

Research Trends in Fabrication and Microstructural Control of Rare-Earth-Lean ThMn₁₂-Type Sm-Fe-Based Bulk Permanent Magnets

Jihoon Park*

Nano Materials Research Division, New-Functionality Powder Materials Research Center,
Korea Institute of Materials Science, Changwon 51508, Republic of Korea

(Received 8 May 2026, Received in final form 4 June 2026, Accepted 5 June 2026)

In response to global carbon neutrality policies and the escalating demand for high-performance permanent magnets in the e-mobility sector, ThMn₁₂-type Sm-Fe-based compounds have emerged as a prominent candidate for next-generation rare-earth-lean magnets. While these materials exhibit intrinsic magnetic properties comparable to those of Nd₂Fe₁₄B, including a high Curie temperature ($T_C \approx 580^\circ\text{C}$), challenges such as structural instability during bulk processing, the realization of sufficient coercivity, and high-density anisotropic bulkification have hindered their practical application. This review systematically explores the development of high-density ThMn₁₂ bulk magnets fabricated via high-pressure pressing (HPP) of amorphous precursors. A “stepwise crystallization” mechanism—transforming from an amorphous state to the 1:12 phase through a TbCu₇-type metastable phase—is discussed as a key strategy to achieve phase purities exceeding 97 wt.% and a maximum energy product ($(BH)_{\max}$) of 12 MGOe in the bulk magnet. The structural stabilization effect of Ti-V pair substitution on the c/a lattice ratio and its influence on magnetocrystalline anisotropy are analyzed. Furthermore, this work highlights “grain boundary engineering” as a pivotal strategy for enhancing coercivity. By optimizing the Sm content and utilizing post-aging treatments, a nanoscale, non-ferromagnetic Sm-rich grain boundary phase is successfully formed, facilitating magnetic decoupling between the main phase grains and achieving a coercivity of 10.8 kOe (0.859 MA/m). Finally, the fabrication of anisotropic bulk magnets is detailed, where powders produced by ball milling are aligned under an external magnetic field. This process led to a significant improvement in magnetic alignment (83.7%), resulting in a $(BH)_{\max}$ of 7.85 MGOe, a 3.7-fold increase compared to isotropic counterparts. These integrated research efforts demonstrate the great potential of ThMn₁₂-type bulk magnets as high-performance, rare-earth-lean permanent magnets, providing a technical milestone for the localization of magnetic materials and resource security.

Keywords : ThMn₁₂, Sm-Fe permanent magnets, rare-earth-lean, grain boundary engineering, magnetic anisotropy, bulk magnets

차세대 희토류 저감형 ThMn₁₂ 구조 Sm-Fe계 벌크 영구자석의 제조 및 미세조직 제어 연구 동향

박지훈*

한국재료연구원 나노재료연구본부 신기능분말재료연구센터, 경상남도 창원시 성산구 창원대로 797, 51508

(2026년 5월 8일 받음, 2026년 6월 4일 최종수정본 받음, 2026년 6월 5일 게재확정)

본 고에서는 탄소 중립 정책의 확산과 전기 모빌리티 시장의 성장에 따른 고성능 영구자석 수요에 대응하기 위해, 차세대 희토류 저감형(Rare-earth lean) 소재인 ThMn₁₂형 Sm-Fe계 벌크 영구자석의 최신 핵심 연구를 중심으로 고찰하였다. SmFe₁₂계 화합물은 우수한 포화자화와 높은 결정자기이방성, 그리고 상용 Nd-Fe-B계보다 월등히 높은 큐리온도($T_C \approx 580^\circ\text{C}$)를 보유하여 고온용 모터 소재로 주목받고 있으나, 열역학적 불안정성으로 인한 상 순도 유지 및 보자력 구현, 그리고 고밀도 이방성 벌크화가 상용화의 핵심 과제로 남아있다. 본 분석에서는 먼저 급냉 응고 분말의 초고압 성형(HPP) 공정을 통해 비정질 전구체로부터 1:7 상을 거쳐 1:12 준안정상으로 이행되는 ‘단계적 결정화(Stepwise crystallization)’ 기전을 검토하였다. 이를 통해 97% 이상의 높은 상 순도와 12 MGOe의 최대자기에너지적($(BH)_{\max}$)을 확보하는 상변태 제어 기술을 기술하였다. 또한, Ti-V 쌍(Pair) 치환을 통한 격자 상수비(c/a) 제어가 일축 이방성을 강화하고 구조적 안정성을 높이는 메커니즘을 분석하였다. 특히 보자력 향상을 위한

핵심 전략으로 ‘결정립계 엔지니어링(Grain Boundary Engineering)’에 주목하여, Sm 함량 최적화 및 후속 에이징(Aging) 처리를 통해 나노미터 수준의 비자성 Sm-rich 입계상을 형성함으로써 결정립 간 자기적 디커플링을 유도하여 10.8 kOe(0.859 MA/m)의 고보자력을 구현한 성과를 정리하였다. 아울러 볼 밀링을 통한 분말 미세화와 자장 중 성형 기술을 결합하여 결정 배향도를 83.7%까지 향상시키고, 최종적으로 $(BH)_{\max}$ 를 등방성 대비 약 3.7배인 7.85 MGOe까지 극대화한 이방성 벌크 자석 제조 공정을 체계적으로 정리하였다. 이러한 통합적인 분석 결과는 ThMn₁₂형 벌크 자석이 중희토류를 배제한 고성능 영구자석으로서 실용화를 위한 가능성을 지니고 있음을 시사하며, 향후 고부가가치 자기 소재의 기술적 자립과 자원 안보 확보를 위한 중요한 이정표가 될 것으로 기대된다.

주제어 : ThMn₁₂, Sm-Fe계 영구자석, 희토류 저감, 결정립계 엔지니어링, 자기적 이방성, 벌크 자석

I. 서 론

전 세계적인 탄소 중립 정책의 확산과 전기 모빌리티(e-Mobility) 시장의 급격한 성장은 고성능 영구자석 소재에 대한 전례 없는 수요를 창출하고 있다. 현재 상용 영구자석 시장의 주류를 형성하고 있는 Nd₂Fe₁₄B계 자석은 우수한 자기적 특성을 보유하고 있으나, 고온 작동 환경에서의 보자력 유지를 위해 Dy, Tb와 같은 중희토류 원소가 널리 활용되어 왔다. 그러나 희토류 자원의 편중된 지경학적 리스크와 가격 변동성은 자원 안보 측면에서 심각한 위협이 되고 있으며, 이에 따라 전 세계적으로 중희토류를 배제하거나 희토류 함량 자체를 획기적으로 낮춘 ‘희토류 저감형(Rare-earth lean)’ 차세대 자석 개발이 초미의 관심사로 떠오르고 있다.

이러한 배경 속에서 ThMn₁₂형 결정구조(이하 1:12 상)를 갖는 Sm-Fe계 화합물은 Nd-Fe-B계를 일부 대체할 수 있는 후보 소재로 주목받고 있다. 이론적으로 SmFe₁₂ 상은 Nd₂Fe₁₄B 상에 비해 높은 포화자화($M_s \approx 1.64$ T), 결정자기 이방성($H_a \approx 12$ T), 그리고 월등히 높은 큐리온도($T_c \approx 580$ °C)를 보유하여, 고온용 영구자석 후보로 주목을 받고 있다. 하지만 이러한 우수한 고유 자기 특성에도 불구하고, 1:12 상은 열역학적으로 준안정하여 벌크(Bulk) 형태의 자석으로 제조할 경우 상 순도를 유지하기 어렵고, 실제 구현되는 보자력이 이론적 한계치에 크게 못 미친다는 고질적인 문제가 존재해 왔다.

최근 국내외 연구진은 이러한 한계를 극복하기 위해 결정 구조 안정화 원소의 도입과 미세조직 제어를 통한 보자력 향상 연구에 박차를 가하고 있다. 특히 한국재료연구원을 중심으로 진행된 일련의 연구들은 1:12계 벌크 자석의 제조 공정 정립부터 이방성 구현까지 괄목할 만한 성과를 거두었다.

본 고에서는 최근 5년간 발표된 핵심 연구들을 바탕으로 ThMn₁₂형 Sm-Fe계 벌크 영구자석의 발전 과정을 체계적으로 고찰하고자 한다. 먼저, 급냉 응고 분말의 고압 성형 공정을 통해 비정질 상에서 1:12 상으로의 상변태 기전을 규명한 연구를 시작으로, Ti와 V의 쌍(Pair) 치환이 상 안정성 및 c/a 격자비 조절에 미치는 영향을 분석한다. 이어서 보자력 극대화를

를 위한 핵심 전략인 ‘결정립계 엔지니어링(Grain Boundary Engineering)’에 주목하여, Sm 함량 조절 및 에이징(Aging) 처리가 비자성 입계상 형성과 자기적 결합 차단(Magnetic Decoupling)에 미치는 효과를 논의한다. 마지막으로, 볼 밀링 공정과 자장 중 성형 기술을 결합하여 등방성 자석의 한계를 넘어선 이방성 벌크 자석의 제조 가능성을 고찰한다. 이러한 통합적인 분석은 향후 ThMn₁₂계 영구자석의 상용화와 고부가가치 자석 시장의 기술적 자립을 위한 중요한 이정표가 될 것이다.

II. 문헌 분석 범위 및 제조 공정 개요

본 고에서는 최근 보고된 ThMn₁₂형 Sm-Fe계 벌크 영구자석 관련 핵심 연구들을 중심으로, 합금 설계, 분말 제조, 벌크화, 열처리 및 미세조직 분석 방법을 공정 단계별로 정리하였다[1-5].

1. 합금 설계 및 분말 제조

실험에 사용된 원료는 고순도의 Sm, Fe, Co 및 상 안정화 원소인 Ti, V 등이다. 1:12 상의 열역학적 불안정성을 극복하기 위해 아크 용해(Arc melting) 또는 유도 용해(Induction melting)를 통해 모합금을 제조한 후, 급냉 응고법(Melt-spinning)을 적용하여 비정질(Amorphous) 또는 미세 결정질 리본(Ribbon)을 제조하였다. 이때 휠 속도(Wheel speed)는 상 구성 및 미세조직 제어를 위한 핵심 변수로 작용하며, 특히 후속 공정에서의 상변태 거동을 최적화하기 위해 완전 비정질 구조 확보가 강조된다.

2. 분말 처리 및 미세화

제조된 ThMn₁₂ 잉곳 또는 비정질/미세 결정질 리본은 벌크화를 위해 적절한 크기의 분말로 분쇄된다. 입도 분포와 산화 제어를 위해 주로 두 가지 방식이 병행되었다. 제트 밀링(Jet milling) 공정은 고압의 질소 가스를 이용하여 입자 간 충돌을 유도함으로써 수 마이크로미터(μm) 수준의 균일한 분말을 얻는다. 볼 밀링(Ball milling) 공정은 습식 공정을 통해

미세화와 산화 방지를 도모한다.

3. 벌크화 공정

본 연구들의 핵심적인 제조 기법은 초고압 성형 공정이다. 일반적인 소결법과 달리, 분말을 금형에 장입한 후 수 MPa~GPa 수준의 압력을 가하여 상온에서 고밀도 성형체(Green body)를 제조한다. 이 공정은 열처리에 앞서 입자 간의 접촉 면적을 극대화하고 기공률을 최소화함으로써, 최종 벌크 자석의 상대 밀도를 95% 이상으로 확보하는 데 결정적인 역할을 한다. 이방성 자석의 경우, 성형 과정에서 외부 자장(1.0 T)을 인가하여 용이축 방향으로의 결정을 정렬시킨다. 초고압 성형 공정은 초기 연구 단계에서 고밀도 및 고보자력 확보에 효과적이거나, 향후 산업적 확산성을 고려할 때 일반 소결 공정으로의 전환을 위한 공정 최적화 연구가 병행되어야 한다.

