



## NdFeB계 자석의 재사용을 위한 탈자 및 착자 연구

김병준<sup>a</sup>, 김용성<sup>b\*</sup>, 주기태<sup>b</sup>, 김준현<sup>b</sup>, 박익근<sup>b</sup>, 이재용<sup>c</sup>, 양수원<sup>c</sup>

## Study on Demagnetization and Magnetization to Reuse NdFeB-based Magnets

Byeong Jun Kim<sup>a</sup>, Young Sung Kim<sup>b\*</sup>, Gi Tae Joo<sup>b</sup>, Joon Hyun Kim<sup>b</sup>, Ik Geun Park<sup>b</sup>,  
Jae Yong Lee<sup>c</sup>, Su Won Yang<sup>c</sup><sup>a</sup> Graduate School of NIDE Fusing Technology, Seoul National University of Science & Technology<sup>b</sup> Seoul Tech NDT Research Center, Seoul National University of Science & Technology<sup>c</sup> Corporate R&D Center, Hanchung R.F.

## ARTICLE INFO

## Article history:

Received	25	June	2021
Revised	6	July	2021
Accepted	15	July	2021

## Keywords:

Reusable  
Demagnetization  
Remagnetization  
NdFeB magnet  
Batch type heat treatment

## ABSTRACT

In this study, batch-type demagnetization heat-treatment conditions were studied via computational simulations to reuse waste NdFeB-based permanent magnets. At room temperature, the time delay for the Nd magnet specimen to reach the target temperature in the furnace. There was a delay in the time required for the temperature of the specimen and the furnace temperature to reach the target temperature. This delay time was observed to decrease from 27 min to 12 min as the heat treatment temperature increased from 100°C to 400°C. The magnetic fluxes of the Nd magnets decreased with an increase in the heat treatment temperatures, and the magnets demagnetized at 300°C. The completely demagnetized magnet was fully remagnetized when more than 6000 J of magnetizing energy was applied. Further, by analyzing the surface soundness of the demagnetized Nd magnet, it was confirmed that the magnet could be reused.

## 1. 서론

## 1.1 연구배경

NdFeB계 희토류 영구자석(이하 Nd자석)은 높은 자속밀도를 갖고 있어 다양한 산업 분야에서 널리 쓰이고 있는 소재이다. 반도체나 스마트폰과 같은 첨단산업뿐만 아니라 냉장고, 세탁기 같은 대형 가전제품의 모터로 사용되며 특히 전기자동차 모터의 핵심부품으로 사용된다. 최근에는 전기자동차에 대한 관심과 수요가 높아지면서 주요 부품인 Nd자석의 수요도 덩달아 늘어나고 있는 추세이다.

하지만, Nd자석에 사용되는 희토류 금속은 현재 전량 중국을 포함한 해외에서 수입하고 있어 자원의존성이 높다. 이 때문에 국내

에서는 Nd 저감 기술이나 Nd자석 스크랩의 재자원화 연구가 이루어지고 있다. 상대적으로 저가인 Ce 또는 La를 Nd 대신 사용하거나, 희토류를 대체한 Fe-N계, Fe-Ni계, Cu를 대량으로 사용하는 등의 연구가 이루어지고 있다<sup>[1]</sup>. 그러나, 대부분 가격 경쟁력이나 성능이 떨어지는 문제로 당장의 상용화는 어려운 전망이다. Nd자석의 재자원화의 경우 회수한 Nd자석 스크랩을 파분쇄하고 강산으로 용해하여 용매추출법으로 정제하는 기술이 연구되고 있다<sup>[2]</sup>. 하지만, 이렇게 재원료화한 후에 성형, 소결 등의 공정을 거쳐 Nd자석으로 재제조하기까지 많은 시간과 비용이 소모되며 공정 폐수로 인한 환경오염 등의 문제점도 있다. 또한, 회수된 Nd자석 스크랩을 자성을 완전히 없애는 탈자 공정을 거친 후, 이를 원료로 다시

\* Corresponding author. Tel.: +82-2-970-6804

E-mail address: youngsk@seoultech.ac.kr (Young Sung Kim).

