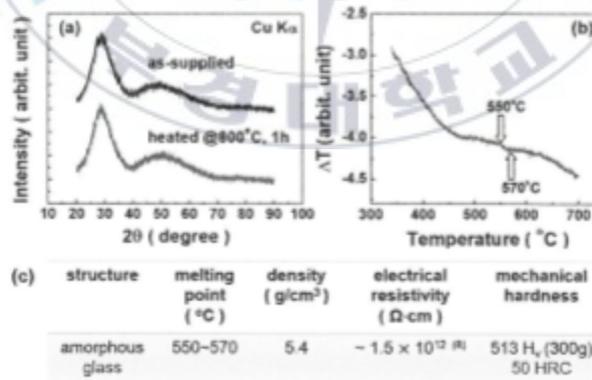


FIG. 1. XRD ( $\text{Cu K}\alpha$ ) patterns (a), DTA ( $3^\circ\text{C}/\text{min}$ , in Ar) result (b), and physical properties (c) of the  $\text{Bi}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2\text{-B}_2\text{O}_3\text{-ZnO}$  ceramics binder.

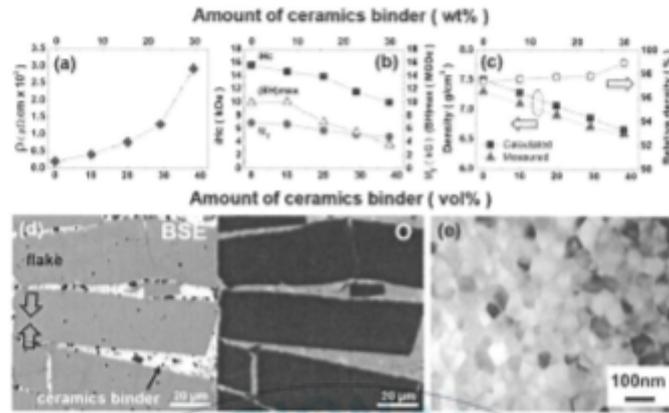


FIG. 2. Dependence of electrical resistivity (a), magnetic performance (b), and density (c) of the ceramics-bonded magnet on the amount of added ceramics binder. SEM (d) and TEM (e) photos of the ceramics-bonded magnet containing 30 vol% oxide binder. Arrow in (d) indicates pressing direction.

ceramics binder. Possible factors that may contribute to the coercivity decrease by addition of the ceramics binder include (1) increased effective demagnetizing factor ( $N_{\text{eff}}$ ) and (2) thin oxidized layer on the flake surface by reaction between flake and oxide binder.

Effective demagnetizing factor of a permanent magnet is consisting largely of three contributions:  $N_{\text{eff}} = N_{\text{macro}} + N_{\text{flake}} + N_{\text{structure}}$ .  $N_{\text{macro}}$  denotes macroscopic demagnetizing factor, which is determined by apparent shape of the magnet.  $N_{\text{flake}}$  denotes demagnetizing factor of isolated grain in the magnet, and  $N_{\text{structure}}$  is due to stray field at non-ferromagnetic multiple junction. For the particular magnet samples prepared in the present work the  $N_{\text{macro}}$  may be identical regardless of ceramics binder addition because of their identical shape. Regarding the  $N_{\text{flake}}$ , grains in the flake were very fine (Fig. 2(e)) and they were rationally believed not to be isolated but magnetically coupled by all means. The  $N_{\text{flake}}$ , therefore, may contribute little to none to the effective demagnetizing factor in the present samples.  $N_{\text{structure}}$  may rather contribute in this particular case instead. As shown in Fig. 2(d) the flakes were almost perfectly isolated by the added ceramics binder, so the flake was believed to have significant demagnetizing factor due to its plate-like shape. To add to the plate-like shape, flakes in the pressed magnet were aligned due simply to its plate-like geometry in such a way that thickness direction of the plate-like flakes were oriented parallel to the pressing direction. As the magnetic properties were measured along the pressing direction the  $N_{\text{flake}}$  may more considerably contribute. Finally, the  $N_{\text{structure}}$  due to stray field at oxide junction may more greatly contribute in this ceramics-bonded magnet because the oxide junctions were larger and more frequently appeared in the ceramics-bonded magnet. More accurate expression of effective demagnetizing factor for the ceramics-bonded magnet is, therefore, to be written as  $N_{\text{eff}} = N_{\text{macro}} + N_{\text{flake}} + N_{\text{structure}}$ . The  $N_{\text{structure}}$  may increase with increasing the addition of ceramics binder in the ceramics-bonded magnet, hence reducing coercivity. Another major contributory factor for the reduced coercivity in the ceramics-bonded magnet may be the presence of thin oxidized layer on the flake surface formed by reaction between the flake and oxide binder. As hot-pressing was accomplished at high temperature of 670 °C at which the added oxide binder became liquid, oxidation of the flake surface was inevitable and fast. As a result, thin oxidized layer with a few micrometer thickness formed near surface of the flake as can be seen in Fig. 3. The reaction between  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  phase and oxygen is known to cause decomposition of the  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  phase into mixture of  $\text{NdO}_x + \text{Fe} + (\text{Fe-B})$ .<sup>9</sup> The Fe and (Fe-B) phases in the decomposed mixture are magnetically soft. The oxidized layer on the flake surface may, therefore, have radically reduced magnetocrystalline anisotropy, so demagnetization under reverse field