4. 열처리 및 결정립계 엔지니어링

성형된 벌크체는 진공 또는 불활성 가스 분위기에서 단계별 열처리를 거친다. 상변태 열처리(Annealing)는 700~900 °C 부근에서 비정질 상을 ThMn₁₂ 주상으로 상변태시키며, 이때 승온 속도와 유지 시간 조절을 통해 결정립 성장을 억제하고 미세한 등축정 조직을 유도한다. 에이징 처리(Aging)는 720~900 °C의 상대적 저온에서 추가 열처리를 수행하여, 주상 경계에 Sm-rich 비자성 입계상을 형성시킨다. 이는 결정립 간의 자기적 교환 결합을 차단하여 보자력을 극대화하는 ‘결정립계 개질(Grain boundary modification)’의 핵심 단계이다.

5. 미세조직 및 자기적 특성 분석

제조된 벌크 자석의 결정 구조는 X-선 회절 분석(XRD)을 통해 확인하였으며, Rietveld 정밀화를 통해 각 상의 분율과 격자 상수를 산출하였다. 미세조직 관찰을 위해 주사 전자 현미경(SEM)과 투과 전자 현미경(TEM)을 활용하였고, 특히 에너지 분산형 X-선 분석(EDS)을 통해 입계상의 화학적 조성을 정밀 분석하였다. 자기적 특성(보자력, 잔류자화, 최대 에너지적)은 진동 시료 자력계(VSM) 또는 초전도 양자 간섭 장치(SQUID)를 이용하여 실온 및 고온 영역에서 측정하였다.

III. 결과 및 고찰

1. ThMn₁₂ 상의 형성 기전 및 안정화 기술

ThMn₁₂형 Sm-Fe계 화합물(이하 1:12 상)은 이론적으로 매우 우수한 고유 자기 특성을 보유하고 있으나, 벌크 형태에서 열역학적인 불안정성으로 인해 α-Fe 상이 쉽게 석출되는 고질적인 문제를 안고 있다. 본 절에서는 비정질 전구체로부터 1:12 상이 형성되는 결정화 기전과, 이를 안정화하기 위한 원소 치환 전략을 상세히 고찰한다.

1.1. 비정질 전구체로부터의 상 변태 기전

ThMn₁₂형 영구자석 제조에 있어 가장 큰 기술적 난제는 주상(Main phase)인 1:12 상의 낮은 열역학적 안정성으로 인해 조대한 α-Fe 상이 쉽게 석출된다는 점이다. 이를 억제하고 높은 상 순도를 확보하기 위해서는 급냉 응고법(Melt-

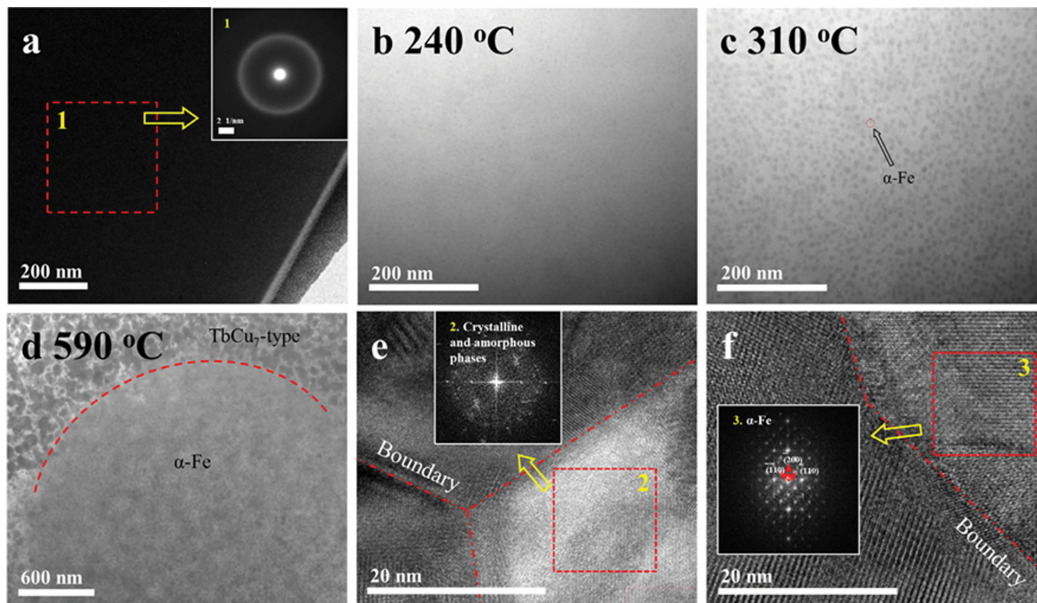


Fig. 1. (Color online) (a) TEM and SAED images of Sm(Fe_{0.8}Co_{0.2})₁₁Ti melt-spun ribbon. (b, c, and d) The TEM images of the specimen of the bulk sample heated in-situ at different temperatures of 240, 310, and 590 °C. (e and f) STEM and FFT images of the bulk samples annealed for 10 and 20 min [1].

spinning)을 통해 원자 배열이 무질서한 비정질 전구체를 우선적으로 형성시킨 후, 정밀한 열처리를 통해 결정화를 유도하는 전략을 사용할 수 있다[1]. 본 참고문헌에서는 실시간 투과전자현미경(In-situ TEM) 관찰을 통해 비정질 상태에서 ThMn_{12} 상으로의 변태 과정을 직접 관찰하였다. Fig. 1(In-situ TEM images and corresponding SAED patterns)은 온도 상승에 따른 미세조직의 진화 과정을 명확히 보여준다.

초기 비정질 상태의 리본 분말은 결정 구조가 없는 완전한 비정질 상태를 유지하며, 제한시야회절(SAED) 패턴 상에서 전형적인 할로 링(Halo ring)이 관찰된다. 이는 후속 열처리 시 균일한 결정 핵 생성을 가능하게 하는 고에너지 상태임을 시사한다. 온도가 상승함에 따라 준안정상 형성 단계(310~590 °C)에서 비정질 매트릭스 내에서 결정화가 시작된다. 이 단계에서는 최종 목표상인 1:12 상이 직접 형성되는 것이 아니라, 먼저 TbCu_7 형 1:7 준안정상과 극미세 $\alpha\text{-Fe}$ 결정립들이 석출된다. 이는 1:7 상이 1:12 상에 비해 결정 구조적으로 형성이 용이하기 때문이며, SAED 패턴에서 1:7 상에 해당하는 회절 점들이 나타나기 시작하는 지점이다. 온도가 더욱 상승하여 임계점에 도달하면, 1:7 상 내부로 Sm 원자의 재배열 및 Ti 원자의 격자 사이트 점유가 촉진되면서 최종적으로 ThMn_{12} 구조로의 상변태가 완성된다. Fig. 1(e)와 (f)를 보면, 약 50~100 nm 크기의 등축정(Equiaxed) 결정립들이 조밀하게 형성된 것을 확인할 수 있으며, 이때 SAED 패턴은 순수한 1:12 상의 결정 구조를 선명하게 나타낸다.

이러한 상 변태 기전의 규명은 매우 중요한 공정적 시사점을 제공한다. 특히 [참고문헌 1]에 적용된 고압 성형(High Pressure Pressing, HPP) 기술은 고온 열처리 과정에서 발생

하는 원자들의 휘발을 물리적으로 억제하여 1:12 상의 성장을 최적화하고 $\alpha\text{-Fe}$ 의 조대화를 효과적으로 방지하였다. 그 결과, 벌크화 이후에도 97% 이상의 높은 상 순도를 유지함과 동시에 12 MGOe의 $(BH)_{\max}$ 을 달성하였다. 결과적으로 비정질 전구체로부터 1:7 상을 거쳐 1:12 준안정상으로 이행되는 일련의 ‘단계적 결정화(Stepwise crystallization)’ 공정은 고순도 SmFe_{12} 계 자석 제조의 핵심 메커니즘이며, 이는 미세한 결정립 조직을 유지하면서 고성능 자기적 특성을 구현하는 토대가 된다.

1.2. Ti-V 쌍(Pair) 치환에 의한 구조적 안정화

SmFe_{12} 화합물의 실용화를 가로막는 가장 큰 장벽은 1:12 상의 열역학적 불안정성이다. 이를 해결하기 위해 Ti, V, Mo와 같은 제3의 원소를 치환하여 결정 구조를 안정화하는 연구가 필수적으로 진행되어 왔다. 특히, 단일 원소 치환보다 두 가지 이상의 원소를 동시에 사용하는 ‘쌍 치환(Pair substitution)’ 전략은 고유 자기 특성 저하를 최소화하면서 상 순도를 극대화할 수 있는 효과적인 방안으로 주목받고 있다 [2]. [참고문헌 2]에서는 $\text{Sm}(\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2})_{12-2x}\text{Ti}_x\text{V}_x$ ($x = 0.6, 0.8, 1.0$) 시스템을 통해 Ti와 V의 복합 치환이 상 안정성에 미치는 영향을 체계적으로 규명하였다.

Fig. 2를 보면, 치환량 x 가 증가함에 따라 상 구성이 급격히 변화하는 것을 확인할 수 있다. $x = 0.6$ 조성에서는 강자성 불순물인 $\alpha\text{-Fe}$ 상의 회절 피크가 뚜렷하게 관찰되는데, 이는 극소량의 안정화 원소만으로는 1:12 상을 완전히 고정하기에 부족함을 의미한다. 반면, x 가 0.8 이상으로 증가하면 $\alpha\text{-Fe}$ 피크가 거의 소멸하며, $x = 1.0$ 에서는 95 wt.% 이상의 1:12 상

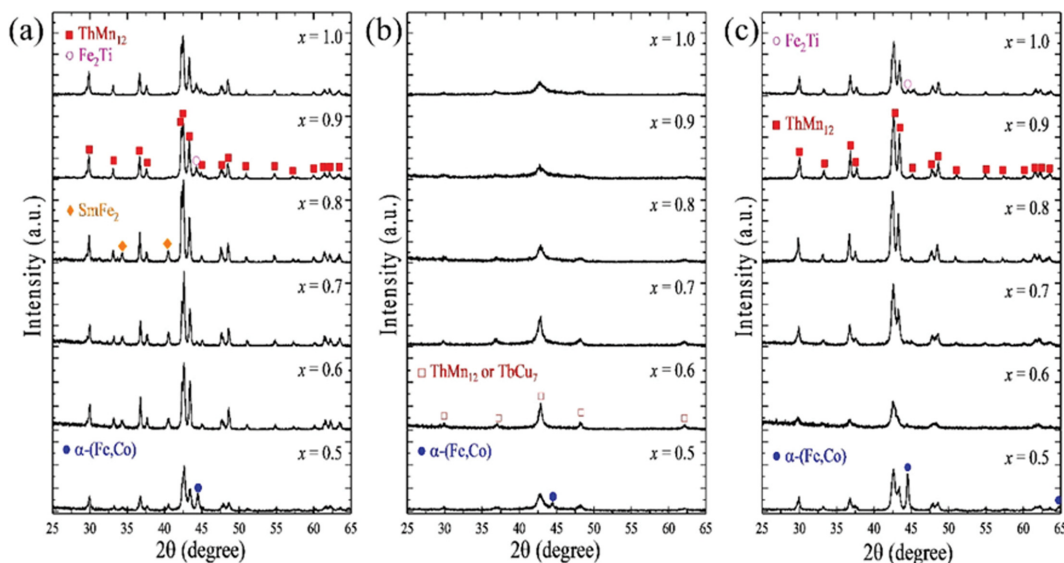


Fig. 2. (Color online) XRD patterns of the ground $\text{Sm}(\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2})_{12-2x}\text{Ti}_x\text{V}_x$ ($0.5 \leq x \leq 1.0$) (a) arc-melted ingots, (b) melt-spun ribbons, and (c) bulks annealed at 800 °C for 15 min [2].