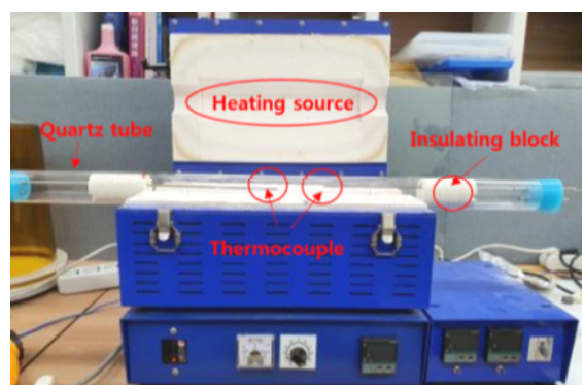
Nd자석을 제조하였을 때 탈자 온도에 따라 자기적인 특성이 새 Nd자석에 비해 떨어진다는 연구 결과가 있다<sup>[3]</sup>. 통상 영구자석의 회수시 작업 편의성을 위하여 탈자를 하는 경우가 대부분인데, 특히 Nd자석의 경우 높은 자속밀도 때문에 자석끼리 부착되거나 현장의 금속 설비 등에 부착되어 이를 분리하기 위한 불필요한 노동력이 소모되는 등의 문제로 반드시 탈자공정을 거쳐야한다. 탈자에는 크게 전기적인 탈자 방법과 열을 이용한 탈자 방법 2가지가 알려져 있는데, 전자는 설비 및 전기 등의 비용이 비싸서 수거업체에서 사용하기 어렵다. 이 때문에 열을 이용한 탈자 방식을 주로 사용하는데, 전기로에서 고온 열처리를 하거나 토치로 직접 가열하는 방식을 사용한다. 보통 Nd자석의 자성을 잃는 큐리 온도는 312°C 전후로 알려져 있다<sup>[1]</sup>. 하지만, 현장에서는 그보다 높은 고온에서 탈자를 수행한다. Nd자석은 내부에 존재하는 Nd-rich상 때문에 산화에 취약해서 이를 방지하고자 표면에 도금층을 형성하는데, 고온 탈자시에 이 도금층이 손상되어 표면 변색 또는 Nd의 산화로 인한 자석의 자기적 특성이 열화되기 때문에 현재의 탈자 방식은 높은 에너지 소모와 온도제어를 위한 많은 공정시간 소요뿐만 아니라 자석의 자기적 성능을 떨어뜨려 재활용 측면에서 효율성이 낮다고 판단된다<sup>[4]</sup>. 최근 복염침전법을 이용한 Nd 회수방법이나 분쇄한 Nd 자석스크랩에 첨가제를 넣어 재활용 Nd자석을 만드는 등 다양한 Nd 폐자석의 회수 및 자원 재사용을 위한 기술이 연구되고 있어 현장에서 체계적인 탈자 열처리 기술 도입이 절실한 상황이다<sup>[2]</sup>. 따라서 열처리 시, 시편을 장입하고 전기로를 상온에서부터 서서히 목표 온도까지 가열하는 batch식 및 전기로 내부를 목표 온도까지 미리가열한 후 시편을 장입하여 열처리하는 semi-batch식 열처리 조건의 적용이 검토되고 있다<sup>[5]</sup>.

그러므로 본 연구에서는 Nd자석의 효율적인 열처리와 재사용을 목적으로 재활용 비용을 낮추고, Nd자석의 품질을 유지하기 위한 탈자 열처리 공정 최적화 연구를 하였다. 전산모사를 통하여 탈자 열처리 시 Nd자석 시편의 온도 변화를 정확히 확인하여 탈자 열처리 조건을 조사하고, 탈자 열처리 시 등급별 Nd자석의 자기적인 특성 변화를 연구하였다. 또한 회수자석의 재사용을 위한 탈자 열처리 시 Nd자석 표면의 열영향을 검토하고, 탈자된 자석을 착자시 자력의 회복정도를 연구하였다.

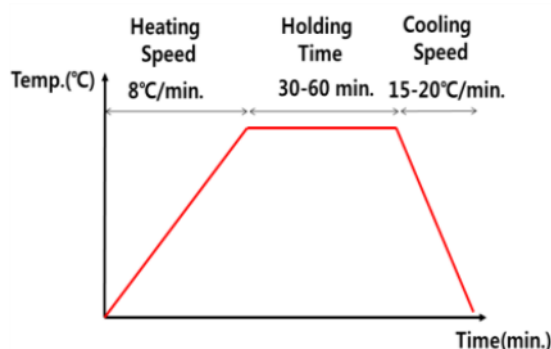
## 2. 실험 방법

### 2.1 시료 성분 및 표면분석

Nd자석은 사용하는 온도에 따라 등급이 나뉘며 고온에서 사용하는 등급일수록 보자력 값을 높이기 위해 통상 Dy, Tb의 함량이 높은 것으로 알려져 있다<sup>[1,6]</sup>. 본 실험에서 사용된 Nd자석 시편인 N45H, N35UH, N33AH는 서로 다른 등급의 상업적 용도로 통상



(a) Quartz tube furnace



(b) Heat treatment pattern

**Fig. 1 Quartz tube furnace and heat treatment pattern for Nd magnet demagnetization heat treatment.**

에 사용되는 자석이다. H, UH, AH는 자석의 내열등급을 의미하며 Nd자석에서 45, 35, 33의 숫자는 MGOe 단위로 자석이 갖는 최대에너지적(BHmax)의 크기를 의미한다.

실험에 사용한 Nd자석들의 최대사용온도(max operating temperature)와 이들의 성분의 구성을 Table 1에 나타내었다. 구 성성분은 고분해능 주사전자현미경(high resolution field emissin scanning electron microscope : HRFESEM) 모델 SU8010에 부착된 에너지 분광분석기(energy dispersive x-ray spectroscopy: EDS)를 사용하여 분석하였다. 또한, 탈자열처리 온도에 따른 각 Nd 자석표면의 산화 정도를 확인하기 위해 광학현미경 및 전자현미경의 EDS 분석을 통해 Nd자석의 도금층 변색 및 산화여부를 확인하고자한다.

### 2.2 열처리 실험

열처리 설비는 Fig. 1(a)의 석영관로를 사용하였다. 로 내부의 정확한 온도를 확인하기 위해서 열원을 제어하기 위한 온도 센서 이외에 시편이 위치하는 지점 근처에 추가로 2개의 열전대센서를 설치하였다. 열처리 방법은 로 내부에서 시편을 장입하고 상온에서 열처리 목표 온도까지 일정한 승온 속도로 가열하여 목표 온도에 도달 하면 일정시간 열처리 후 냉각하는 공정인 batch식 열처리

**Table 1 Nd magnet composition and max operating temperature**

	Max operating temperature [°C]	Composition [wt%]						
		Nd	Pr	Fe	B	O	Tb	Dy
N45H	80	19.1	5.4	71.2	2.1	1.4	0	0.8
N35UH	180	20.6	6.5	67.2	1.5	2.2	1.3	0.7
N33AH	230	15.7	3.5	67.5	1.4	1.4	1.7	8.8

