

Powder-based Diffusion Source Stamp-coating Process for Improving Grain Boundary Diffusion Efficiency in Nd-Fe-B Sintered Magnets

Dong Hyun Lee^{1,2}, Seong Chan Kim¹, Hyeonjong Jeong¹, Beom Sik Lim^{1,2}, Vitalii Galkin^{1,2},
Juyoung Baek¹, Tae-Young Yun¹, Jong Tae Kim¹, Sumin Kim³, Donghwan Kim⁴,
Sang Hyub Lee⁴, Dong Hwan Kim^{1*}, Jong Wook Roh^{2*}, and Jeongmin Kim^{1*}

¹Division of Nanotechnology, DGIST, Daegu 42988, Republic of Korea

²Regional Leading Research Center for Smart Energy System, Kyungpook National University, Daegu 41566, Republic of Korea

³Department of Magnetic Materials, Korea Institute of Materials Science, Changwon 51508, Republic of Korea

⁴R&D Center, Star Group, Daegu 42714, Republic of Korea

(Received 6 May 2026, Received in final form 17 June 2026, Accepted 17 June 2026)

Nd-Fe-B sintered magnets require efficient grain boundary diffusion (GBD) processes to enhance coercivity while minimizing the consumption of heavy rare-earth diffusion sources. In this study, a powder-based stamp-coating process using a TbH_x diffusion source was applied to improve the magnetic properties and simplify the GBD process in Nd-Fe-B sintered magnets. Compared with the conventional slurry-based dip coating process, the stamp coating achieved a higher coercivity enhancement under the same diffusion source loading of 1 wt.%. The stamp-coated GBD magnet exhibited the highest coercivity of 22.02 kOe, while maintaining limited remanence degradation and improved thermal stability compared with the initial magnet. Microstructural analysis revealed that Tb diffused from the magnet surface toward the interior and formed Tb-rich regions along the grain boundaries and grain surfaces near the magnet surface. These results demonstrate that the powder-based stamp-coating process is an effective coating strategy for improving the coercivity and thermal stability of Nd-Fe-B sintered magnets while reducing diffusion source loss.

Keywords : Nd-Fe-B sintered magnet, grain boundary diffusion process, permanent magnet, coating method

Nd-Fe-B 소결자석의 입계확산 효율 향상을 위한 분말 기반 확산원 스탬프 코팅 공정

이동현^{1,2} · 김성찬¹ · 정현종¹ · 임범식^{1,2} · 갈킨 비탈리^{1,2} · 백주영¹ · 윤태영¹ ·
김종태¹ · 김수민³ · 김동환⁴ · 이상협⁴ · 김동환^{1*} · 노종욱^{2*} · 김정민^{1*}

¹대구경북과학기술원 나노기술연구부, 대구광역시 테크노중앙대로 333, 42988

²경북대학교 탄소중립 지능형 에너지시스템 지역혁신 선도 연구센터, 대구광역시 북구 대학로 80, 41566

³한국재료연구원 자성재료연구실, 경남 창원시 성산구 창원대로 797, 51508

⁴성림첨단산업, 대구광역시 달서대로 85길, 42714

(2026년 5월 6일 받음, 2026년 6월 17일 최종수정본 받음, 2026년 6월 17일 게재확정)

본 연구에서는 Nd-Fe-B 소결자석의 입계확산공정(GBD)에서 자기특성 향상과 공정 단순화를 위해 분말형 TbH_x 확산원을 이용한 스탬프 코팅 공정을 적용하였다. 기존 슬러리 기반 딥 코팅 공정과 비교하여, 스탬프 코팅은 동일한 확산원 사용량(1 wt.%) 조건에서 더 높은 보자력 향상을 나타냈다. 특히 스탬프 코팅 GBD 자석은 22.02 kOe의 H_{ci}를 나타내어 딥 코팅 GBD 자석보다 우수한 보자력 특성을 보였다. 또한, 스탬프 코팅 GBD 자석은 다른 자석들에 비해서 열 안정성이 향상되었다. Tb의 확산은 자석 표면으로부터 내부 방향으로 확산되었으며, 자석 표면 영역에서는 입계 및 결정립 표면을 따라 Tb-rich shell을 형성하였다. 이러한 결과는 분말 기반 스탬프 코팅 공정이 확산원 손실을 줄이면서 Nd-Fe-B 소결자석의 보자력 및 열 안정성을 향상시킬 수 있는 효과적인 GBD 공정임을 보여준다.

주제어 : Nd-Fe-B 소결자석, 입계확산공정, 희토류 영구자석, 코팅 공정

I. 서 론

1980년대에 발견된 이후, 높은 최대자기에너지적($(BH)_{max}$)을 갖는 Nd-Fe-B 소결자석은 하드디스크 드라이브, 구동 모터, 풍력 발전기 등 다양한 산업 분야에서 널리 활용되어 왔다[1,2]. 특히 전기자동차 및 친환경 모빌리티용 모터에서는 고온 구동 환경에서도 안정적인 자기 성능을 유지해야 하므로, 높은 보자력(H_{cj})과 우수한 열적 안정성이 요구된다[3-5]. 이러한 요구를 충족하기 위한 대표적인 방법으로 Tb, Dy과 같은 중희토 원소(heavy rare-earth, HRE)를 이용한 입계확산 공정(grain boundary diffusion process, GBDP)이 널리 연구되어 왔다[6,7].