Table I. Lattice parameters of the ThMn_{12} -type phase and weight fractions of crystallized phases for the $\text{Sm}(\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2})_{12-2x}\text{Ti}_x\text{V}_x$ ($0.6 \leq x \leq 1.0$) bulks annealed at 800 °C for 15 min. The confidence interval of a , b , and c is ± 0.005 . The weight fractions of phases have a confidence interval of ± 0.1 wt.% [2].

x	Lattice parameters of ThMn_{12} (Å)			Weight fractions (wt.%)			
	a	c	c/a	ThMn_{12}	TbCu_7	$\alpha\text{-(Fe,Co)}$	Fe_2Ti
0.6	8.509	4.829	0.5675	93.5	1.7	4.8	-
0.7	8.515	4.795	0.5631	96.3	1.8	1.9	-
0.8	8.527	4.785	0.5611	98.8	1.2	-	-
0.9	8.529	4.784	0.5609	98.6	-	-	1.4
1.0	8.530	4.780	0.5604	94.1	1.1	0.7	4.1

순도를 달성한다. 이는 Ti의 강한 상 안정화 능력과 V의 격자 변형 완화 효과가 시너지를 일으켜, 열역학적으로 불안정한 $\text{Sm}(\text{Fe,Co})_{12}$ 격자를 효과적으로 고정했음을 시사한다.

치환 원소의 종류와 양은 1:12 상의 격자 상수 a 와 c 를 직접적으로 변화시키며, 이는 고유 자기 이방성과 직결된다. Table I에 따르면, Ti와 V의 함량이 증가할수록 격자 상수 a 는 증가하는 반면 c 는 감소하는 경향을 보인다. 결과적으로 격자 상수비인 c/a 비가 x 의 증가에 따라 감소하게 되는데, 이러한 격자의 수축 및 변형은 ThMn_{12} 구조의 결정학적 안정성을 높이는 핵심 요인으로 작용한다. 특히 V는 Ti보다 원자 반지름이 작아 격자 팽창에 의한 M_s 감소를 억제하는 동시에, Ti가 제공하는 강력한 1:12 상 형성 에너지를 보조하여 최적의 자기적·구조적 균형점을 제공한다. 또한, Fig. 3에 따르면 치환량이 증가할수록 상 순도는 높아지지만, 비자성 원소인 Ti와 V의 비중이 커지고 $\alpha\text{-Fe}$ 의 양이 줄어들며 따라 M_s 는 감소하는 경향을 보인다.

결론적으로 Ti-V 쌍 치환 전략은 SmFe_{12} 계 벌크 자석 제

조 시 발생하는 상 불안정 문제를 해결하는 가장 실용적인 해법 중 하나이다. Ti를 통해 1:12 상의 골격을 형성하고, V를 통해 격자 변형과 자기적 손실을 제어함으로써, 차세대 희토류 저감형 자석이 갖추어야 할 고순도와 고성능이라는 두 가지 목표를 동시에 달성할 수 있음을 본 연구 결과는 뒷받침하고 있다.

1.3. 격자 상수비(c/a) 제어와 자기 이방성

ThMn_{12} 형 결정구조(Space group $I4/mmm$)는 정방정계(Tetragonal) 구조로, 그 고유 자기 특성, 특히 결정자기이방성(Magnetocrystalline anisotropy)은 격자 상수 a 와 c 의 절대적인 수치뿐만 아니라 이들의 비율인 c/a 비에 매우 민감하게 의존한다. SmFe_{12} 계 화합물에서 Sm 원자가 점유하는 2a 사이트의 결정장(Crystal field)은 주변 Fe 원자들과의 거리에 의해 결정되며, 이는 c/a 비의 변화를 통해 제어될 수 있다.

Table I은 Ti와 V의 쌍 치환이 격자에 미치는 영향을 정밀하게 보여준다. 원자 반지름이 상대적으로 큰 Ti 대신 V의 치환량이 증가함에 따라 격자 상수 a 는 미세하게 증가하는 반면, c 축은 뚜렷하게 수축하는 경향을 보인다. 이로 인해 c/a 비는 $x = 0.6$ 에서 $x = 1.0$ 로 갈수록 감소하게 된다. 이러한 격자의 ‘편평화(Flattening)’ 현상은 ThMn_{12} 구조 내에서 Sm 사이트의 일축 이방성(Uniaxial anisotropy)을 강화하는 방향으로 결정장 파라미터를 변화시켜, 결과적으로 높은 이방성 자장(H_a)을 확보하는 데 기여한다.

Sm 함량 변화에 따른 구조적 상관관계[$\text{Sm}_x\text{Fe}_{10}\text{V}_2$ ($x = 1.4\sim 1.9$)] 또한 관찰하였다. Fig. 4를 보면 다음과 같은 특징이 관찰된다. Sm 함량이 증가함에 따라 격자 상수 a 는 증가하고 c 는 감소하며, 결과적으로 c/a 비가 선형적으로 감소하는 경향을 나타낸다. 이는 과잉 첨가된 Sm 원자가 격자 내에 미치는 응력(Strain) 또는 결정 내 상호작용의 변화를 반영하며, c/a 비가 특정 임계값 이하로 제어될 때 1:12 상의 결정구조적 안정성이 극대화됨을 시사한다. 특히 이러한 구조적 변화는 고온 열처리 과정에서 주상 내부에 발생하는 미세

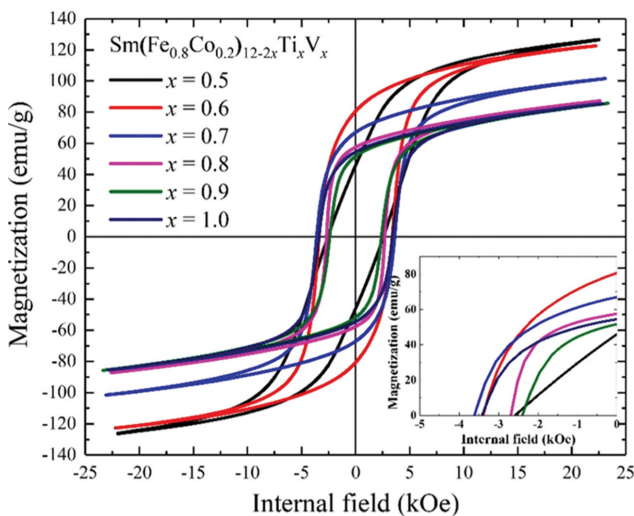


Fig. 3. (Color online) Demagnetization corrected magnetic hysteresis loops of the $\text{Sm}(\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2})_{12-2x}\text{Ti}_x\text{V}_x$ ($0.6 \leq x \leq 1.0$) bulks annealed at 800 °C for 15 min [2].

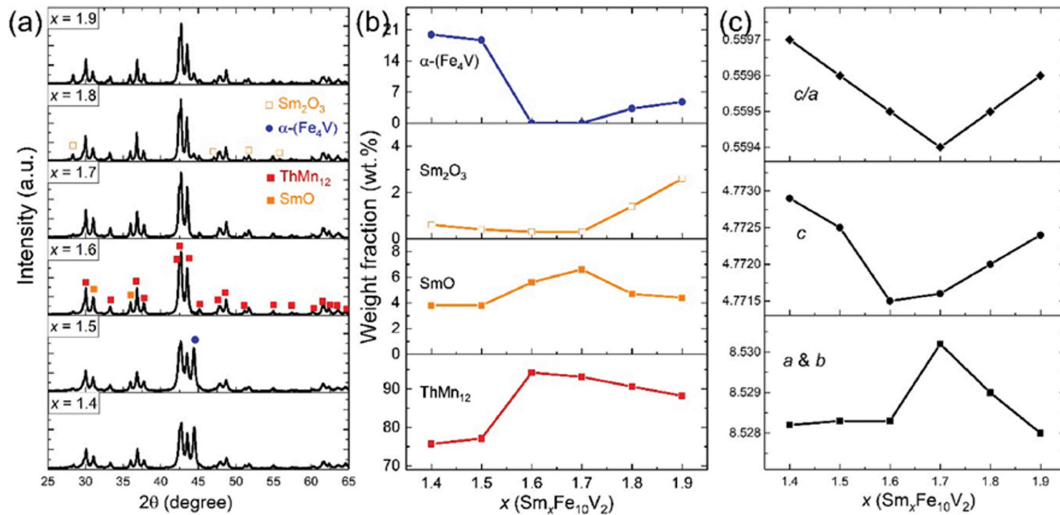


Fig. 4. (Color online) (a) The XRD pattern and (b) weight fraction and (c) lattice constants of the $\text{Sm}_x\text{Fe}_{10}\text{V}_2$ ($x = 1.4\sim 1.9$) bulks heat-treated at 1,140 °C for 30 min [3].

한 격자 왜곡을 완화하여, 역자구의 생성을 억제하는 데 유리한 환경을 조성한다.

위 연구 결과들을 종합하면, ThMn_{12} 계 벌크 자석에서 c/a 비의 정밀한 제어는 단순한 구조 분석 이상의 의미를 갖는다. Ti와 V의 비율 조절[2] 및 Sm 함량의 최적화[3]를 통해 유도된 c/a 비의 감소는 Sm 2a 사이트 주변 결정장의 비대칭성을 변화시켜 일축 자기이방성 및 결정자기이방성 에너지(K_1)에 유리한 영향을 줄 수 있다. 이러한 격자 구조적 변화는 역자구 생성에 대한 에너지 장벽을 높이는 결정학적 기반으로 작용하며, Sm-rich 입계상 형성에 의한 자기적 디커플링 효과와 함께 본 연구군에서 구현된 높은 보자력($H_c > 10$ kOe)을 뒷받침하는 주요 요인 중 하나로 해석된다.

2. 결정립계 개질을 통한 보자력 향상 전략

ThMn_{12} 구조의 Sm-Fe계 자석이 차세대 영구자석으로서 경쟁력을 갖추기 위해서는 이론적 수치에 근접한 고보자력 구현이 필수적이다. 일반적으로 영구자석의 보자력은 결정립 간의 자기적 결합(Magnetic coupling) 정도에 의해 결정되는데, 결정립들이 직접 맞닿아 있을 경우 교환 상호작용(Exchange interaction)에 의해 역자구 생성이 용이해져 보자력이 급격히 저하된다. 본 연구군에서는 Sm 함량 최적화와 후속 에이징(Aging) 처리를 통해 비자성 입계상을 형성시킴으로써 결정립 간 자기적 디커플링(Magnetic decoupling)을 유도하는 전략을 채택하였다.

2.1. Sm 과잉 첨가에 따른 비자성 입계상의 형성 기전

ThMn_{12} 형 영구자석에서 높은 보자력을 구현하기 위한 핵심 전략은 주상 결정립들을 비자성 입계상으로 격리시켜 자

기적 교환 결합을 차단하는 것이다. $\text{SmFe}_{10}\text{V}_2$ 시스템의 경우, 화학 양론적(Stoichiometric) Sm 함량인 약 7.7 at.%를 상회하는 과잉의 Sm을 첨가함으로써 입계상의 형성과 분포를 제어할 수 있다.