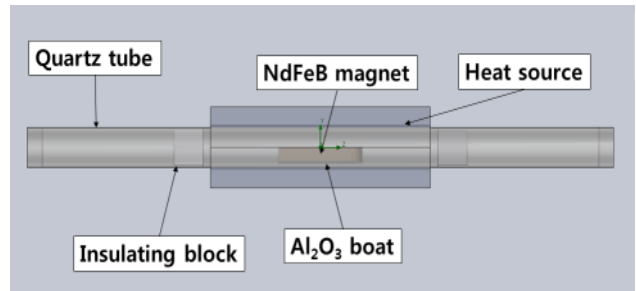
방법으로 진행하였다. 승온 속도는 8°C/min. 이고, 유지시간은 로 내부 온도가 목표 온도에 도달한 순간부터 측정하였다. 추가로 300°C 이상의 탈자 열처리 시 Nd자석 보호를 위한 도금층의 산화 특성을 확인하기 위해서 추가적으로 N<sub>2</sub> 분위기 열처리를 수행하였다. N<sub>2</sub> 분위기 열처리 시 투입되는 N<sub>2</sub> gas 속도는 2 L/min.이었다. Fig. 2에 열처리 패턴을 나타내었다. 이 때, 열처리 목표 온도와 로 내부의 실제 온도 편차는 ±2°C로 이내로 제어되었다. 열처리 유지시간이 끝나면, 석영관로의 전류 공급을 중단하고, 비열원부로 이동하여 로 내부 냉각부에서 공랭하였다.

**2.3 Batch식 열처리 시스템의 전산모사**

Nd계 강자성체의 탈자 열처리 시 통상적으로 적용할 수 있는 batch 식 열처리 시스템에 대한 전산모사를 검토하였다. 이 시스템은 로 내부에 시험편을 우선 장입하고 상온에서 일정속도로 가열하여 목표 온도에 도달한 후 일정시간을 유지하고 로 내부에서 전원을 끄고 상온까지 냉각하는 방식으로 설정하였다.

열처리 과정에서 로 내부의 분위기 온도는 전기로 양단에 설치된 2개의 열전대센서를 통해 측정하였다. 이때 열원에서 발생하는 열이 실제 자석 시편에서 온도의 변화를 직접 확인하는 것은 기술상 쉽지 않다. 이러한 문제점을 해결하기 위해 전산모사를 통하여 열처리 로 내부 분위기 온도 변화에 따른 자석 시편의 온도 변화 거동을 예측함으로써 탈자열처리 조건을 검토하고자 하였다.

본 연구에서 적용하는 자석의 형상 및 열처리 로 구조에 대한 전산모사를 위해서 사용한 해석프로그램으로 Solidworks premium 2020 SP 3.0을 사용하였다. 이때 주요 열해석을 위해서 열유체의 연속방정식, 열의 운동방정식 및 열전달방정식의 3가지 방정식을 사용하였다<sup>[7-9]</sup>. 사용된 열해석 모델의 개략적인 조건 및 구성을 Fig. 2에 나타내었다. 초기 온도는 20°C에서 시작하여 8°C/min.의 일정속도로 상승하고, 목표 온도 100~400°C까지 100°C 간격으로 도달한 후, 일정시간동안 온도 변화를 관찰하여 실제 측정된 자료를 기반으로 전산모사에 반영하여 수행하였다. 열원은 석영관과 맞닿아 있는 내화벽의 내벽 부분으로 한정했다. 전산모사 모델의 열전달에 사용된 열처리로의 각 구조의 부분별 부품, Nd계 자석의 재료들이 갖는 고유의 물성은 Table 2에 나타내었다.



**Fig. 2 Computer simulation model for heat flow analysis in furnace interior and Nd magnet specimen**

**Table 2 Material properties on furnace and Nd magnet**

	Specific heat [J/kg/k]	Thermal conductivity [W/m/K]	Density [kg/m <sup>3</sup> ]
Heat source	700	0.27	837
Quartz tube	2200	2	700
Insulating block	2300	1.4949	877.96
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Boat	3960	30	850
NdFeB magnet	7800	9	440

이때 로 내의 분위기 유체는 공기로 설정하였다.

**2.4 자기적 특성 분석**

Nd자석의 열처리 전후의 자속밀도와 착자 전후의 자속밀도를 측정하였다. 자속밀도 측정을 위해 (주)Kanetec 사의 Tesla meter TM-601 제품을 사용하였다. 자석의 착자방향 면에서 등간격으로 3 point의 자속을 측정하고 그 평균값을 측정값으로 하였다.

Nd자석의 착자는 (주)SCMI 사의 MCB-3530M 착자전원장치를 사용하였다. 착자기의 조건은 입력전압 AC 220 V, 최대 충전전압 DC 3500 V, 콘덴서 용량 3000 uF, 최대 방전전류 40 kA로써 전기에너지 용량은 18,375 J이다.

**3. 결과 및 고찰**

**3.1 Batch식 열처리 조건 및 전산모사**

열처리 로 내부에 시편을 장입한 후 열처리 목표 온도까지 일정한 승온 속도로 가열하는 batch식 열처리 공정에서 로 내부의 온도는 온도센서로 쉽게 측정이 가능하나, 시편의 실제 온도 변화를 측정하는 것은 어렵다. 따라서 열처리 조건에 따른 시편의 온도를 정확하게 예측하기 위해 전산모사를 진행하였다.