GBDP는 중희토 기반 확산원을 자석 표면에 코팅한 후 열처리를 통해 자석 내부의 입계로 확산시키는 공정이다. 이를 통해 $Nd_2Fe_{14}B$ 결정립의 중심부 조성은 유지하면서, 결정립 표면에는 높은 자기이방성(H_a)을 갖는 HRE-rich shell을 형성할 수 있다. 따라서 잔류자속밀도(B_r)의 감소를 최소화하면서 보자력을 효과적으로 향상시킬 수 있다[4,8]. 그러나 GBDP에서는 확산원을 자석 표면에 균일하게 코팅하는 공정이 필수적이며, 코팅층의 상태는 확산원의 침투 거동과 자석 내부의 확산 균일성에 영향을 미친다. 특히 확산 분포가 불균일할 경우 자석 내 위치에 따른 국부 H_{cj} 차이가 발생하여 각 형비(H_k/H_{cj})가 저하될 수 있다. 따라서, 확산원 코팅 방식에 따라 자기특성과 확산원의 활용 효율 뿐만 아니라 공정 효율 및 코팅표면 선택성이 달라질 수 있다[9-11].

현재까지 GBDP를 위한 확산원 코팅 방법으로는 분말 코팅[12], 딥 코팅[13], 스프레이 코팅[9], 마그네트론 스퍼터링[14], 전기영동 증착[15] 등 다양한 방식이 보고되어 왔다. 이중 딥 코팅 및 스프레이 코팅과 같은 슬러리 기반 습식 코팅 공정은 대량 생산에 적용하기 용이하다는 장점이 있다. 그러나 자석의 특정 표면에만 확산원을 정밀하게 코팅하기 어렵고, 슬러리 기반 습식 코팅 공정은 글로브 박스 내에서의 분위기 제어가 어려워 코팅 과정 중 자석 표면 및 확산원의 산화를 완벽히 억제하는 데 한계가 있으며, 불필요한 확산원 소모와 슬러리 폐기물이 발생할 수 있다는 한계가 있다[9,13]. 특히 고가의 중희토 확산원을 사용하는 경우, 이러한 확산원 손실은 공정 비용 증가로 직접 이어질 수 있다.

반면에 분말 기반 건식 코팅 공정은 원하는 자석 표면에 필요한 양의 확산원을 선택적으로 코팅할 수 있고 슬러리 기반 습식 코팅 공정을 거치지 않기 때문에 확산원의 손실을 줄일 수 있다는 장점이 있다. 또한 용매를 사용하지 않으므로 건조 및 폐액 처리 공정을 단순화할 수 있고, 진공 또는 불활성 분위기 제어가 용이하여 확산원의 산화 위험을 낮출 수 있다. 추가로 바인더를 함께 적용하면 자석 표면과 분말형 확산원 사이의 접

착력을 향상시키고 균일한 코팅층을 형성할 수 있다[16-18].

따라서 본 연구에서는 Nd-Fe-B 소결자석의 GBDP에서 확산원 사용 효율을 높이고 공정을 단순화하기 위한 방법으로, 분말형 확산원을 이용한 스탬프 코팅 공정을 제안하였다. 스탬프 코팅은 바인더가 코팅된 자석 표면을 분말형 확산원에 직접 접촉시켜 원하는 표면에 선택적으로 확산원을 부착하는 방식이다. 따라서 본 연구에서는 Nd-Fe-B 소결자석의 GBDP에서 확산원 사용 효율을 높이고 공정을 단순화하기 위한 방법으로, 분말형 확산원을 이용한 스탬프 코팅 공정을 적용하였다. 특히 기존 슬러리 기반 딥 코팅 공정과의 비교를 통해 코팅 방식이 GBD 자석의 H_{cj} , B_r , $(BH)_{max}$ 향상을 포함하여 자기특성을 종합적으로 평가하였다. 이를 바탕으로 스탬프 코팅 공정이 선택적 표면 코팅과 확산원 손실 저감을 동시에 구현할 수 있는 실용적인 GBDP 코팅 전략임을 검토하였다.