[참고문헌 3]에서는 $\text{Sm}_x\text{Fe}_{10}\text{V}_2$ 시스템에서 x 값을 1.4에서 1.9까지 체계적으로 변화시키며 미세조직의 진화 과정을 추적하였다. Fig. 5는 Sm 함량 증가에 따른 입계상의 거동을 명확히 보여주는 결정적 근거를 제시한다. Sm 함량이 상대적으로 낮은 $x = 1.4$ 와 1.5 조성에서는 SEM-BSE 이미지 상에서 밝은 대조를 보이는 Sm-rich 상이 결정립계에 매우 희소하게 분포한다. 이 단계에서는 결정립 간의 직접적인 접촉 면적이 넓어 자기적 디커플링 효과가 미미하며, 그 결과 보자력은 2.5 kOe 수준의 낮은 값에 머무르게 된다. 이는 과잉 첨가된 Sm의 양이 결정립 전체를 파복하기에 불충분함을 의미한다. Sm 함량이 $x = 1.6$ 이상으로 증가하면서 조직적인 급변점이 관찰된다. Fig. 5의 $x = 1.6$ 과 1.7 을 보면, 밝은 대조의 Sm-rich 상이 결정립 삼중점(Triple junction)을 넘어 결정립 경계를 따라 연속적인 네트워크 구조를 형성하기 시작한다. Sm은 1:12 주상 격자 내로의 고용도가 극히 낮기 때문에, 과잉의 Sm 원자들은 결정화 과정에서 결정립 외부로 밀려나 입계에 농축된다. 이 과정에서 형성된 Sm-rich 상은 주상을 물리적으로 격리하는 장벽 역할을 수행한다.

Sm 함량이 $x = 1.9$ 에 이르면 입계상의 두께가 두꺼워지고 더욱 선명한 네트워크가 관찰된다. Fig. 4(a)와 연계하여 분석하면, 이 구간에서는 입계상의 형성뿐만 아니라 과잉 Sm과 잔류 산소의 결합으로 인한 Sm-oxide의 분율도 함께 증가함을 알 수 있다. 결과적으로 $x = 1.6$ 이상의 조성에서 보자력이 10 kOe 이상으로 급격히 상승하는 현상은, 비자성 입계상

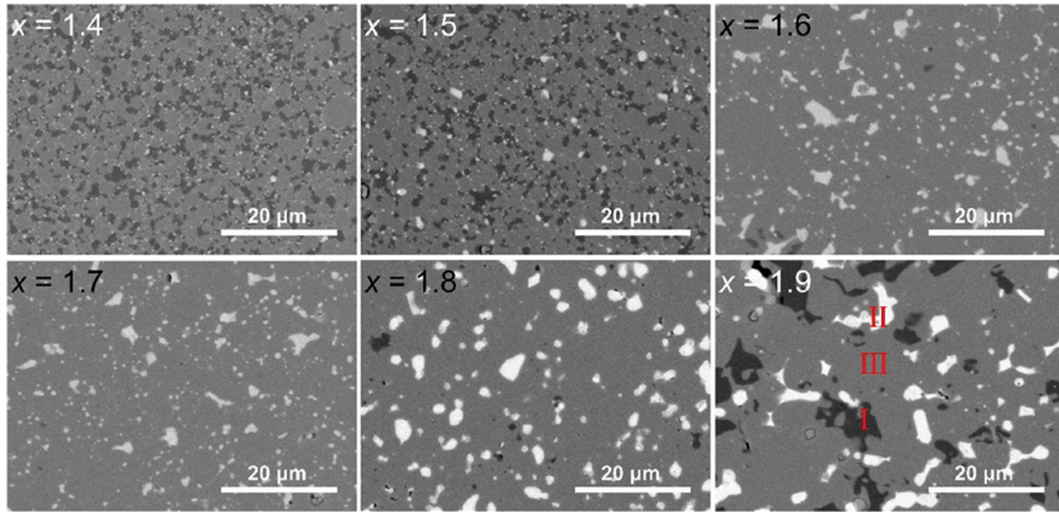


Fig. 5. (Color online) The SEM-BSE images of the $\text{Sm}_x\text{Fe}_{10}\text{V}_2$ ($x = 1.4\sim 1.9$) bulks, which were heat-treated at $1,140^\circ\text{C}$ for 30 min [3].

이 결정립들을 개별적인 자기 도메인으로 기능하게끔 디커플링시켰음을 보여준다. 이러한 결과는 Sm-rich 비자성 입계상이 결정립 간 교환결합을 약화시키고, 역자구 전파를 억제하는데 기여했을 가능성을 시사한다. 특히 Fig. 5는 단순한 이미지 분석을 넘어, 열역학적으로 불안정한 1:12 상의 벌크화 과정에서 Sm 함량의 정밀 제어가 고보자력 구현의 전제 조건임을 시사한다.

2.2. 입계상의 나노구조 및 화학적 조성 분석

ThMn₁₂계 벌크 자석에서 실측되는 고보자력의 근원을 규

명하기 위해서는 결정립계에 형성된 극미세 상의 구조와 화학적 성분을 나노미터(nm) 수준에서 분석하는 것이 필수적이다. 본 연구군에서는 고해상도 투과전자현미경(HRTEM)과 에너지 분산형 X선 분석(EDS)을 통해 입계상의 물리적 상태를 정밀하게 고찰하였다. Fig. 6(a)는 1:12 주상 결정립 사이에 존재하는 경계층의 실체를 명확히 보여준다. 두 결정립의 격자 무늬(Lattice fringe)가 끝나는 지점에서 약 1.8 nm 두께의 무질서한(Disordered) 구조를 갖는 비정질상의 얇은 층이 관찰된다. 이는 열처리 과정에서 주상으로부터 배출된 과잉의 Sm 원자들이 결정학적으로 안정된 격자를 형성하지 못

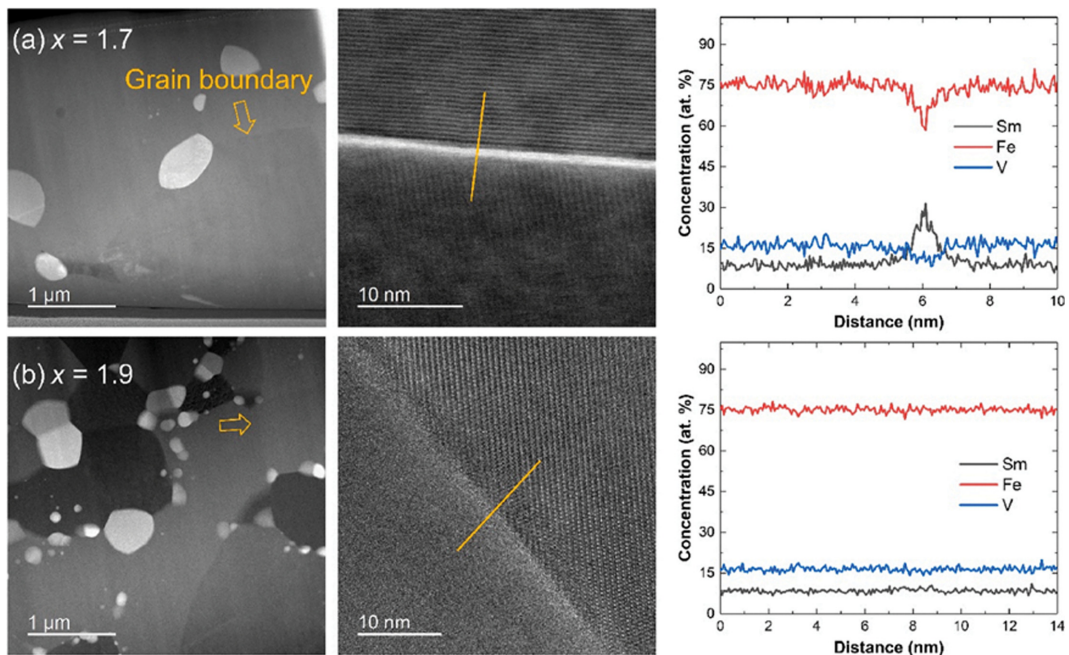


Fig. 6. (Color online) The TEM images and line scans of $\text{Sm}_x\text{Fe}_{10}\text{V}_2$ ($x = 1.7$ (a), 1.9 (b)) bulks, which were heat-treated at $1,140^\circ\text{C}$ for 30 min [3].

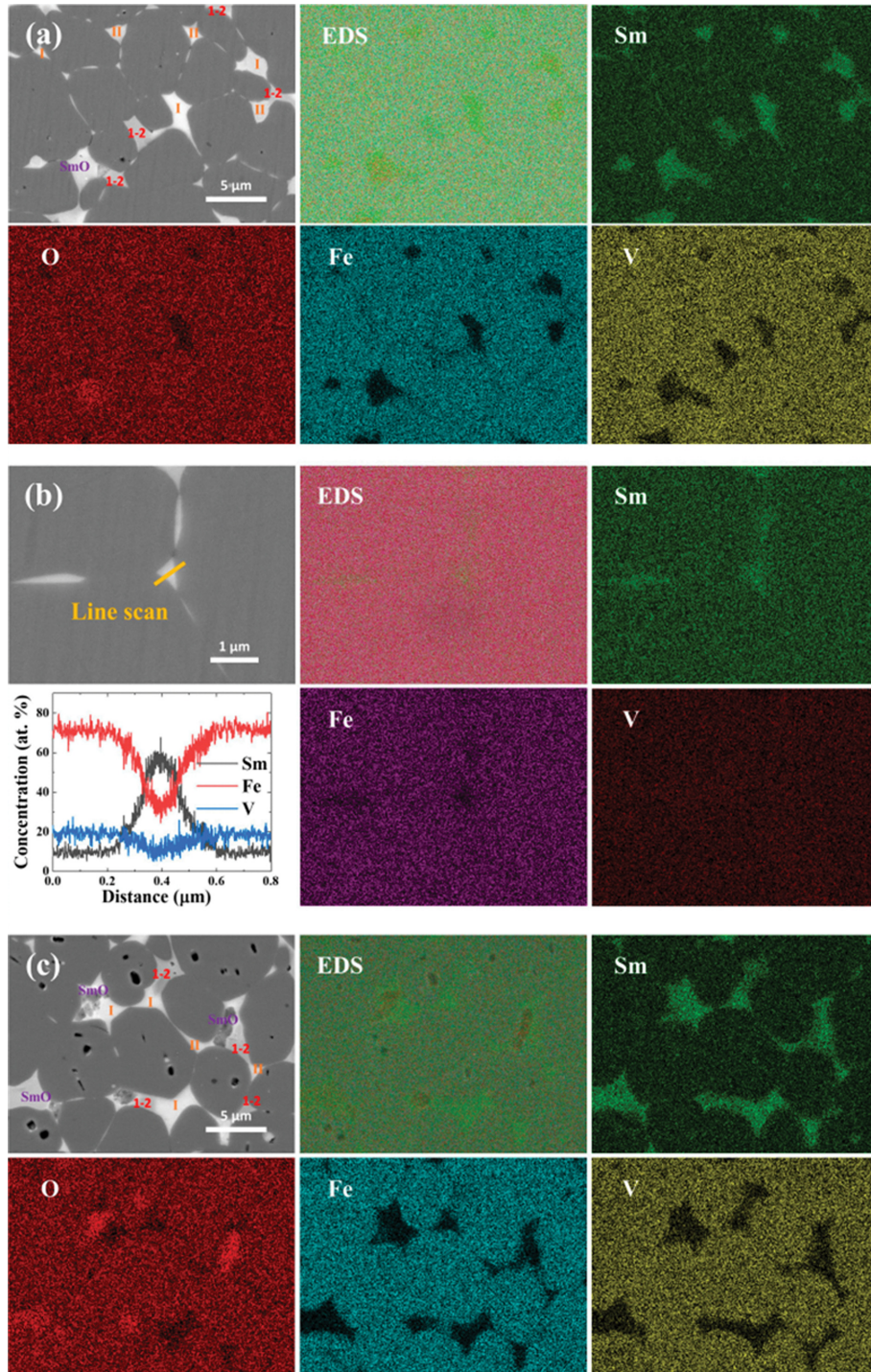


Fig. 7. (Color online) FE-SEM images, related mapping, and line scan of the bulks aging-treated at 800 (a, b) and 900 °C (c) for 10 h [4].