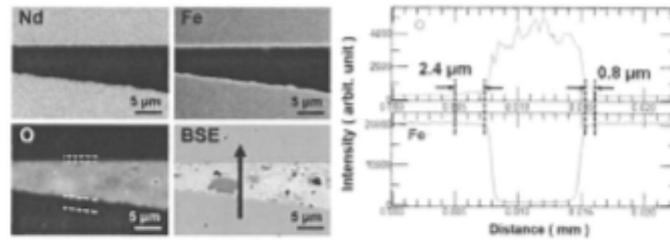


FIG. 3. EPMA x-ray mapping and distribution of elements in the interface between magnetic flake and oxide binder in the ceramics-bonded magnet with 30 vol% oxide binder.

may be more easily initiated, hence reducing coercivity.<sup>10-14</sup> Ceramics-bonded magnet with meaningful electrical resistivity and magnetic performance was prepared when containing 30 vol% oxide binder:  $\rho = 1303 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ ,  $iH_c = 11.6 \text{ kOe}$ ,  $M_r = 5.2 \text{ kG}$ , and  $(BH)_{\text{max}} = 5.5 \text{ MGOe}$  at room temperature. Fig. 4(a-d) shows temperature dependence of magnetic performance of the ceramics-bonded magnet with and without 30 vol% oxide binder. The highly resistive ceramics-bonded magnet containing 30 vol% ceramics binder still had pretty good magnetic performance at 175 °C:  $iH_c = 5 \text{ kOe}$ ,  $M_r = 4.8 \text{ kG}$ , and  $(BH)_{\text{max}} = 4.3 \text{ MGOe}$ . Temperature coefficient of remanence ( $\alpha$ ) and coercivity ( $\beta$ ) of the ceramics-bonded magnets with and without 30 vol% ceramics binder in the range from room temperature to 175 °C were similar.

Also included in Fig. 4 was comparison of fracture strength of the ceramics-bonded magnets with and without 30 vol% oxide binder. Room temperature fracture strength of the bonded magnet with and without 30 vol% oxide binder was similar. Worth remarking was that while fracture strength of the magnet without oxide binder was considerably reduced at 175 °C the ceramics-bonded magnet with 30 vol% oxide binder still had as high mechanical strength at 175 °C as that at room temperature. Present study revealed that fabrication of ceramics-bonded magnet with remarkably high electrical resistivity was feasible. However, coercivity was considerably degraded by addition of the oxide