II. 실험 과정

본 연구에서는 상용 N52 등급의 HRE-free Nd-Fe-B 소결자석($12.5 \times 12.5 \times 5 \text{ mm}^3$)을 초기 자석(initial)으로 사용하였다. 본 연구에서 사용한 initial 자석의 조성은 $Nd_{21.29}Pr_{6.03}Fe_{70.69}B_{0.94}Co_{0.44}M_{bal}$ ($M = Cu, Al, Zn, Ga$) (wt.%)이다. GBD 확산원은 TbH_x 을 사용하였다. TbH_x 은 induction melting 후 melt spinning을 통해 리본 형태로 제작하였으며, 이후 H_2 및 Ar 분위기에서 수소화 처리와 hand milling을 거쳐 미세 분말로 분쇄하였다. 제조된 분말은 Ar 분위기에서 $53 \mu\text{m}$ sieve를 사용하여 sieving을 진행하였다. 스탬프 코팅은 initial 자석의 상부 및 하부면, 즉 c-축에 수직한 면에 시판되는 액상 수용성 PVA 바인더(P.V.A glue, Hanyang Corporation Co., Korea)를 코팅한 후, 분말형 확산원 위에 자석을 수직으로 스탬핑하는 방식으로 수행하였다. 확산원 분말의 조밀한 표면 밀착을 유도하기 위해 스탬핑 시 약 15 kPa의 일정한 접촉 압력을 인가하였다. 스탬핑 공정은 상부 및 하부면에 각각 1회씩 진행되었으며, 확산원 코팅량은 각 면당 0.5 wt.%씩 총 1.0 wt.%가 되도록 제어하여 코팅하였다(Fig. 1(a)). 비교를 위한 딥 코팅은 분말형 확산원과 무수 에탄올을 1:4의 질량비로 혼합한 슬러리를 이용하여 수행하였으며, 선택 면 딥 코팅 자석(dip-2)은 확산원이 자석의 상부 및 하부면에만 코팅되도록 측면을 Kapton tape로 마스킹한 후 딥 코팅을 수행하였다. 전체 면 딥 코팅 자석(dip-6)은 마스킹 없이 자석의 모든 면에 확산원이 코팅되도록 제조하였다. 모든 딥 코팅 자석의 확산원 코팅량은 1 wt.%로 동일하게 조절하였다(Fig. 1(b)). 또한, initial 자석과 각 코팅 조건으로 제조된 자석의 표면 상태를 외관 이미지를 통해 비교하였다. 스탬프 코팅 자석(stp-2)은 상부 및 하부면에 분말형 확산원이 선택적으로 코팅된

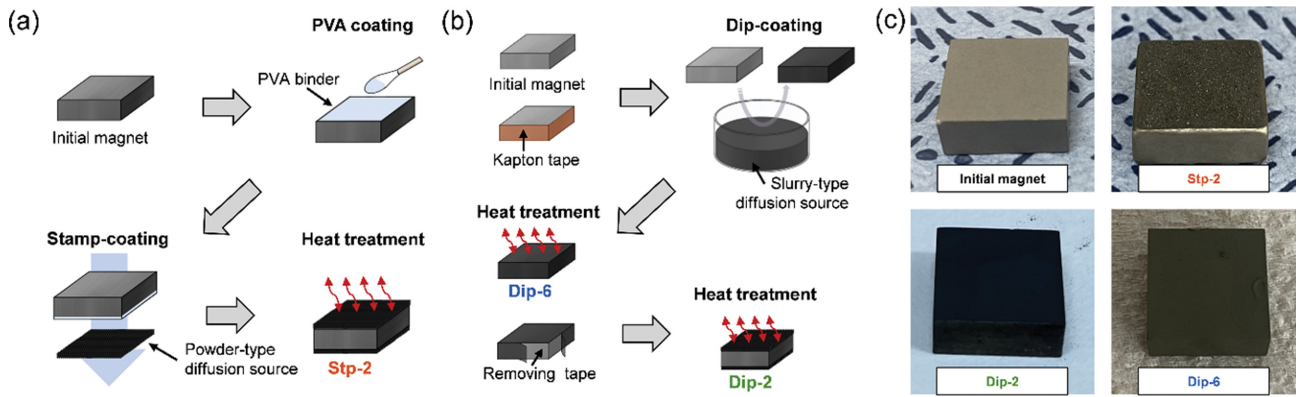


Fig. 1. (Color online) Schematic of diffusion source coating processes for the grain boundary diffusion of Nd-Fe-B magnets: (a) stp-2 coating and (b) dip-2, dip-6 coatings. (c) Representative photographs of the initial magnet and GBD magnets prepared by stp-2 coating, dip-2 coating, and dip-6 coating.

상태를 보였으며, 딥 코팅 자석은 코팅 조건에 따른 표면 상태 차이를 나타냈다(Fig. 1(c)). 본 연구에 사용된 자석의 규격($12.5 \times 12.5 \times 5 \text{ mm}^3$)을 기준으로 1.0 wt.%의 확산원을 상부 및 하부 2면에 코팅할 경우, 단위면적당 코팅량은 약 18.56 mg/cm^2 이다. stp-2와 dip-2 GBD 자석 모두 동일한 단위면적당 질량(18.56 mg/cm^2)이 코팅되었음에도 불구하고, 거시적 관찰 시 스탬프 코팅 표면의 코팅층 두께가 딥 코팅 대비 확연히 얇고 조밀하게 형성됨을 확인하였다. 이는 스탬프 코팅 공정에 의해 분말 간 공극이 감소하여 코팅층의 밀도가 크게 증가하였음을 시사한다. 코팅된 자석은 850°C 에서 6시간 동안 진공 분위기(10^{-6} Torr)에서 GBD한 후, 450°C 에서 3시간 동안 후열처리하였다. 자기특성은 상온에서 BH hysteresis-loop tracer(Permagraph C-300, Magnet-Physik)를 이용하여 측정하였으며, 열적 안정성은 $25\sim 200^\circ\text{C}$ 범위에서 측정하였다. 미세구조 및 원소 분포는 SEM(SU8220, Hitachi)과 FE-EPMA(JAX8530F, JEOL)를 이용하여 분석하였다.