하고 입계에 농축되었음을 의미한다. 이 2 nm 미만의 얇은 층은 인접한 강자성 결정립 간의 직접적인 교환 결합을 물리적으로 단절시키는 자기적 장벽(Magnetic barrier)으로 작용하여, 역자구의 전파를 효과적으로 억제한다.

에이징 처리가 입계상의 화학적 개질에 미치는 영향은 Fig. 7을 통해 더욱 선명하게 드러난다[4]. EDS 원소 맵핑 결과,

주상 내부와 비교하여 결정립계에서 Sm의 강력한 편석(Segregation)이 관찰되는 반면, Fe와 V의 농도는 급격히 낮아지는 ‘Sm-rich/Fe-poor’ 특성이 나타난다. 해당 논문의 정량 분석 결과에 따르면, 입계상 내부의 Sm 농도는 약 60~80 at.%에 달하며, Fe 농도는 20~30 at.% 수준으로 크게 감소한다. 일반적으로 Sm-Fe 이원계 상태도에서 Sm 함량이

60 at.% 이상인 영역은 상온에서 강자성을 띠지 않는 비자성 (Non-ferromagnetic) 또는 상자성 영역에 해당한다.

Fig. 6의 line-scan 결과는 이러한 화학적 구배(Chemical gradient)를 더욱 극명하게 보여준다. 주상에서 입계로 이동함에 따라 Sm 농도는 급격한 피크를 형성하고 Fe 농도는 밸리 (Valley) 형태의 급감을 나타낸다. 이러한 ‘화학적 디커플링’은 Fig. 7(b)의 line-scan 결과와 같이 에이징 온도와 시간에 따라 제어되며, 입계상의 Fe 함량이 낮아질수록 주상 간의 자기적 상호작용이 약화되어 최종적으로 10 kOe 이상의 고보자력을 달성할 수 있는 근거가 된다. 결과적으로 ThMn_{12} 계 벌크 자석의 입계상은 단순한 불순물 층이 아니라, 나노미터 수준의 두께와 비자성 화학 조성을 갖도록 설계된 ‘엔지니어링된 계면(Engineered interface)’으로서 고성능 영구자석 구현의 핵심적 역할을 수행한다.

2.3. 에이징(Aging) 처리에 의한 보자력 최적화

ThMn_{12} 계 벌크 자석에서 상변태 열처리를 통해 주상을 형성시킨 후 수행되는 후속 에이징 공정은 결정립계의 화학적 구배를 완성하여 보자력을 극대화하는 결정적인 단계이다. 본 절에서는 에이징 온도가 자기적 특성에 미치는 영향과 그에 따른 미세조직적 진화 과정을 고찰한다.

Fig. 8은 에이징 온도가 보자력(H_c) 및 잔류자화(M_r)에 미치는 민감도를 보여준다. 실험 결과, 800 °C에서 에이징을 수행했을 때 보자력이 10.8 kOe(0.859 MA/m)로 정점에 도달하였다. 이는 에이징 전(9.2 kOe) 대비 약 15% 이상 향상된 수치이다. 800 °C 미만에서는 Sm 원자의 확산 속도가 충분하지 않아 입계상의 개질이 미흡하며, 반대로 800 °C 초과 고온에서는 입계상의 조대화나 주상으로의 역확산이 발생하여 보자력이 다시 감소하는 경향을 보인다. 이는 입계 제어에 있어 ‘입계 온도’ 설정이 핵심임을 시사한다.

에이징 처리에 의한 조직적 변화는 Fig. 9를 통해 시각적으로 확인된다. 에이징 전에는 결정립계가 다소 불분명하고 Sm의 분포가 비균질했으나, 800 °C 에이징 후에는 결정립 경계를 따라 밝은 대조를 보이는 Sm-rich 입계상이 훨씬 더 연속적이고 선명한 네트워크를 형성한다. 이러한 변화는 주상 내부에 과포화 상태로 남아있던 Sm 원자들이 에이징 과정에서 열에너지를 얻어 결정 외곽으로 확산·농축되었음을 의미하며, 결과적으로 결정립들을 자기적으로 분리(Isolation)시키는 결과를 낳는다.

에이징을 통한 보자력 향상의 본질은 입계상의 ‘비자성 (Non-ferromagnetism) 강화’에 있다. Fig. 7의 EDS 분석에 따르면, 에이징 후 입계상의 Sm 함량은 70 at.% 수준까지 급

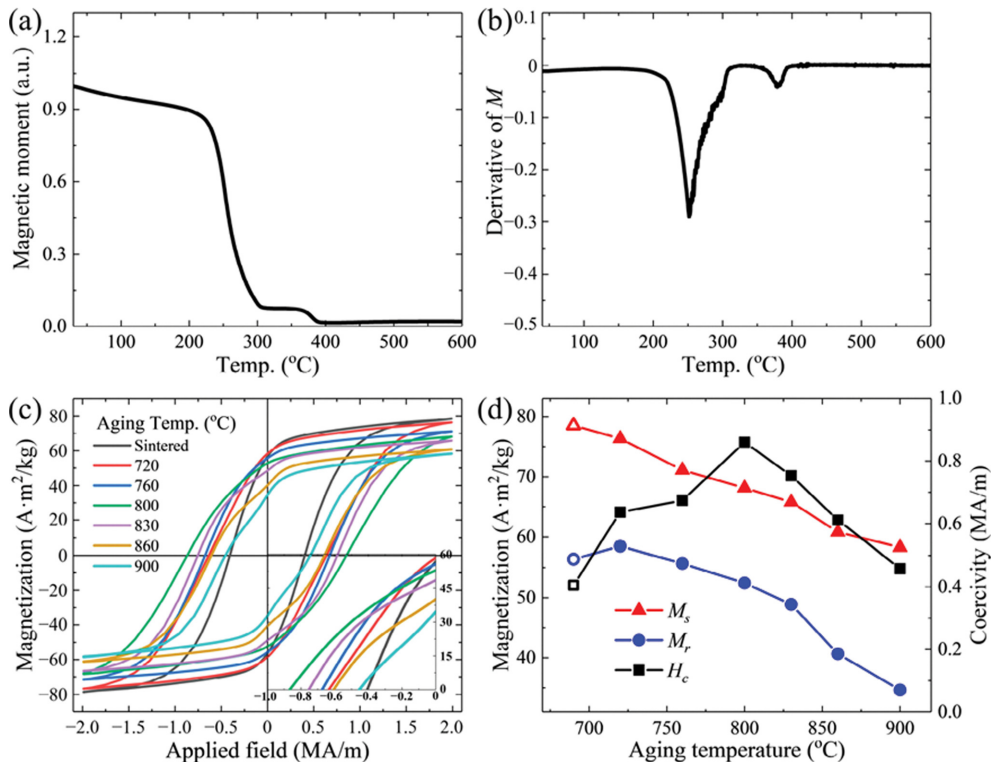


Fig. 8. (Color online) Thermomagnetic curve (a) and its derivative (b), hysteresis loops (c), and M/H-T (d) curves of $\text{SmFe}_{10}\text{V}_2$ sintered bulk and aging-treated bulks. The aging treatment was performed at 730–900 °C for 10 h. The magnetic properties of sintered bulk are shown by the open points in Fig. (c). [4].

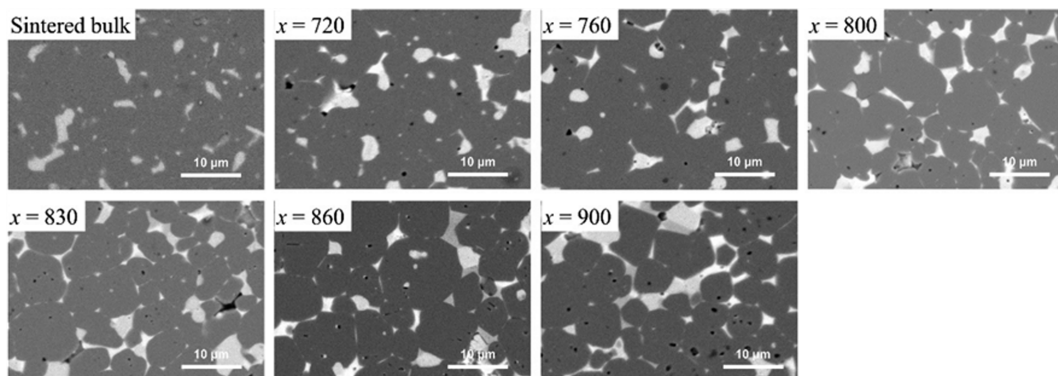


Fig. 9. Microstructure of $\text{SmFe}_{10}\text{V}_2$ sintered bulk and aging-treated bulks. The aging treatment was performed at $x^\circ\text{C}$ for 10 h ($x = 720\sim 900$) [4].

증하고 Fe 함량은 25 at.% 이하로 감소한다. 이러한 극단적인 조성비는 입계상을 강자성에서 비자성으로 전이시켜, 인접 결정립 간의 자기적 교환 작용을 차단한다. Fig. 8(c)에서 에이징 후 곡선의 각형성(Squareness)과 보자력이 동시에 개선되는 것은, 입계상이 역자구의 핵 생성 및 전파를 핀닝(Pinning) 센터로서 효과적으로 억제하고 있음을 뒷받침한다. 결론적으로 $\text{SmFe}_{10}\text{V}_2$ 벌크 자석에서 에이징 처리는 단순한 후열처리가 아니라, 나노 스케일에서 입계상의 화학 조성을 정밀 튜닝하여 ‘자기적 디커플링’을 완성하는 필수 공정이다.

3. 자기적 이방성 구현 및 에너지적 극대화

ThMn_{12} 형 Sm-Fe계 화합물이 차세대 영구자석으로서 경쟁

력을 확보하기 위해서는 높은 보자력뿐만 아니라, 특정 방향으로 자화 용이축(Easy axis)을 정렬시켜 M_r 를 극대화하는 자기적 이방성(Magnetic anisotropy) 구현이 필수적이다. 본 절에서는 볼 밀링(Ball milling) 공정을 통한 분말 미세화와 자장 중 성형 기술을 결합하여 이방성 벌크 자석을 제조한 공정 및 그에 따른 자기적 특성 향상을 고찰한다.

3.1. 볼 밀링 공정을 통한 분말 미세화 및 입도 제어

ThMn_{12} 구조의 $\text{SmFe}_{10}\text{V}_2$ 벌크 자석에서 자기적 이방성을 유도하기 위한 선결 조건은 외부 자기장에 반응하여 개별 입자가 자유롭게 회전하고 정렬될 수 있도록 분말의 크기와 형상을 최적화하는 것이다. 본 연구에서는 주조 및 열처리된 조

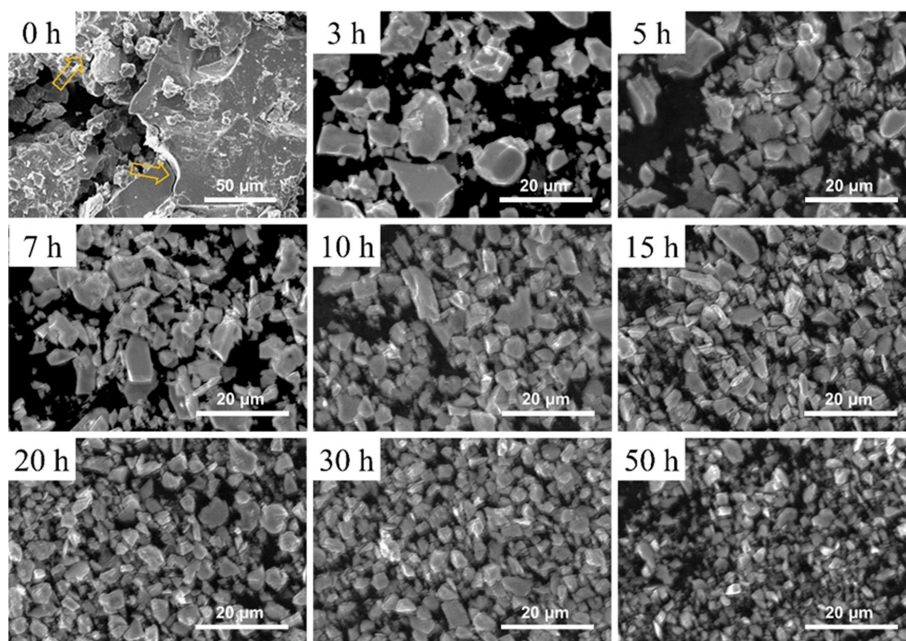


Fig. 10. (Color online) SEM images of the H_2 decrepitated powder (0 h) and the ball-milled powders with different ball milling times from 3 to 50 h (BM3-BM50). The yellow arrows show the intergranular fracture made by the H_2 decrepitation. The powder size distribution becomes finer with longer milling times, with maximum and minimum sizes varying severalfold within the same milling time [5].