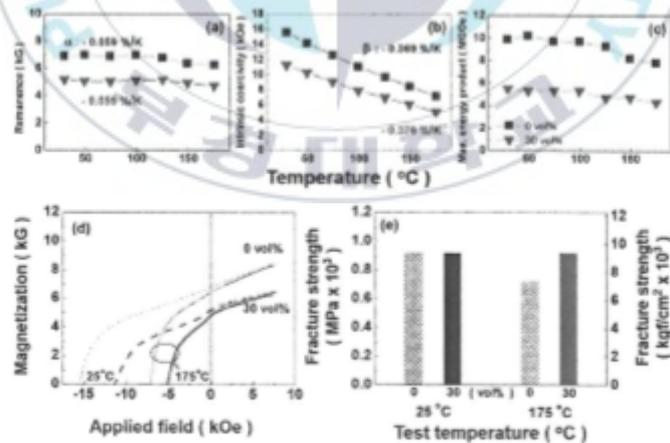


FIG. 4. Temperature dependence of magnetic performance (a-d) and mechanical strength (e) of the ceramics-bonded magnet with and without 30 vol% oxide binder.

binder, and it was attributed partly to surface oxidation of the magnetic flake caused by reaction with oxide binder. Therefore, in order to develop a good ceramic-bonded magnet with high electrical resistivity and high magnetic performance, it is required to find new chemically inert dielectric binders with further low melting point. Equally important, anisotropic ceramics-bonded magnet with high electrical resistivity is desirable using anisotropic hard magnetic powder such as anisotropic HDDR powder or MQA powder.

#### IV. CONCLUSION

Fabrication of ceramics-bonded magnet with remarkably high electrical resistivity was feasible using low melting point oxide binder. Coercivity of the ceramics-bonded magnet decreased with increasing the addition of ceramics binder, and this was attributed to the increased demagnetizing factor. Thin oxidized layer on the flake surface formed by reaction between the flake and oxide binder also contributed to reducing coercivity in the ceramics-bonded magnet. Ceramics-bonded magnet with high resistivity still had good magnetic performance and high mechanical strength at 175 °C.

#### ACKNOWLEDGMENTS

The authors gratefully acknowledge that the present work was supported by the Industrial Strategic Technology Development Program (No. 10080382) funded by the Ministry of Trade, Industry & Energy, Republic of Korea.

- <sup>1</sup> K. Hirota, H. Nakamura, T. Minowa, and M. Hoshima, *IEEE Trans. Magn.* **42**, 2909 (2006).
- <sup>2</sup> H. Sefehri-Amin, T. Ohkubo, and K. Hono, *J. Appl. Phys.* **107**, 09A745 (2010).
- <sup>3</sup> J. R. Hendershot, Jr. and T. J. E. Miller, *Design of Brushless Permanent Magnet Motors*, Oxford, U.K., Magna Physics (1994).
- <sup>4</sup> M. Kimura, Y. Sato, Y. Enomoto, and H. Koharagi, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 102503 (2007).
- <sup>5</sup> M. Marinescu, A. M. Gabay, J. F. Liu, and G. C. Hadjipanayis, *J. Appl. Phys.* **105**, 07A711 (2009).
- <sup>6</sup> L. Zheng, D. Zheng, H. Xin, W. Li, M. Zhu, H. Feng, and W. Sun, *IEEE Trans. Magn.* **50**, 2103404-1 (2014).
- <sup>7</sup> K. M. Kim, J. Y. Kim, H. W. Kwon, D. H. Kim, J. G. Lee, and J. H. Yu, *AIP Adv.* **7**, 056232 (2017).
- <sup>8</sup> S. P. Yawale and S. V. Pakade, *J. Mater. Sci.* **28**, 5451 (1993).
- <sup>9</sup> I. Skulj, H.-E. Evans, and I. R. Harris, *J. Mater. Sci.* **43**, 1324 (2008).
- <sup>10</sup> D. S. Edgley, J. M. Le Breton, D. Larmarchand, I. R. Harris, and J. Toillet, *J. Magn. Magn. Mater.* **128**, L1 (1995).
- <sup>11</sup> Y. Li, H. E. Evans, I. R. Harris, and E. P. Jones, *Oxid. Met.* **59**, 167 (2003).
- <sup>12</sup> H. W. Kwon and J. H. Yu, *J. Korean Magn. Soc.* **22**, 85 (2012).
- <sup>13</sup> K. M. Kim, H. W. Kwon, J. G. Lee, and J. H. Yu, *J. Magn.* **20**, 21 (2015).
- <sup>14</sup> J. Y. Kim, H. W. Kwon, J. G. Lee, and J. H. Yu, *IEEE Trans. Magn.* **52**, 7100904 (2016).