III. 결과 및 고찰

GBDP에서 코팅 방식이 Nd-Fe-B 소결자석의 자기특성 향상에 미치는 영향을 비교하기 위해서, 동일한 TbH_x 확산원 코팅량(1 wt.%) 조건에서 스탬프 코팅 및 딥 코팅을 각각 적용하였다. 각 코팅 조건은 앞서 제시한 바와 같이 c-축과 평행한 면의 코팅 여부와 코팅 방식에 따라 구분하였다(Fig. 1).

Fig. 2(b)는 각 코팅 방식으로 제조된 GBD 자석의 B_r , H_{cj} , $(BH)_{\max}$ 및 H_k/H_{cj} 와 같은 다양한 자기특성을 비교한 결과이다. initial 자석의 B_r 은 14.30 kG 였으며, GBD 처리 후 B_r 은 stp-2, dip-2 및 dip-6 GBD 자석의 B_r 은 각각 14.00 , 13.97 및 13.90 kG 로 감소하였다. 그러나 코팅 방식에 따른 B_r 차이는 크지 않기 때문에, 코팅 방식에 따른 B_r 변화에 미치

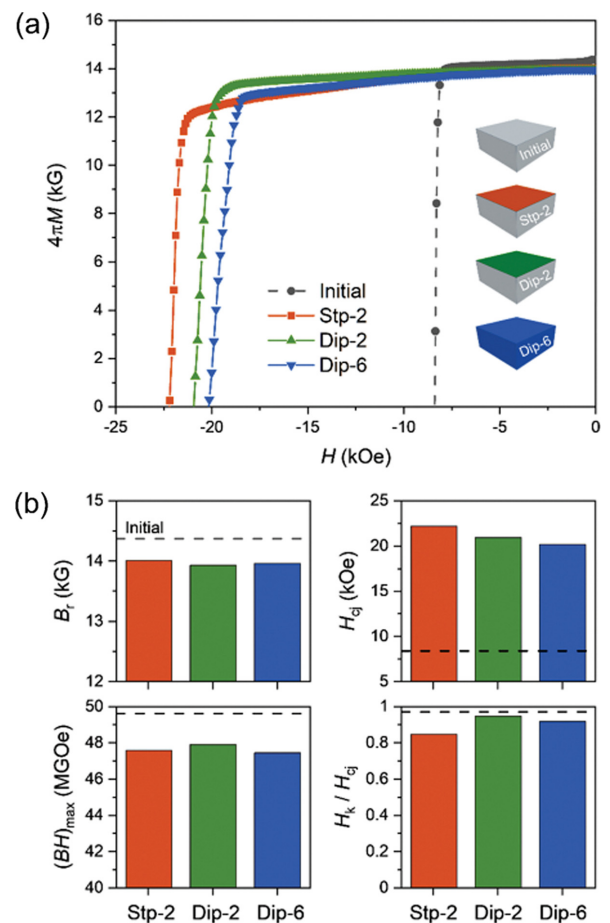


Fig. 2. (Color online) Magnetic properties of TbH_x GBD Nd-Fe-B sintered magnets depending on the coating method: (a) demagnetization curves of the initial magnet and GBD magnets prepared by different coating methods and (b) variations in B_r , H_{cj} , $(BH)_{\max}$, and H_k/H_{cj} . The dashed lines indicate the magnetic properties of the initial magnet. Stp-2, dip-2, and dip-6 denote stamp coated magnets on the top and bottom surfaces, selectively dip-coated magnets on the top and bottom surfaces and fully dip-coated magnets on all surfaces, respectively.

는 영향은 제한적인 것으로 보인다. 반면 H_{cj} 는 initial 자석의 8.47 kOe에서 GBD 처리 후 stp-2, dip-2 및 dip-6 GBD 자석에서 각각 22.02, 20.94 및 20.17 kOe로 크게 증가하였다. 특히 동일한 dip-coating 조건에서 비교할 경우, 상부 및 하부면에 선택적으로 코팅된 dip-2 GBD 자석이 전체 면에 코팅된 dip-6 GBD 자석보다 더 높은 H_{cj} 를 나타냈다. 이는 동일한 확산원 코팅량 조건에서 확산원을 자석의 여섯 면 전체에 분산 코팅하는 것보다, c-축에 수직인 상부 및 하부면에 집중적으로 코팅하는 것이 H_{cj} 향상에 더 효과적임을 보여준다[9]. 이는 Nd-Fe-B 매트릭스 내에서 HRE 확산에 대한 이동 거리와 에너지 장벽이 c-축 방향보다 c-축에 수직인 방향에서 더 작기 때문이다[10]. 또한, 6개 면 전체를 코팅한 dip-6 GBD 자석은 한정된 1.0 wt.%의 총 확산원이 모든 면에 분산적으로 코팅되므로, 확산에 유리한 c-축 수직 방향(상부 및 하부면)에 도포되는 절대적인 표면 농도가 2개 면에만 집중적으로 코팅을 진행한 경우(dip-2 및 stp-2 GBD 자석) 대비 감소하게 된다. 이로 인해 자석 H_{cj} 증가량이 상대적으로 감소한 것으로 분석된다[9]. 또한 stp-2 GBD 자석은 동일하게 상부 및 하부면에 코팅된 dip-2 GBD 자석보다 더 높은 H_{cj} 를 나타냈는데, 이는 PVA 바인더에 의해 분말형 확산원이 자석 표면에 조밀하고 균일하게 분포함으로써 Tb 확산이 효과적으로 이루어진 결과로 해석된다[17,18]. 동일한 확산원 양 (1.0 wt.%) 조건에서 보인 H_{cj} 증가는 코팅층의 비교적 균일한 형성과 밀접하게 관련된 것으로 판단된다. 이는 PVA 바인더와 가압 공정에 의해 분말형 확산원이 자석 표면에 국부적인 응집이나 손실 없이 조밀하게 코팅되어, 표면 전체에서 입계확산 반응이 균일하고 효율적으로 발생했음을 시사한다. 코팅층의 표면 거칠기를 포함한 정량적인 특성 평가는 향후 추가적인 연구를 통해 심도 있게 다룰 예정이다.