본 연구의 열처리 실험과 전산모사는 batch식 열처리 방식에 대

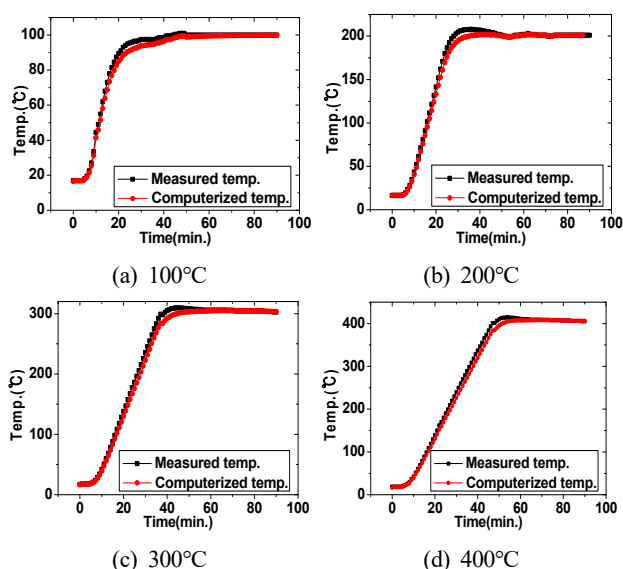


Fig. 3 In continuous heat treatment, the measured temperature and the computer simulation temperature inside the furnace over time at the set temperatures

해 진행하였다. 석영관로에 Nd자석을 장입한 후, 상온에서부터 100~400°C까지 100°C 간격으로 8°C/min.의 속도로 승온시켰다.

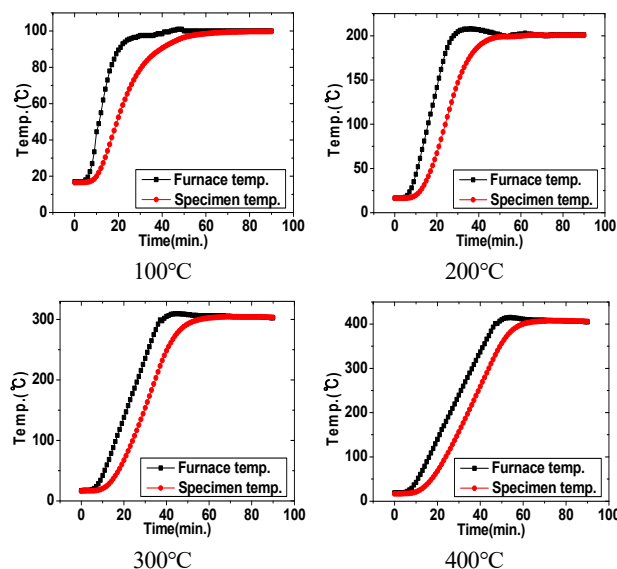
이때, 1분 간격으로 열처리로 내부의 시편 상부에 위치하는 열전대센서를 통해 석영관로 내부 온도를 측정하였으며, 이때의 Nd자석 시편의 온도를 예측하기 위한 전산모사의 자료로 활용하였다.

열처리 시 시간의 변화에 따른 열처리로 내부 온도의 전산모사한 결과와 실제 측정된 열처리로 내부 온도를 Fig. 3에 비교하여 나타내었다. 열전대센서로 측정된 로 내부의 실제온도와 전산모사를 통해 계산된 로 내부 온도의 변화 거동은 최고온도 부근에 접근해서 약간의 온도편차가 ±2% 이내로 발생한 것을 제외하면 모든 구간에서 실제 측정온도와 동일한 거동을 나타내었다. 이러한 온도편차가 발생한 이유는 열처리로의 전원제어부에서 공급되는 전원의 공급형태에 따라 실제 로에서 발생하는 헌팅(hunting)현상, 즉 설정온도값에 대하여 로 분위기의 온도가 일정하게 상하로 변동하는 현상으로 인한 것으로 판단된다. 열처리 온도가 증가할수록 실제온도와 전산모사 온도의 차이는 작아져 300°C 이상에서는 거의 일치하는 경향을 보였다.

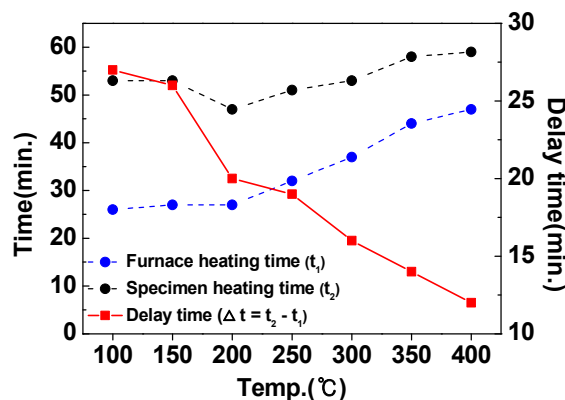
### 3.2 시편의 온도 변화 거동

Batch식 열처리 조건에 따라 로 내부의 시편의 실제적인 온도를 온도 센서로 직접 측정하는 것은 어렵다. 하지만, 앞서 로 내부의 측정온도와 전산모사 자료 결과가 실제와 유사함을 확인하였다. 따라서 이들 자료를 토대로 전산모사를 통하여 열처리로 내부에서 Nd자석 시편의 시간 변화에 따른 온도 변화의 거동을 계산하였다.

Fig. 4는 N33AH 자석의 탈자 열처리 시 시간변화에 따른 로



(a) Temperature change of the computationally simulated furnace and specimen at 100~400°C



(b) Time to reach the set temperature of specimen and furnace

Fig. 4 Result of real temperature change in the furnace and simulated specimen temperature which was time to reach at each 100~400°C temperature.

내부 온도와 시편의 온도 변화를 전산모사한 결과를 비교한 그래프이다.