대한 합금 잉곳을 원료로 하여, 습식 볼 밀링 공정을 통해 분말의 미세화 및 입도 분포를 정밀하게 제어하였다. Fig. 10은 밀링 공정의 진행에 따른 분말의 미세화 과정을 시각적으로 보여준다. 초기 원료 분말은 수십에서 수백 마이크로미터(μm)에 이르는 불규칙하고 조대한 입자들로 구성되어 있다. 밀링 초기 단계에서는 강력한 기계적 충격에 의해 이러한 조대 입자들이 급격히 파쇄되기 시작하며, 입자 크기의 불균일성이 두드러지게 나타난다. 밀링 시간이 4시간을 경과하여 8시간에 도달하면, 조대한 입자들은 대부분 사라지고 수 μm 수준의 미세 분말로 변모한다. Fig. 10에서 확인되었듯이, 최종적으로 얻어진 분말은 입도가 매우 균일해지며, 이러한 미세화는 후속 자장 중 성형 공정에서 각 입자가 단일 자구적 거동을 하거나 자기적 토크에 민감하게 반응하여 용이축 방향으로 정렬될 수 있는 최적의 환경을 제공한다.

볼 밀링에 의한 분말의 크기 감소는 Fig. 11을 통해 정량적으로 입증된다. 밀링 전 수십 μm 에 달하던 평균 입도는 밀링 공정이 진행됨에 따라 수 μm 범위로 급격히 수축한다. 특히 8시간 밀링 후에는 입도 분포 곡선이 좁은 범위로 집중되는 ‘단분산(Monodisperse)’ 형태에 가까워지는데, 이는 벌크 자석 내부의 미세조직을 균일하게 제어하고 비정상 결정립 성장을 억제하는 데 결정적인 역할을 한다. 미세화된 분말은 입자 간의 마찰 저항을 줄이고 외부 자기장에 의한 회

전력을 극대화한다. Fig. 11에서 확인된 최적화된 입도 분포는 자장 중 성형 시 높은 M_r/M_s 를 달성하게 하는 물리적 근거가 된다. 습식 밀링은 분말의 산화를 방지함과 동시에 입자 간의 재응집을 억제하여 미세화 효율을 극대화한다. 또한, 과도한 기계적 에너지가 결정 구조를 파괴하지 않도록 밀링 조건을 최적화함으로써, 주상인 ThMn_{12} 상의 높은 결정성을 유지하면서도 효과적인 입도 제어를 달성하였다. 이는 최종 벌크 자석이 높은 포화자화와 보자력을 동시에 유지할 수 있게 하는 중요한 공정적 요소이다.

3.2. 자장 중 성형 및 결정 배향도 분석

분쇄 공정을 통해 미세화된 $\text{SmFe}_{10}\text{V}_2$ 분말에 자기적 이방성을 부여하기 위해서는 외부 자기장을 인가하여 개별 입자의 자화 용이축을 한 방향으로 정렬시키는 자장 중 성형 공정이 필요하다. 본 절에서는 볼 밀링 및 열처리 과정에서의 상 안정성을 먼저 검토한 후, 자장 중 성형을 통해 구현된 결정학적 배향성을 XRD 패턴과 EBSD 분석 결과를 바탕으로 고찰한다.

볼 밀링은 입자 크기를 미세화하여 자장 중 성형 시 입자의 회전 및 배향을 용이하게 하지만, 과도한 기계적 에너지는 산화를 형성이나 1:12 주상의 부분적 분해를 유발할 수 있다. 따라서 이방성 벌크 자석 제조에 앞서, 볼 밀링 시간과

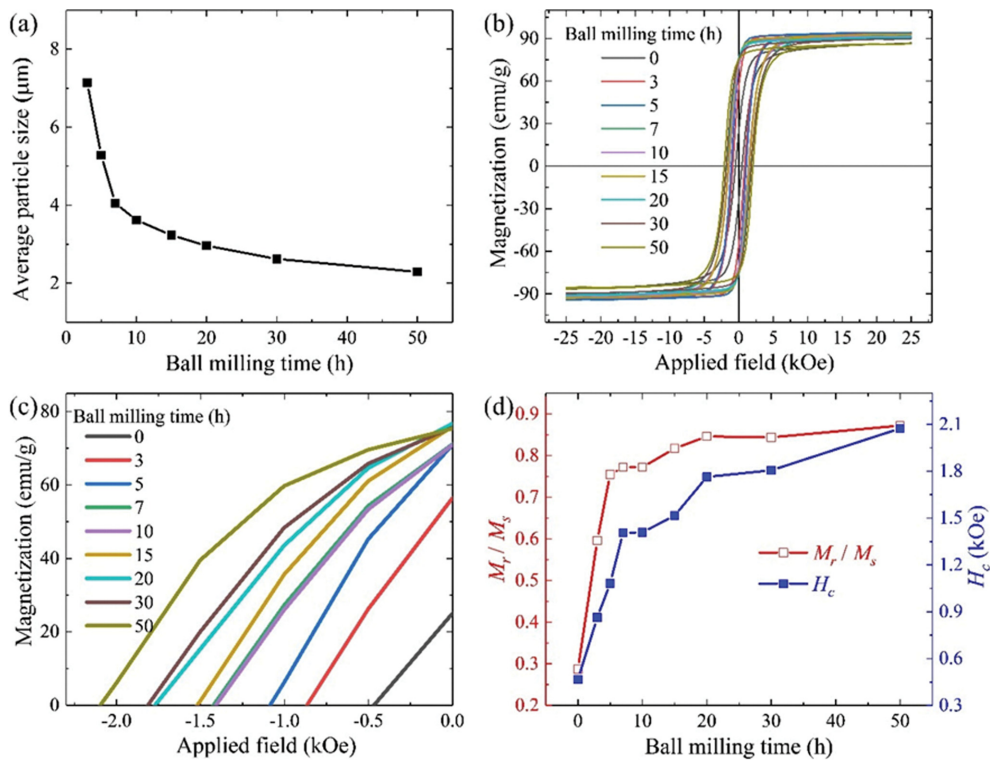


Fig. 11. Average size (a), hysteresis loops (b,c), and the tendency of M_r/M_s and H_c (d) of the H_2 decrepitated powder (0 h) and the ball-milled powders with different ball milling times, from 3 to 50 h (BM3-BM50) [5].

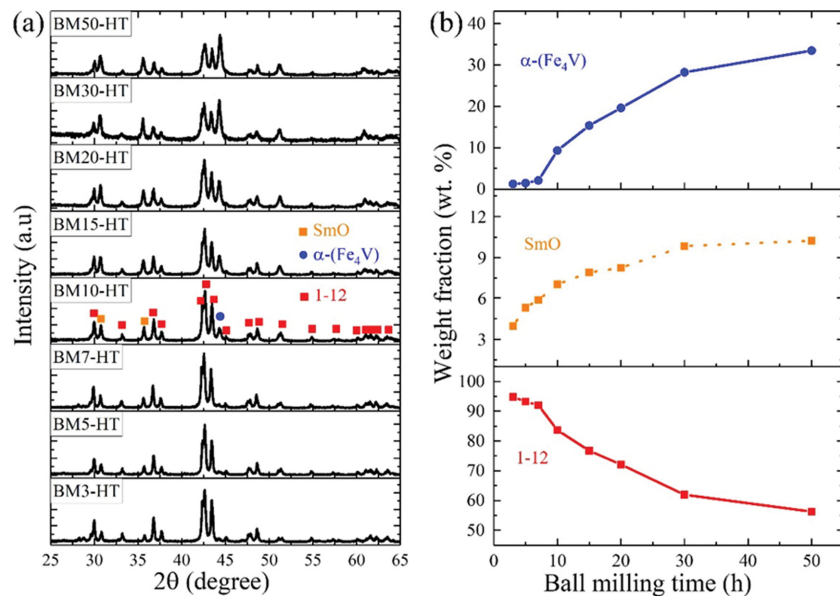


Fig. 12. (Color online) XRD patterns (a) and phase fractions (b) of the heat-treated bulks BM3-HT-BM50-HT. The fractions of α -(Fe₄V), SmO, and 1~12 phases were summarized from the refinement of XRD patterns calculated by the FullProf program [5].

후속 열처리 조건이 상 구성에 미치는 영향을 확인하는 것이 중요하다. Fig. 12는 서로 다른 볼 밀링 시간을 거친 분말을 열처리한 벌크 시료의 XRD 패턴과 Rietveld 정밀화를 통해 산출한 상분율을 보여준다. 분석 결과, 열처리 후에도 1:12 상이 주상으로 유지되지만, 밀링 조건에 따라 α -(Fe₄V), SmO 등의 부상 분율이 변화하는 것을 확인할 수 있다. 이는 볼 밀링에 의한 미세화가 자장 배향성 향상에는 유리한 반면, 과도한 밀링은 산화 및 부상 형성을 통해 자기적 특성을 저하시킬 수 있음을 시사한다. 따라서 Fig. 12는 자장 성형에 앞서 최적의 분말 미세화 조건과 상 안정성 확보가 필요함을 보여주는 근거로 해석된다.

자장 중 성형 공정에서는 볼 밀링된 미세 분말을 금형에 충전한 후 약 1.0 T의 외부 자기장을 인가하여 입자들의 자화 용이축을 자기장 방향으로 정렬시켰다[5]. 이때 ThMn_{12} 구조의 정방정계 격자가 갖는 강한 결정자기이방성으로 인해, 각 입자는 자기장 방향과 c -축이 평행해지도록 자기적 토크를 받는다. 이후 고압 성형을 통해 정렬된 입자들의 방위를 고정함으로써, 최종 벌크 자석 내부에 거시적인 결정 배향성을 부여하였다. 특히 Fig. 13에 제시된 AP-35 시료는 3.5 GPa 조건에서 성형된 대표적인 이방성 벌크 자석으로, 자장 중 성형에 따른 결정학적 배향성을 명확히 보여준다.

Fig. 13(a)는 자장 성형된 벌크 시료와 무작위 배향 상태의 분말 XRD 패턴을 비교한 결과이다. 무작위 분말에서는 ThMn_{12} 구조의 일반적인 회절 피크들이 관찰되는 반면, 자장 성형된 벌크 시료에서는 (002) 회절 피크의 상대 강도가 뚜렷하게 증가한다. 이는 1:12 상의 c -축, 즉 [001] 방향이 외

부 자기장 및 성형 방향을 따라 우선적으로 정렬되었음을 의미한다. 따라서 XRD에서의 (002) 피크 강화는 자장 중 성형을 통해 결정학적 이방성이 효과적으로 유도되었음을 보여주는 중요한 지표이다.