Fig. 2(a)의 감자곡선에서도 코팅 방식에 따른 H_{cj} 차이가 명확하게 나타났다. 모든 GBD 자석은 initial 자석보다 높은 H_{cj} 를 보였으며, stp-2 GBD 자석에서 가장 큰 H_{cj} 향상이 확인되었다. 이는 상부 및 하부면 선택 코팅에 따른 확산 효율 향상과 함께, PVA 바인더에 의해 분말형 확산원이 자석 표면에 보다 조밀하게 유지되면서 Tb 확산이 효과적으로 진행된 결과로 해석된다.

다만 stp-2 GBD 자석은 가장 높은 H_{cj} 를 보였음에도, $(BH)_{max}$ 와 H_k/H_{cj} 는 dip-2 GBD 자석보다 낮았다. dip-2 GBD 자석은 $(BH)_{max} = 47.89$ MGOe 및 $H_k/H_{cj} = 0.94$ 로 가장 우수한 H_k/H_{cj} 를 보였으며, stp-2 GBD 자석은 $(BH)_{max} = 47.57$ MGOe 및 $H_k/H_{cj} = 0.85$ 를 나타냈다. 한편, stp-2 GBD 자석은 가장 높은 H_{cj} 를 보였으나, H_k/H_{cj} 는 dip-2 GBD 자석 보다 낮게 나타났다. 이는 스탬프 코팅이 Tb 확산을 촉진하여 보자력 향상에는 유리하게 작용하지만, 자석 내

확산 정도의 불균일성에 의해 H_k/H_{cj} 가 저하될 수 있음을 시사한다[19]. 스탬프 코팅 공정은 PVA 바인더와 가압을 통해 확산원을 자석 표면에 조밀하게 밀착시켜 표면 부근의 집중적인 입계확산을 유도한다. 그러나 제한된 총 확산원(1.0 wt.%) 조건에서 이러한 표면 집중 반응은 자석 중심부로 향하는 확산 농도 구배를 가파르게 만들어, 표면과 내부 영역 간의 Tb-rich shell 두께 및 조성 편차를 더 코팅보다 오히려 심화시킬 수 있다. 깊이 방향에 따른 이러한 조직적 불균일성은 자화 반전 거동의 불균일성이 가중시켜 각형비를 저하된 것으로 해석된다. 따라서 스탬프 코팅 공정에서는 높은 H_{cj} 뿐만 아니라 $(BH)_{max}$ 와 H_k/H_{cj} 를 함께 확보하기 위해 코팅층 균일성 및 깊이 방향 확산 분포 제어가 함께 고려되어야 한다.

상온에서의 자기특성에 이어서, 코팅 방식에 따른 온도 안정성을 비교하기 위해 25~200 °C 범위에서 B_r 및 H_{cj} 의 온도 의존성을 평가하였다(Fig. 3). 모든 자석에서 온도가 증가함에 따라 B_r 은 점진적으로 감소하였으며, B_r 의 온도계수 α 는 initial 자

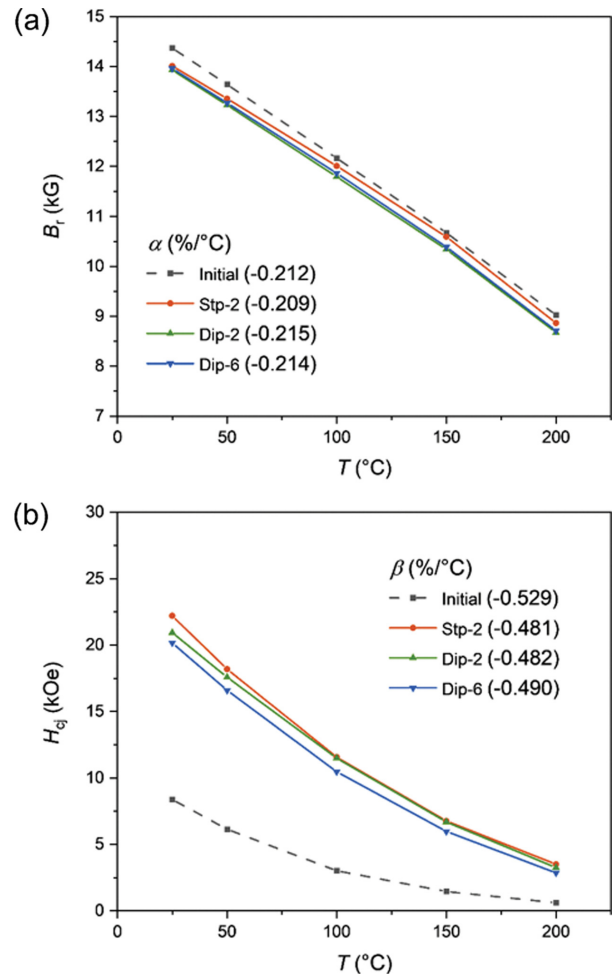


Fig. 3. (Color online) Temperature dependence of (a) B_r and (b) H_{cj} for the initial and TbH_x GBD Nd-Fe-B magnets prepared by different coating methods.