Fig. 4(a)에서 100~400°C까지 열처리 시간에 따른 로 분위기 온도와 시편의 온도 변화를 나타냈다. 연구결과에서 알 수 있듯이 열처리로 내부 분위기의 온도상승거동과 실제 Nd자석의 온도상승 거동은 상온에서 최종 열처리온도까지 상승하는데 상당한 시간의 이력현상이 발생함을 확인 할 수 있었다. 이 결과는 batch식 열처리 시 예전된 로 내부의 분위기 온도의 상승과 내부 피열처리 시편들의 온도거동의 차이를 통해서 열처리 시 정확한 열처리 시간을 설정할 수 있는 결과를 확인할 수 있었다.

여기서 실측한 관상로 내부의 분위기 온도가 상온에서 목표 온도에 도달하는데 소요된 시간( $t_1$ )과 이때 전산모사에 의해 계산된 시편의 온도가 상온에서 목표 온도에 도달하는데 소요된 시간( $t_2$ )

을 기준으로 실제 Nd시편이 열처리온도에 도달하는데 로 내부 분위 온도에서 발생된 지연된 열처리 시간( $\Delta t = t_2 - t_1$ )로 정의했다. 이들 결과를 Fig. 4(b)에서 로 내부 분위기 온도, 전산모사한 시편의 온도가 목표 온도에 도달하는 시간 그리고 이들 사이에 발생한 지연된 열처리 시간의 결과를 정리하여 나타내었다. 승온 속도가 일정하기 때문에 분위기 온도가 목표 온도에 도달하는 시간  $t_1$ 이 목표 온도에 비례하여 증가하는 경향을 보인다. 이는 시편이 목표 온도에 도달하는 시간  $t_2$  또한 마찬가지로이다. 또한, 로 분위기 온도와 시편의 온도가 목표 온도에 도달하는데 걸리는 시간의 차이 ( $\Delta t$ )가 목표 온도가 증가할수록 감소하는 경향을 뚜렷하게 나타내고 있다. 100°C 열처리 시,  $\Delta t = 27$ 분이고, 150°C의  $\Delta t = 26$ 분, 200°C에서  $\Delta t = 20$ 분, 250°C에서  $\Delta t = 19$ 분, 300°C에서  $\Delta t = 16$ 분, 400°C에서  $\Delta t = 12$ 분이었다.

특히, 100~200°C에서의 시간  $\Delta t$ 값의 감소폭이 가장 크게 나타났다. 이는 이전 발표된 Semi-batch 식 열처리 연구<sup>[5]</sup>에서 시편이 목표 온도에 도달하는 시간 연구결과와 달리 시편의 열처리 온도 도달 시 지연시간이 발생함을 확인할 수 있었다. 따라서, batch식 열처리 시 Nd자석의 정확한 열처리 온도를 제어하기 위해서 지연 시간을 고려해야 함을 알 수 있었다.

### 3.3 Batch식 열처리 조건에서 Nd자석의 감자

앞서 검토한 batch식 열처리 조건에서 전산모사 결과를 고려하여 열처리 시 석영관로 내부 Nd자석의 온도가 목표 온도에 도달한 후 열처리 유지시간을 30분으로 설정하였다. 자석은 열처리에 대한 감자보다 열처리 온도에 의한 감자 영향이 지배적이므로 열처리 시간 변화에 따른 영향은 고려하지 않았다<sup>[10,11]</sup>.

Nd자석의 열처리 온도에 따른 자기적 특성 변화를 분석하였다. Nd자석 시편을 100~400°C까지 50°C간격으로 상온에서부터 8°C/min. 속도로 가열하여 목표 온도에 도달한 후 열처리 지연시간을 고려하여 열처리하였다. 온도 상승에 따른 Nd자석의 감자 및 감자율을 Fig. 5에 나타내었다.

N45H는 열처리 온도 100°C부터 감자가 시작되었다. 150°C에서는 50% 이상 감자되었고, 300°C에서 완전히 탈자되었다. N35UH는 150°C까지 자속의 변화가 없고, 200°C에서 50% 이상 감자되고, 300°C에서 완전히 탈자되었다. 또한 N33AH는 200°C까지 자속 변화가 없었고, 250°C에서 40%, 300°C에서 97% 로 급격히 감자되었으며, 350°C에서 완전히 탈자 됨을 알 수 있었다.

자속밀도가 0이 되는 탈자온도는 모두 300°C 근처였고, H, UH, AH로 등급이 높을수록 내열성이 좋아 자속밀도가 감소하기 시작하는 온도가 높았다. 이는 Table 1에서 알 수 있듯이 등급이 높은 Nd자석은 Dy나 Tb같은 중희토류 함량이 높으며, Dy, Tb가