이러한 결정 배향성은 EBSD 분석을 통해서도 확인된다. Fig. 13(d)의 inverse pole figure(IPF) map에서는 측정면 법선 방향을 기준으로 다수의 결정립이 <001> 방향에 해당하는 색상으로 분포하는 것을 확인할 수 있다. 또한 Fig. 13(e)의 pole figure에서도 특정 방향을 중심으로 강한 집합조직(texture)이 형성되어 있음을 보여준다. 이는 벌크 자석 내부의 결정립들이 무작위로 배열된 것이 아니라, 자장 인가 방향을 따라 c -축이 우선적으로 배향되어 있음을 뒷받침한다.

결론적으로, $\text{SmFe}_{10}\text{V}_2$ 벌크 자석에서 자장 중 성형 공정은 개별 입자의 자화 용이축을 정렬시켜 거시적인 자기적 이방성을 구현하는 핵심 공정이다. Fig. 12는 볼 밀링 및 열처리 후 1:12 주상의 유지와 부상 형성 여부를 통해 배향성 구현을 위한 분말 조건의 중요성을 보여주며, Fig. 13은 XRD 및 EBSD 분석을 통해 실제 벌크 자석에서 [001] 방향의 결정 배향이 성공적으로 형성되었음을 보여준다. 이러한 결정학적 배향성 확보는 잔류자화와 최대자기에너지적 향상으로 이어지며, ThMn_{12} 형 Sm-Fe계 벌크 자석의 이방성 구현 가능성을 뒷받침하는 중요한 결과이다.

3.3. 자기적 특성의 비대칭성 및 에너지적 향상

$\text{SmFe}_{10}\text{V}_2$ 벌크 자석의 자기적 이방성 구현 여부는 거시적인 자기 특성 변화와 미세구조적 결정 배향 분석을 통해 중

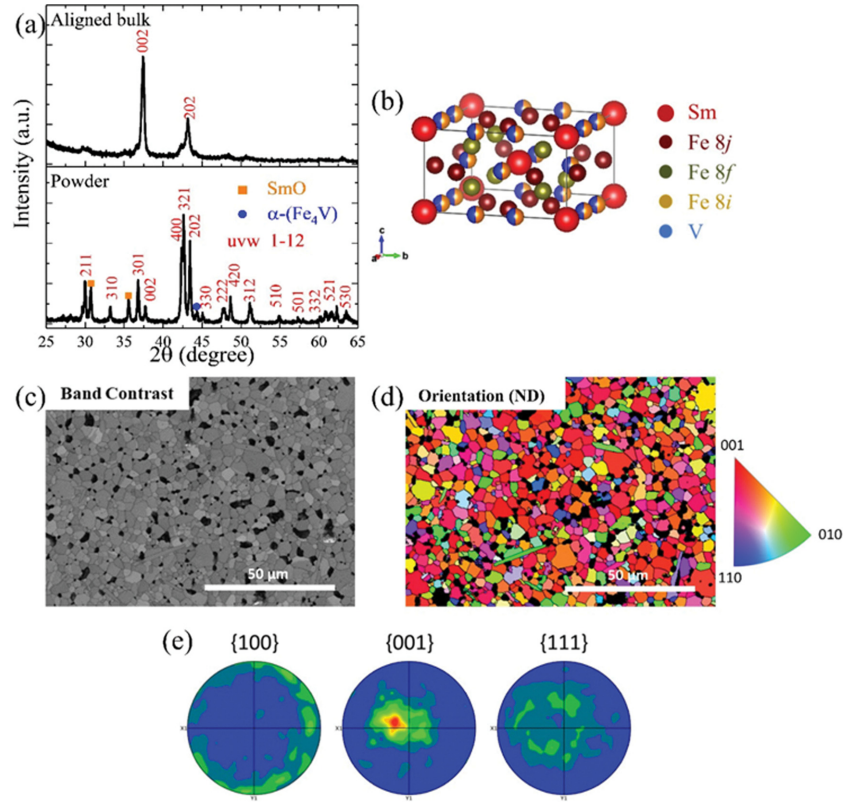


Fig. 13. (Color online) (a) XRD patterns of the bulk sample pressed under 3.5 GPa (AP-35), including bulk and ground powders; (b) crystal structure of the composition of SmFe₁₀V₂; (c) band contrast map; (d) inverse pole figure (IPF) map in the AP-35 sample's surface normal (ND), in which the measuring face is perpendicular to the aligned direction; (e) polar figures of three different directions, calculated based on the EBSD image in (d) [5].

합적으로 입증되었다. 본 절에서는 등방성 자석 대비 이방성 자석의 성능 향상과 이를 뒷받침하는 결정학적 근거를 고찰한다.

Fig. 13에서 결정학적 정렬 여부를 확인하기 위해 무작위로 배향된 분말과 자장 성형된 이방성 벌크 자석의 XRD 패턴을 비교 분석하였다. Fig. 13(a)에서 확인할 수 있듯이, 두

시료 간에는 뚜렷한 피크 강도 차이가 관찰된다. 무작위 분말 상태에서는 ThMn₁₂ 구조의 표준 회절 강도를 따르지만, 자장 성형된 벌크 자석의 가압면에서는 (002) 회절 피크의 강도가 비약적으로 증가한 것을 볼 수 있다. 이는 ThMn₁₂ 상의 *c*-축(자화 용이축)이 외부 자기장 인가 방향으로 성공적으로 정렬되었음을 의미하며, 거시적인 이방성 자석 제조가

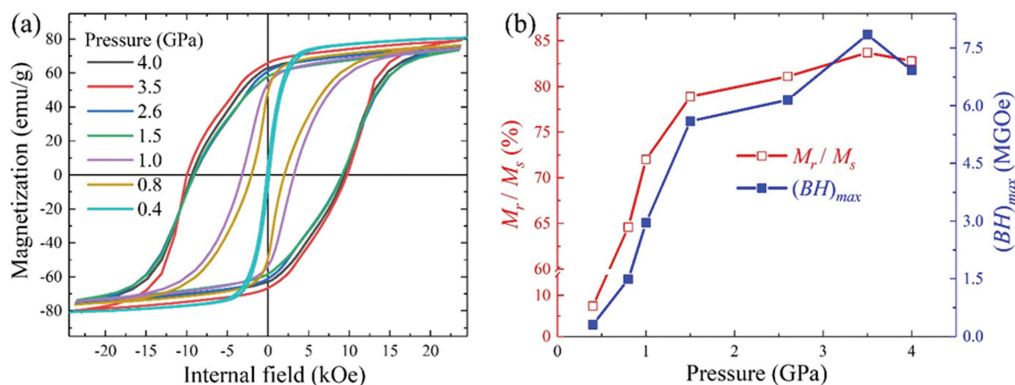


Fig. 14. (Color online) Demagnetization-corrected hysteresis loops (a), values of M_r/M_s and $(BH)_{max}$ (b) of the anisotropic bulks depending on the pressure. The value of M_r/M_s represents the orientation level [5].

성공적으로 이루어졌음을 결정학적으로 증명한다.

이러한 결정 배향성 확보는 최종 벌크 자석의 자기적 성능 향상으로 직결된다. Fig. 14는 자장 정렬 여부에 따른 자기이력곡선과 M_r/M_s 및 $(BH)_{\max}$ 의 변화를 보여준다. 저압 성형된 벌크 자석의 배향도(M_r/M_s)는 7.4%인 반면, 고압 성형된 벌크 자석은 83.7%로 약 11.3배 이상 상승하여 등방성 정렬도(50%)를 크게 상회하였다. 잔류자화의 비약적인 상승에 힘입어 $(BH)_{\max}$ 은 등방성 벌크(2.15 MGOe) 대비 약 3.7배 향상된 7.85 MGOe를 달성하였다. 이때 H_c 은 약 10 kOe 수준을 유지하며 고보자력과 고배향성이 조화된 특성을 보였다.

3.4. 주요 연구군별 핵심 특성 비교

본 고에서 고찰한 ThMn₁₂ 구조 Sm-Fe계 벌크 영구자석의 핵심 연구 성과인 화학 조성, 제조 공정 변수, 미세구조적 특성 및 최종 자기적 물성을 Table II에 종합하여 비교하였다. 이를 통해 완전 비정질 전구체 제어에서 시작하여 결정 격자 안정화, 결정립계 개질을 통한 고보자력 확보, 그리고 최종 자장 성형을 통한 이방성 구현으로 이어지는 국내 연구진의 독창적인 기술적 진보 패러다임을 한눈에 파악할 수 있다.

Table II의 연구 흐름을 면밀히 분석하면, ThMn₁₂ 구조의 영구자석화 연구가 구조적 한계 극복과 자기적 성능 극대화라는 명확한 지향점을 가지고 단계적으로 발전해 왔음을 알 수 있다.

특히 본 고에서 고찰한 핵심 시스템들은 단편적인 원소 탐색에 그친 것이 아니라, 첨가 원소의 변화에 따라 긴밀한 유기적 인과관계를 맺으며 진화하였다. 연구 패러다임이 초기 Ti 중심의 첨가계[1,2]에서 후기 V 단독 첨가계[3~5]로 전환

된 배경에는 두 원소가 격자 내부와 결정립계에 미치는 금속학적 거동 차이가 자리 잡고 있다. 초기 시스템인 Sm-(Fe,Co)-Ti계에서 Ti는 1:12 상을 안정화하는 에너지가 매우 강력하여 적은 치환량($x = 1$)으로도 XRD 검출한계 내에서 강자성 불순물인 α -Fe의 peak를 현저히 감소시킬 수 있는 장점이 있었다. 그러나 비자성 원소인 Ti의 격자 침입은 M_s 를 심각하게 저하시켰으며, 이를 보상하기 위해 고가의 Co 첨가가 필수적으로 동반되었다. 하지만 자화 향상을 위해 도입된 Co는 보자력 확보에 치명적인 한계를 야기했다. 주상 형성 과정에서 1:12 격자 내부로 고용되지 못한 잔류 Fe와 Co가 결합하면서 강력한 연자성 불순물 상인 α -(Fe,Co)를 쉽게 석출시켰고, 이는 외부 반대 자기장 인가 시 역자구의 용이한 핵생성 사이트로 작용하여 보자력을 크게 붕괴시켰다.

더욱 중요한 연관성은 ‘입계상 형성 능력’에 있다. Ti는 1:12 주상 격자 내부에 강력하게 고용되려는 성질이 있어, 열처리 후 결정 외곽으로 배출되어 비자성 입계상을 형성하기가 매우 어렵다. 반면, V는 1:12 상 안정화와 함께, 과잉 Sm이 입계로 편석되어 Sm-rich grain boundary phase를 형성하는 경향이 있다. 결과적으로 Sm-(Fe,Co)-Ti계에서 Sm-Fe-V계로 조성을 전환한 것은, 단순히 원소를 대체한 것이 아니라 주상 격자를 안정화하는 역할(Ti)에서 한 걸음 나아가 결정립계를 비자성으로 개질하여 자기적 디커플링을 유도할 수 있는 역할(V)로 고보자력 메커니즘을 확장하기 위한 기술적 선택이었음을 보여준다.

초기 연구인 [참고문헌 1]에서는 열역학적으로 불안정한 SmFe₁₂ 계열에서 불순물인 강자성 α -Fe의 석출을 원천적으로 배제하기 위해 급냉 응고 분말과 고압 성형(HPP) 기술을

Table II. Summary of chemical compositions, fabrication processes, microstructural features, and magnetic properties of key ThMn₁₂-type Sm-Fe-based bulk magnets.