석, stp-2, dip-2 및 dip-6 GBD 자석에서 각각 -0.212 , -0.209 , -0.215 및 $-0.214\%/^{\circ}\text{C}$ 로 나타났다(Fig. 3(a)). 각 자석의 α 값은 유사한 수준을 나타냈으며, 이를 통해 코팅 방식이 B_r 의 온도 안정성에 미치는 영향은 제한적임을 확인하였다.

Fig. 3(b)에 나타난 바와 같이, 온도 증가에 따라 모든 자석의 H_{cj} 는 감소하는 경향을 보였다. 그러나 GBD 처리된 자석은 전 온도 범위에서 initial 자석보다 높은 H_{cj} 를 유지하였다. H_{cj} 의 온도계수 β 는 initial 자석에서 $-0.529\%/^{\circ}\text{C}$ 였으며, stp-2, dip-2 및 dip-6 GBD 자석에서는 각각 -0.481 , -0.482 및 $-0.490\%/^{\circ}\text{C}$ 로 감소하였다. 이는 GBD 처리에 의해 H_{cj} 의 열적 안정성이 향상되었음을 의미한다. 특히 stp-2 GBD 자석은 가장 높은 상온 H_{cj} 를 나타냈을 뿐만 아니라 dip-2 GBD 자석과 유사한 β 값을 보여, 고온에서도 안정적인 보자력 유지 특성을 보였다. 따라서 스템프 코팅 공정은 동일한 확산 원 사용량 조건에서 높은 H_{cj} 향상과 우수한 열적 안정성을 동시에 확보할 수 있는 유효한 코팅 방법임을 확인하였다.

Stp-2 GBD 자석에서 깊이에 따른 Tb의 확산 거동을 확인하기 위해 EPMA mapping 및 line scan 분석을 수행하였다(Fig. 4). Fig. 4(a)의 EPMA mapping 결과에서 Tb는 자석 표면 영역에서 상대적으로 높은 농도로 분포하였으며, 내부로 갈수록 점진적으로 감소하는 경향을 보였다. 이는 스템프 코팅을 통해 자석 표면에 도입된 Tb이 GBD 과정에서 표면으로부터 내부 방향으로 확산되었음을 보여준다. 반면 Nd 및 Pr은 Tb와 같은 뚜렷한 농도 차이를 보이지 않았으며, 비교적 완전한 분포를 유지하였다.

Fig. 4(b)의 line scan 결과에서도 이러한 경향이 확인된다. Tb 농도는 표면에서 가장 높게 나타난 후 깊이가 증가함에 따라 지속적으로 감소하였으며, 이를 통해 stp-2 GBD 자석 내부에 깊이 방향의 Tb 농도 차이가 형성되었음을 확인할 수 있다. 한편 stp-2 GBD 자석의 Nd 및 Pr 농도는 initial 자석에 비해 다소 낮은 차이를 나타냈다. 이는 Tb이 표면으로부터 내부로 확산되는 과정에서 기존 RE-rich 영역 또는 결정립 표면 주변 영역의 Nd 및 Pr을 치환하였음을 시사한다.

이러한 Tb 확산 거동을 미세구조 수준에서 보다 자세히 확인하기 위해, 서로 다른 깊이에서 stp-2 GBD 자석의 BSE 이미지 및 EPMA mapping 분석을 수행하였다(Fig. 5). 자석 표면으로부터 약 $50\text{ }\mu\text{m}$ 깊이에서는 Tb이 입계 및 결정립 표면을 따라 상대적으로 뚜렷하게 분포하였다(Fig. 5(a)). 특히 입계를 따라 연속적으로 나타나는 Tb 분포는, 자석 표면 영역에서 Tb이 결정립 내부보다 입계 및 결정립 표면 영역에 우선적으로 분포함을 보여준다. 이는 GBD 과정에서 Tb이 주상 내부 전체로 균일하게 확산되보다는, 입계상을 주요 확산 경로로 하여 결정립 표면 주변에 농축되는 거동을 나타낸다. 이러한 Tb-rich shell 또는 Tb-rich 영역의 형성은