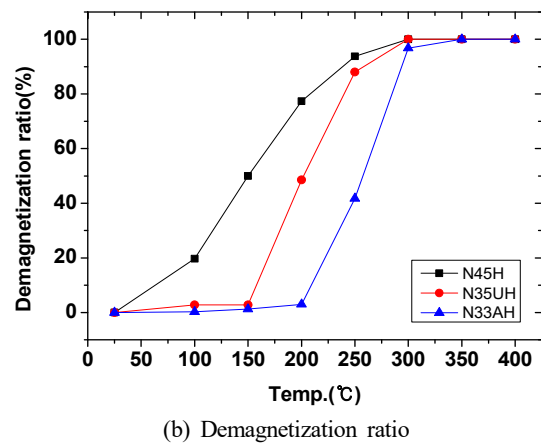
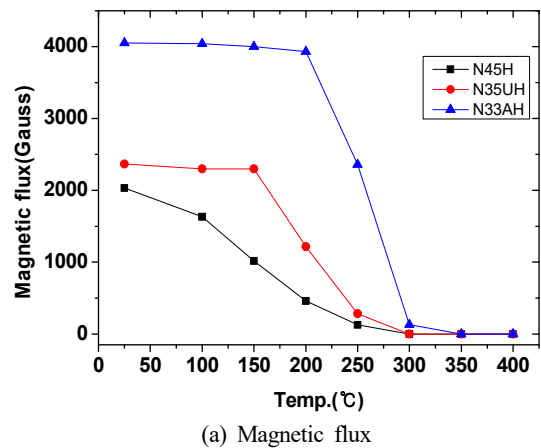
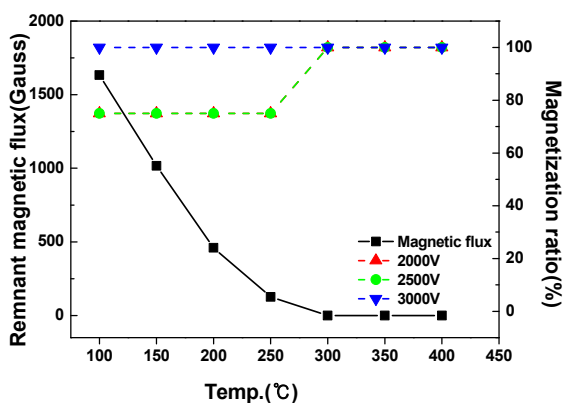


Fig. 5 Changes in magnetic properties of Nd magnets according to heat treatment temperature.

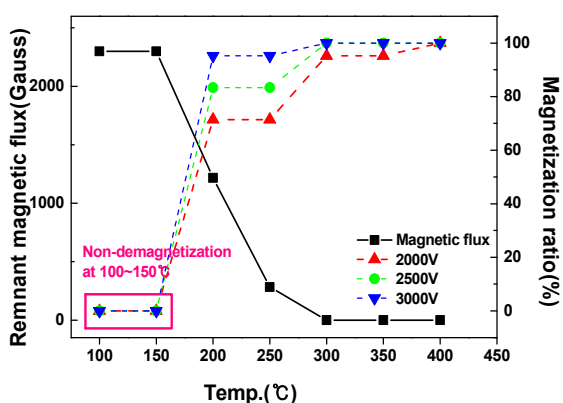
자석의 보자력을 높이는 효과가 있어 높은 온도에서도 자속 밀도가 감소하지 않아 Nd자석의 조성 분석결과와 감자 실험결과가 일치함을 알 수 있다<sup>[1,6]</sup>. 따라서, 중희토류가 10% 이상 함유된 N33AH를 제외한 Nd자석은 300°C에서 충분히 탈자되는 것으로 판단된다.

### 3.4 감자된 Nd자석의 착자

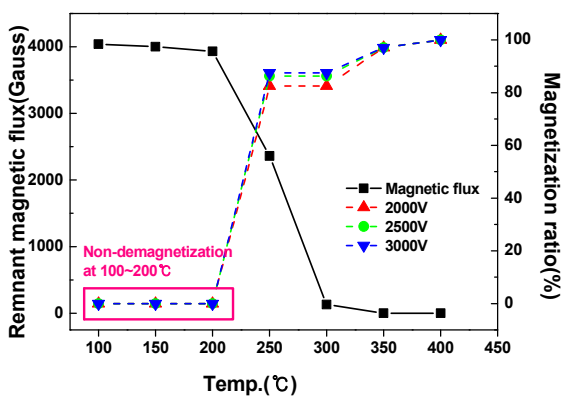
고가의 희토류 Nd계 자석의 효율적인 재사용을 위해서 Nd자석을 열처리하여 온도에 따라 자속이 감소하여 300°C에서는 완전히 탈자되는 것을 확인하였다. 탈자된 Nd자석을 재사용하기 위해서는 착자시 탈자하기 전과 비교하여 자기적 특성의 열화 없이 자속을 100% 회복해야한다. 따라서, 온도별로 감자 및 탈자된 Nd자석을 착자하여 초기 자속 대비 착자율을 측정하였다. 착자기는 전원 장치에서 교류 전원을 받아 설정된 출력전압에 맞게 전압을 조정 후 직류로 바꾸어 대용량 콘덴서에 전기에너지를 충전한다. 이후 1 ms 이내의 짧은 시간에 착자할 자석이 놓인 착자요크로 방전시켜 이 방전된 전기에너지가 자석에 가해져 착자가 이루어진다. 콘덴서에 충전되는 전기에너지는 아래 식 (1)와 같다<sup>[12]</sup>.



(a) N45H



(b) N35UH



(c) N33AH

Fig. 6 Demagnetized magnetic flux by heat temperature and magnetization rate at 2000~3000 V magnetization voltage

$$J = \frac{1}{2} \times C \times V^2 [J] \quad (1)$$

C : 콘덴서 용량      V : 전압

본 연구에서 착자 시 콘덴서의 용량은 3000 uF이고, 충전 전압 (이하 착자 전압)은 2000~3000 V 범위에서 수행하였다. 착자 시에 전압변화에 따른 요크에서 방출되는 전기에너지(이하 자화에너지) 값을 Table 3에 나타내었다. Fig. 6은 착자 시 자화에너지 변

Table 3 Magnetizing energy according to the magnetizing voltage

Magnetizing voltage [V]	Capacitor capacity [uF]	Magnetizing energy [J]
2000	3000	6000
2500	3000	9375
3000	3000	13500

화에 따른 각 Nd계 자석들의 열처리 온도에 따른 감소된 자속값 (감자값)과 착자율을 비교하여 나타내었다.