Ref.	Composition	Fabrication Process	Microstructural Features	Magnetic Properties
[1]	Sm(Fe _{0.8} Co _{0.2}) ₁₁ Ti	Melt-spinning + HPP + Phase transformation annealing	Stepwise crystallization from a fully amorphous state via a 1:7 metastable phase, 50~100 nm equiaxed grains, phase purity of 97%	$(BH)_{\max} \approx 12$ MGOe
[2]	Sm(Fe _{0.8} Co _{0.2}) _{12-2x} Ti _x V _x ($x = 0.6, 0.8, 1.0$)	Master alloy melting + HPP + Heat treatment at 800 °C	c/a lattice ratio contraction and structural stabilization via Ti-V pair substitution, suppression of ferromagnetic α -Fe precipitation at $x = 1.0$	Securing $H_c > 10$ kOe and achieving phase purity > 95 wt.%
[3]	Sm _x Fe ₁₀ V ₂ ($x = 1.4\sim 1.9$)	Hydrogen decrepitation + HPP + Heat treatment at 1,140 °C	Formation of a continuous Sm-rich phase network along grain boundaries due to excess Sm addition ($x \geq 1.6$)	Rapid increase in coercivity ($H_c > 10$) in compositions with $x \geq 1.6$
[4]	SmFe ₁₀ V ₂	Bulk sintering + Subsequent aging at 730~900 °C	Magnetic decoupling through the formation of an amorphous Sm-rich/Fe-poor grain boundary layer with a thickness of approximately 1.8 nm	Achievement of $H_c = 10.8$ kOe upon aging at 800 °C
[5]	SmFe ₁₀ V ₂	Wet ball milling + Magnetic field alignment molding (1.0 T) + HPP (3.5 GPa)	Induction of uniform crystallographic alignment along the <001> easy axis, achieving a magnetic alignment degree of 83.7% based on EBSD analysis	$H_c \approx 10.1$ kOe, $(BH)_{\max} = 7.85$ MGOe (3.7-fold increase compared to the isotropic counterpart)

융합하였다. 이를 통해 비정질 매트릭스로부터 준안정상(1:7 상)을 거쳐 주상으로 이행되는 ‘단계적 결정화’ 기전을 명확히 규명하였고, 대량의 장거리 원자 확산을 억제하여 97% 이상의 상 순도를 달성하는 기틀을 마련하였다. 이어지는 [참고 문헌 2]에서는 단일 원소 치환의 한계를 극복하기 위해 Ti-V 쌍(Pair) 치환 전략을 도입하였다. 격자 상수비(c/a)의 의도적인 수축과 격자 왜곡 완화를 유도함으로써 1:12 구조 자체의 일축 이방성 에너지를 보존하면서도 상 순도를 95 wt.% 이상으로 유지하는 구조 안정화 최적 조성을 확립하였다.

주상의 원소 설계 및 안정화가 확보된 이후, 연구의 초점은 고유 물성 구현의 가장 큰 난제였던 ‘낮은 보자력’을 극복하기 위한 미세조직 제어로 전환되었다. [참고문헌 3]과 [4]는 결정립 간의 직접적인 접촉이 강자성 교환 결합을 유도하여 보자력을 급격히 저하시킨다는 점에 주목하여 ‘결정립계 엔지니어링’을 제안하였다. 화학양론 조성을 초과하는 과잉의 Sm 첨가[3]를 통해 상변태 과정에서 배출된 Sm 원자가 결정립 삼중점과 경계면에 농축되도록 유도하였으며, 후속 최적 에이징 처리[4]로 약 1.8 nm 두께의 극미세 비정질 Sm-rich 입계상을 완성하였다. 이는 인접한 메인 결정립들을 자기적으로 격리(Magnetic decoupling)시키는 물리적 장벽으로 작용하여, 역자구의 전파를 효과적으로 억제함으로써 최종 10.8 kOe의 고보자력을 안정적으로 확보하는 중요한 성과를 이루었다.

가장 최근 연구인 [참고문헌 5]는 앞서 확립된 고순도화 및 고보자력 확보 기술을 바탕으로, 상용 자석으로서의 최종 가치인 $(BH)_{max}$ 을 극대화하기 위해 거시적 자기 이방성을 부여하는 연구를 수행하였다. 이전 연구들이 등방성 벌크 자석의 물성 한계에 갇혀 있던 것과 달리, 계면활성제를 첨가한 습식 볼 밀링 공정을 통해 주상의 결정성을 파괴하지 않으면서 단일 자구 크기에 근접하도록 입도를 미세화하였다. 이를 1.0 T의 외부 자장 환경에서 정렬 성형함으로써, 벌크 자석 내부 나노 결정립들의 <001> 용이축을 자장 방향으로 정렬시키는 데 성공하였다. EBSD IPF 분석을 통해 입증된 83.7%의 고배향도는 잔류자화의 비약적인 상승을 이끌어냈으며, 결과적으로 등방성 벌크 대비 약 3.7배 향상된 7.85 MGOe의 대표 성과를 달성하였다.

결과적으로 본 고에서 고찰한 5편의 논문들은 [소재 구조 안정화 → 계면 디커플링을 통한 보자력 향상 → 결정 방위 정렬을 통한 에너지적 극대화]로 이어지는 기술적 연속성을 보여주고 있으며, 이는 향후 ThMn₁₂계 영구자석 상용화를 앞당기는 학술적·공학적 토대가 될 수 있다.

IV. 결 론

본 고에서는 차세대 희토류 저감형 영구자석 소재로 주목

받는 ThMn₁₂ 구조 Sm-Fe계 벌크 자석의 제조 공정과 미세 조직 제어 및 자기적 특성 향상 전략을 종합적으로 고찰하였다. 한국재료연구원을 중심으로 수행된 일련의 연구 성과를 통해 도출된 핵심 결론은 다음과 같다.

첫째, ThMn₁₂ 상의 열역학적 불안정성 문제를 극복하기 위해 비정질 전구체 형성과 고압 성형(HPP) 및 정밀 열처리 공정을 체계화하였다. 실시간 TEM 분석을 통해 비정질 상에서 1:7 상을 거쳐 1:12 준안정상(Stepwise crystallization)으로 이행되는 ‘단계적 결정화(Stepwise crystallization)’ 기전을 규명하였으며, 이를 통해 97% 이상의 높은 상 순도를 갖는 고밀도 벌크 자석 제조 기술을 확립하였고, 최대자기에너지적($(BH)_{max}$) 12 MGOe를 달성하였다. 특히 Ti-V 쌍 치환 전략은 격자 상수비(c/a) 제어를 통해 결정 구조적 안정성을 높임과 동시에 고유 자기 이방성을 강화하는 핵심 기전임을 확인하였다.

둘째, 벌크 자석의 보자력 한계를 극복하기 위해 결정립계 엔지니어링을 도입하였다. Sm 함량의 최적화와 후속 에이징 처리를 통해 결정립 경계에 나노미터 수준의 비자성 Sm-rich 입계상을 성공적으로 형성시켰으며, 이는 주상 결정립 간의 자기적 교환 결합을 차단하는 디커플링 효과를 유도하였다. 그 결과, 최적화된 에이징 조건에서 최대 10.8 kOe(0.859 MA/m)의 고보자력을 구현함으로써 ThMn₁₂계 소재의 실용화 가능성을 보여주었다.

셋째, 볼 밀링 공정을 통한 분말 미세화와 자장 중 성형 기술을 결합하여 자기적 이방성을 성공적으로 확인하였다. 자장 성형된 이방성 벌크 자석은 83.7%의 높은 결정 배향도를 나타냈으며, 이를 통해 잔류자화를 극대화하였다. 이방성 구현에 따른 $(BH)_{max}$ 은 최적화된 등방성 자석(2.15 MGOe) 대비 약 3.7배 향상된 7.85 MGOe를 달성하였다.

결론적으로, ThMn₁₂형 Sm-Fe계 벌크 영구자석 연구는 소재의 기초 형성 기전 규명부터 실용적 지표인 이방성 확보까지 괄목할 만한 기술적 진보를 이루었다. 비록 현재의 고압 성형 공정이 연구 단계에서 우수한 물성을 확보하는 데 크게 기여하였으나, 향후 산업적 대량 생산을 위해서는 다음과 같은 실용화 핵심 과제들이 반드시 해결되어야 한다.

1) 일반 소결 공정으로의 전환 가능성 타진: 현재까지 상 순도 유지와 결정립 성장 억제를 위해 수 GPa 수준의 초고압 성형(HPP) 기술이 핵심적으로 활용되어 왔다. 그러나 이는 장비의 스케일업 한계와 금형 수명 문제로 인해 복잡한 형상을 요구하는 상용 모터용 자석의 대량 생산에 치명적인 공정 한계로 작용한다. 따라서 향후에는 가압 없이도 나노 스케일의 미세조직과 입계상을 유지할 수 있는 상압 소결(Conventional sintering) 기술의 개발이 필수적이며, 통전 활성 소결(SPS)이나 금속 분말 사출 성형(MIM) 공정과의 연계 기술 탐색이 가속화되어야 한다.

가혹한 작동 환경에서의 고온 신뢰성 검증: 본 구조는 약 580 °C의 높은 이론적 큐리온도(T_c)를 가져 우수한 온도 특성이 기대되지만, 실제 자동차용 구동 모터의 작동 영역인 150~200 °C의 고온 환경에서 감자 자장에 버티는 실질적인 고온 보자력 거동과 가역/불가역 자속 손실(Irreversible flux loss)에 대한 장기 신뢰성 평가는 아직 미흡한 실정이다. 특히 보자력 향상의 핵심인 약 수 nm 두께의 극미세 비정질 Sm-rich 입계상이 고온 구동 시 장시간 노출되었을 때 원소의 재확산이나 열화로 인해 자기적 디커플링 효과가 붕괴되는 현상을 제어할 수 있는 열적 안정성 연구가 병행되어야 한다.

활성 나노 분말 제어를 통한 대량 생산성 향상: 볼 밀링 공정을 통해 단일 자구 크기에 근접한 미세 분말을 대량으로 취급하는 과정에서, 화학적 활성이 높은 희토류 Sm 원소의 산화 문제는 고질적인 장애 요인이다. 공정 중 미량의 산소 유입으로 발생하는 Sm₂O₃ 등의 비자성 산화물은 주상의 분율을 떨어뜨리고 심각한 잔류자화 감소를 야기하므로, 원료 용해부터 자장 성형에 이르는 전 공정을 완전히 밀폐된 극저산소 불활성 분위기로 제어할 수 있는 양산형 시스템 구축과 분말 표면 산화 방지 나노 코팅 기술 등의 주변 공정 기술 인프라가 함께 성숙해야 할 것이다.

이러한 후속 제반 과제들이 유기적으로 해결된다면, 본 연구 성과들은 국내 자석 산업의 기술적 자립도를 높이고, 전

세계적인 희토류 자원 리스크 대응 및 탄소 중립 실현을 위한 핵심 기반 기술로 활용될 것으로 기대된다.

감사의 글

본 연구는 산업통상자원부(MOTIE)의 재원으로 한국에너지기술평가원(KETEP)의 지원을 받아 수행된 연구입니다(과제 번호: RS-2023-00237024, 과제명: 중형급 가변속 고풍력 전동기 개발 및 실증).

References

- [1] H.-D. Qian, J. T. Lim, J.-W. Kim, Y. Y., K. M. Cho, J. Park, and C.-J. Choi, *Scripta Materialia* **193**, 17 (2021).
- [2] T. H. Zhou, H.-D. Qian, J. T. Lim, H.-K. Jeon, C.-J. Choi, Y.-R. Cho, and J. Park, *Journal of Alloys and Compounds* **966**, 171620 (2023).
- [3] T. H. Zhou, Y. Song, B. Zhang, X. Zheng, C.-J. Choi, Y.-R. Cho, and J. Park, *Journal of Materials Research and Technology* **30**, 3092 (2024).
- [4] T. H. Zhou, B. Zhang, X. Zheng, Y. Song, P. Si, C.-J. Choi, Y.-R. Cho, and J. Park, *Metals* **14**, 1387 (2024).
- [5] T. H. Zhou, B. Zhang, X. Zheng, Y. Song, P. Si, C.-J. Choi, Y.-R. Cho, and J. Park, *Nanomaterials* **14**, 1329 (2024).