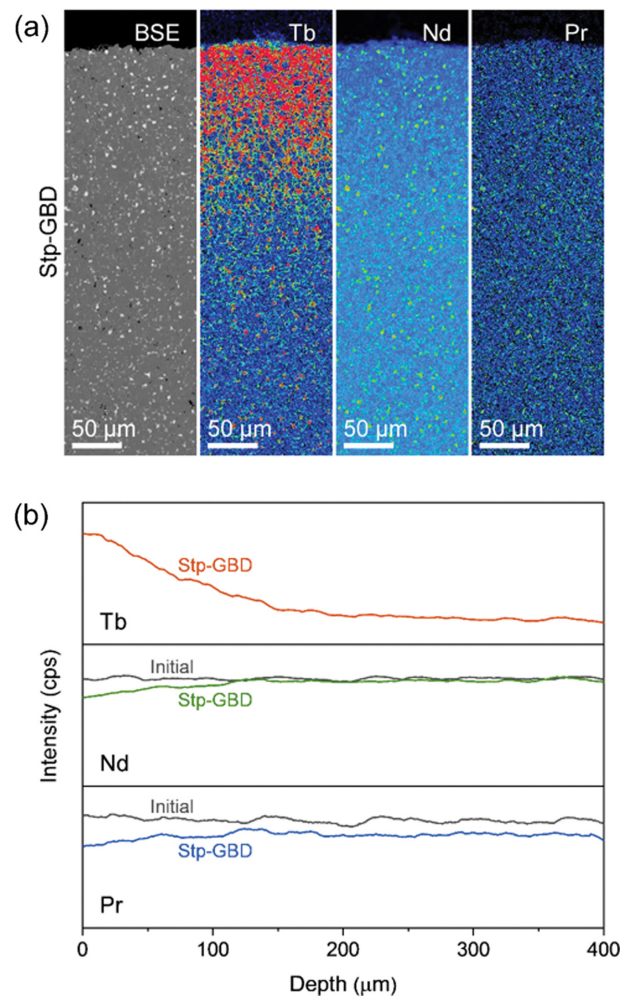


Fig. 4. (Color online) (a) BSE image and EPMA elemental mapping images of the stp-2 GBD magnet. (b) Corresponding Tb, Nd, and Pr intensity profiles of the initial and stp-2 GBD magnets from the surface to a depth of $400\text{ }\mu\text{m}$.

$\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 결정립 표면의 H_a 를 향상시키며, H_{cj} 향상과 직접적으로 관련되는 미세구조적 특징으로 볼 수 있다.

이와 같은 Tb-rich shell의 형성은 $\text{RE}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 상의 형성에너지 차이와 관련된다. 기존 보고에 따르면 $\text{Tb}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 의 형성에너지는 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 및 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 보다 낮기 때문에 GBD 과정에서 Tb이 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 결정립 표면의 Nd 또는 Pr을 부분적으로 치환하며 Tb-rich shell을 형성하는 것이 안정하다[20]. 따라서 Fig. 5(a)에서 관찰된 표면 부근의 Tb-rich 분포는 단순한 농도 증가가 아니라, Tb 확산에 따른 $\text{Tb}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ shell 형성이 반영된 결과로 해석된다. 이러한 Tb-rich shell 형성은 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 결정립 표면의 H_a 향상과 관련되며, 앞서 확인된 stp-2 GBD 자석의 H_{cj} 향상에 기여한 것으로 판단된다.

반면, 자석 표면으로부터 약 $1,500\text{ }\mu\text{m}$ 깊이에서는 Tb 분포가 전반적으로 약하게 나타났으나, 결정립 표면을 따라 얇은 Tb-rich shell이 형성된 것을 확인할 수 있다(Fig. 5(b)).

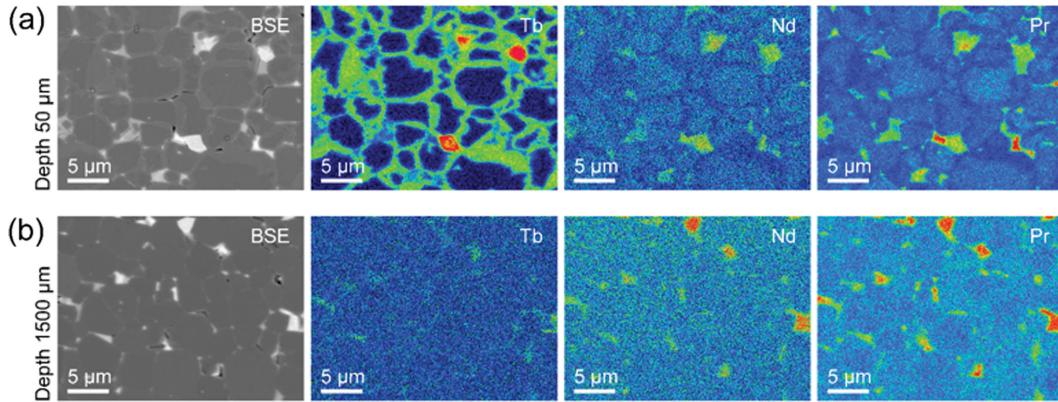


Fig. 5. (Color online) BSE images and EPMA elemental mapping (Tb, Nd, and Pr) of the stp-2 GBD magnet at depths of (a) 50 μm and (b) 1,500 μm from the magnet surface. The same color scale was used for each element.

이는 자석 내부로 갈수록 Tb 확산량이 감소함에 따라 shell의 두께와 연속성이 감소하지만, Tb 확산은 일정 깊이까지 진행되었음을 의미한다. 이러한 결과는 자석 내부로 갈수록 Tb 농도가 점진적으로 감소하는 Fig. 4의 line scan 결과와 일치한다. 즉, 형성에너지 측면에서 Tb-rich shell 형성은 유리하더라도, 실제 Tb-rich shell 형성 정도는 표면으로부터 확산되는 Tb 농도와 확산 깊이에 의해 제한된다. 또한 Nd 및 Pr은 50 μm 와 1,500 μm 깊이에서 비교적 유사한 분포를 유지하였으며, 이는 Tb 확산이 자석 전체의 주상 조성을 크게 변화시키기보다는 표면부의 입계 및 결정립 표면 영역을 중심으로 국부적으로 진행되었음을 보여준다.