Fig. 6(a)의 N45H의 경우 100°C에서 250°C까지 열처리 시 완전히 탈자가 되지 않아 감자 후 남아있는 자속(이하 잔여자속)이 존재하는 경우 2000~2500 V 착자 전압을 가했을 때 자화에너지 값 9375 J의 에너지를 인가했을 때까지 최초 자속 값의 75% 수준의 착자율을 나타냈다. 반면 300°C 이상의 온도에서 완전히 탈자가 된 자석의 경우 6000 J의 자화에너지 값 이상에서 모두 100%의 착자율을 나타내었다. 이는 탈자 열처리 시 잔여자속이 존재하는 경우 착자를 방해하는 요소로 작용하기 때문인 것으로 판단된다.

한편 3000 V의 착자 전압을 인가하여 자화에너지 값 13500 J로 착자한 경우 잔여자속 유무에 상관없이 모두 100%의 착자율을 나타내었다.

Fig. 6(b) N35UH의 100~150°C 열처리 시편은 감자가 일어나지 않아 착자하지 않았다. 200~250°C 열처리 시편은 잔여자속이 존재하여 100% 착자되지 않았지만, 착자 전압이 증가할수록 착자율이 증가하여 3000 V 착자 전압을 가했을 때 100%에 가까운 착자율을 보였다. 완전히 탈자된 경우에는 2000 V에서 95%, 2500~3000 V에서 100% 착자율을 보였다.

Fig. 6(c) N33AH의 100~200°C 열처리 시편은 감자가 일어나지 않아 착자하지 않았다. 잔여자속이 남은 250~300°C 열처리 시편은 착자 전압이 증가하면 착자율이 소폭 증가하였으나, 착자 전압을 높여도 90% 미만의 착자율을 보였다. 완전히 탈자된 350~400°C 열처리 시편은 모든 착자 전압에서 100%에 가까운 착자율을 보였다.

이상의 다양한 등급의 Nd계 자석에서 완전히 탈자된 경우는 모든 등급의 자석이 인가전압 2000 V 이상 자화에너지 값 9375 J 수준에서 완전히 착자되었다. 하지만 잔여자속이 남은 경우 등급이 높을수록 필요한 착자 전압 3000 V 즉 자화에너지 값 13500 J까지 증가시켰음에도 불구하고 N35UH 및 N33AH 등급에서 100%의 착자율을 확보할 수 없었다. 통상 자석의 착자를 위해서는 그 자석 고유의 보자력 값에 3~5배에 달하는 자화에너지 값을 인가해야한다고 보고되어지고 있다<sup>[12]</sup>. 본 연구에서 사용된 N45H의 보자력 값은 1,353 kA/m이고 고온 사용을 위해 Dy, Tb같은

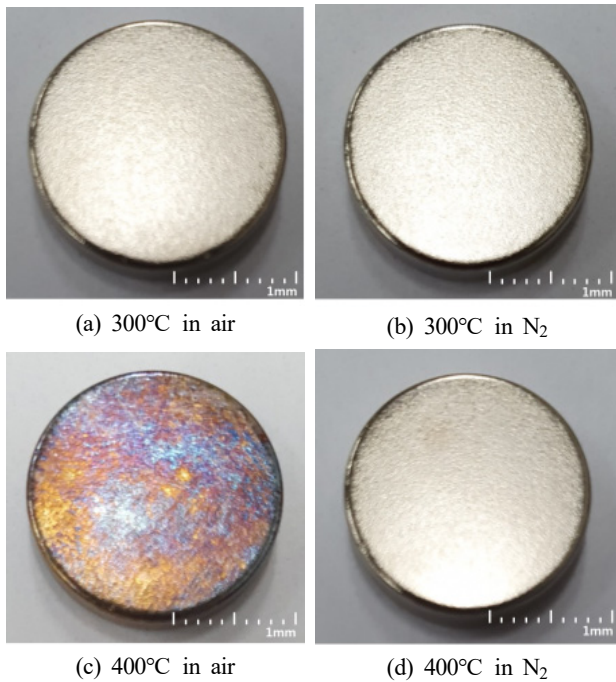


Fig. 7 Surface of Nd magnets demagnetized by air and N<sub>2</sub> atmospheric heat treatment.

중회토류가 첨가된 N35UH는 1,990 kA/m, N33AH 2,706 kA/m 이다. 낮은 등급과 높은 등급 자석 간의 보자력 값이 최대 2배 이상 높아 잔여자속이 남아있는 경우 착자에 필요한 자화에너지 값도 높은 것으로 판단된다. 본 연구에서 N45H등급의 경우 잔여자속값에 관계없이 착자 전압 3000 V에서 착자시 100%의 자속값을 회복하였으나, N35UH 및 N33AH 등급의 경우 보자력 값이 높기 때문에 13500 J의 높은 자화에너지를 인가했음에도 불구하고 잔여자속이 남아있는 경우 N35UH는 95%, N33AH는 90% 수준으로 회복되었다. Dy, Tb 함량이 높은 등급의 Nd자석의 경우 더 많은 착자 전압과 에너지가 필요함을 나타내었다. 따라서, Nd자석을 탈자하여 잔여자속을 완전히 제거한 후 착자하는 것이 에너지 소모면에서 효율적임을 알 수 있었다.

### 3.5 탈자된 Nd자석의 도금층 표면 분석

회수된 고가의 희토류 Nd계 자석의 재사용을 위해서 완전탈자 온도인 300°C 이상에서 400°C까지 탈자 열처리된 Nd자석의 표면건전성 확보가 필수적이다. Nd자석은 Nd가 산소와 반응하기 쉬운 성질을 가지고 있기에 자기적 특성 열화와 부식을 방지하기 위해 표면에 Ni-Cu-Ni의 3개 층으로 구성된 도금층이 형성되어 있다<sup>[5,13]</sup>.