IV. 결 론

본 연구에서는 Nd-Fe-B 소결자석의 입계확산공정에 적용 가능한 코팅 방법으로 분말형 확산원을 이용한 스템프 코팅 공정을 제안하였다. 스템프 코팅은 자화 방향에 수직인 상부 및 하부면에 확산원을 선택적으로 도포함으로써, 동일한 확산원 사용량 조건에서 기존 딥 코팅 대비 향상된 보자력 특성을 나타냈다. 또한 EPMA 분석을 통해 Tb이 자석 표면으로부터 내부로 확산되며, 자석 표면 영역의 입계 영역에 우선적으로 분포하는 거동이 확인되었다. 이러한 Tb 확산 거동은 보자력 향상과 밀접한 관련이 있는 것으로 판단된다. 따라서 분말 기반 스템프 코팅 공정은 확산원 손실을 줄이면서 선택적 표면 코팅을 구현할 수 있는 효과적인 GBDP 코팅 방법이며, Nd-Fe-B 소결자석의 보자력 및 열적 안정성 향상에 유용한 공정 전략으로 적용될 수 있다.

감사의 글

본 연구는 DGIST R&D Program(26-ET-02)과 과학기술정

보통신부(MSIT)의 재원으로 한국연구재단(NRF)의 지원을 받아 수행되었습니다(RS-2021-NR060108).

References

- [1] O. Gutfleisch, M. A. Willard, E. Brück, C. H. Chen, S. G. Sankar, and J. P. Liu, *Advanced Materials* **23**, 821 (2011).
- [2] M. Sagawa, S. Fujimura, N. Togawa, H. Yamamoto, and Y. Matsuura, *Journal of Applied Physics* **55**, 2083 (1984).
- [3] K. Hono and H. Sepehri-Amin, *Scripta Materialia* **151**, 6 (2018).
- [4] S. Sugimoto, *Journal of Physics D: Applied Physics* **44**, 064001 (2011).
- [5] K. Hioki, *Science and Technology of Advanced Materials* **22**, 72 (2021).
- [6] H. Nakamura, K. Hirota, M. Shima, T. Minowa, and M. Honshima, *IEEE Transactions on Magnetics* **41**, 3844 (2005).
- [7] S. Hirose, Y. Matsuura, H. Yamamoto, S. Fujimura, M. Sagawa, and H. Yamauchi, *Journal of Applied Physics* **59**, 873 (1986).
- [8] H. Sepehri-Amin, T. Ohkubo, and K. Hono, *Acta Materialia* **61**, 1982 (2013).
- [9] J. Kim, Y. R. Jang, D. H. Lee, S. C. Kim, J.-Y. Beak, D. Kim, S. H. Lee, S. Kim, J. W. Roh, W. Lee, D. Do, D. H. Kim, and J. Kim, *Materials Today Communications* **38**, 108004 (2024).
- [10] T. H. Kim, S. R. Lee, S. J. Yun, S. H. Lim, H. J. Kim, M. W. Lee, and T. S. Jang, *Acta Materialia* **112**, 59 (2016).
- [11] S. Shen, M. Yang, S. Zhong, H. Wang, S. Luo, J. Li, X. Yu, S. U. Rehman, I. Bulyk, and H. Xie, *Journal of Rare Earths* **43**, 766 (2025).
- [12] J. He, J. Cao, Z. Yu, W. Song, H. Yu, M. Hussain, and Z. Liu, *Metals* **11**, 1434 (2021).
- [13] T. Zhou, R. Liu, P. Qu, G. Xie, M. Li, and Z. Zhong, *Journal of Materials Research and Technology* **20**, 1391 (2022).
- [14] W. Li, Q. Zhang, Q. Zhu, S. Xiao, C. Xu, L. Yang, B. Zheng, S. Mao, and Z. Song, *Scripta Materialia* **163**, 40 (2019).

- [15] X. J. Cao, L. Chen, S. Guo, X. B. Li, P. P. Yi, A. R. Yan, and G. L. Yan, *Journal of Alloys and Compounds* **631**, 315 (2015).
- [16] J. He, W. Song, X. Liu, H. Yu, X. Zhong, and Z. Liu, *Applied Physics Letters* **120**, 042405 (2022).
- [17] M. Ji, W. Liu, Z. Wang, H. Wu, R. Du, Y. Li, D. Zhang, X. Yi, Y. Liu, S. Zha, and Y. Ming, *Journal of Materials Research and Technology* **28**, 3068 (2024).
- [18] H. J. Woo and J. H. Kim, *POLYMER-KOREA* **42**, 52 (2018).
- [19] Y. Zhang, T. Ma, M. Yan, J. Jin, X. Liu, F. Xu, X. Miao, and C. Liu, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **487**, 165355 (2019).
- [20] J. He, B. Zhou, X. Liao, and Z. Liu, *Journal of Materials Research and Technology* **28**, 2535 (2024).