Fig. 7은 300°C 및 400°C에서 공기 분위기와 N<sub>2</sub> 분위기에서 탈자 열처리한 Nd자석의 표면 변색을 관찰한 결과이다. 공기 분위기에서 300°C 열처리한 경우 표면 변색은 발생하지 않았으나 400°C

Table 4 Surface composition of Nd magnet demagnetized by atmospheric heat treatment

Composition [wt%]	300°C		400°C	
	(a)	(b)	(c)	(d)
O	0.99	0.41	4.39	0.49
Ni	99.01	99.59	84.53	98.14
Cu	-	-	11.08	1.37
Total	100.00	100.00	100.00	100.00

열처리 한 경우에는 산화로 인한 표면의 변색이 뚜렷하게 나타났다. 반면, N<sub>2</sub> 분위기에서 300°C 및 400°C 열처리한 Nd자석의 표면 변색은 전혀 발생하지 않고 건전함을 보였다. Table 4의 시편의 표면을 EDS를 이용하여 조성 분석한 결과를 보면, N<sub>2</sub> 분위기에서 열처리한 경우에 산소 함량이 0.5% 미만으로 나타났다. 반면, 공기 분위기에서 열처리한 경우에 산소 함량이 300°C에서 1%, 400°C에서는 4% 이상 함유하는 것으로 나타났다. 공기 분위기에서 400°C 열처리한 시편의 표면에서만 Cu가 11% 검출되었다. 이는 Ni-Cu-Ni로 이루어진 도금층이 열처리 시 Cu가 표면의 Ni층으로 확산되어 나옴과 동시에 공기중의 산소가 표면의 Ni과 Cu와 함께 산화물을 형성한 것으로 도금층이 손상되었다고 판단된다<sup>[13]</sup>. 따라서, 공기 중 도금층의 변색 및 손상없이 탈자할 수 있는 최대 열처리온도는 300°C까지 유지 되었으며, 이 이상의 온도에서는 N<sub>2</sub> 분위기로 열처리하는 것이 합리적이라 판단된다.

## 4. 결론

본 연구에서는 Nd자석의 탈자를 위한 batch 식 열처리 조건을 확보하기 위해서 열처리 로 내부 온도를 100~400°C까지 50°C 간격으로 각각 상온에서 목표 열처리 온도 도달시까지 시간변화에 따른 로 내부 분위기 온도와 자석시편의 온도 변화의 상관관계를 열유동 해석 모델을 통하여 전산모사로 검토하였다.

Batch식 열처리 시 로 내부 분위기 온도까지 도달하는 온도와 자석 시험편이 목표 온도에 도달하는데 지연시간이 발생하는 것을 확인하였다. 이때 열처리 목표 온도가 100~400°C까지 높아질수록 지연시간은 최대 27분에서 최소 12분으로 짧아짐을 알 수 있었다. 따라서 실제 열처리 시 제어되는 로 내부의 분위기 온도 도달 시간보다 샘플이 실제온도에 도달되는데 지연된 시간을 고려해서 열처리 조건이 고려되어야 함을 알 수 있었다.

H, UH, AH 등급의 Nd자석을 100~400°C까지 지연시간을 고려하여 탈자 열처리한 결과 열처리 온도가 증가함에 따라 자속의 감소는 증가하는 경향을 보였다.

잔여자속이 존재하는 탈자 자석과 완전히 탈자된 Nd자석을 착자한 결과 잔여자속이 존재할 경우에 H, UH, AH 순서로 Nd자석의 보자력 값이 클수록 자화에너지가 더 증가함을 보였다.

고가의 희토류자석의 재사용을 위한 열처리 시 자석표면 보호를 위한 도금층의 건전성을 고찰한 결과 300°C까지 Nd자석 표면 도금층은 산화정도가 0.5% 미만이므로 충분히 재사용이 가능한 것으로 판단된다. 반면, 400°C에서는 거시적인 표면 산화가 발생하고, 도금층 내부의 Cu가 표면으로 확산되어 도금층의 손상이 발생되었다. 이를 방지하기 위해 300°C 이상에서 N<sub>2</sub> 분위기 탈자 열처리 시 건전한 도금층을 유지할 수 있었다.

## 후 기

이 논문은 2021년도 에너지기술개발사업 과제번호 20205210100070의 연구비지원으로 수행되었습니다.

## References

- [1] Cha, H. R., Baek, Y. K., Kim, D. H., Lee, J. G., 2019, Replacing Rare-Earth Elements in Permanent Magnets, *Physics and High Technology*, 28:9 24-31, <http://doi.org/10.3938/PhiT.28.036>.
- [2] Yoon, H. S., Kim, C. J., Chung, K. W., Kim, J. H., Lee, E. J., Yoo, S. J., 2017, Double Salt Precipitation Behavior of Rare Earth by Sodium Sulfate in Sulfuric Liquor of Waste Permanent Magnet Scrap, *J. Korean Inst. Resour. Recycl.*, 26:5 39-47, <https://doi.org/10.7844/kirr.2017.26.5.39>.
- [3] Högberg, S., Bendixen, F. B., Mijatovic, N., Jensen, B. B., Holbøll, J., 2015, Influence of Demagnetization -Temperature on Magnetic Performance of Recycled Nd-Fe-B Magnets, 2015 IEEE Int. Electr. Mach. Drives Conf., 1242-1246, <https://doi.org/10.1109/iemdc.2015.7409220>.
- [4] Mo, W., Zhang, L., Liu, Q., Shan, A., Wu, J., Komuro, M., 2008, Dependence of the Crystal Structure of the Nd-rich Phase on Oxygen Content in an Nd-Fe-B Sintered Magnet, *Scr. Mater.*, 59:2 179-182, <https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2008.03.004>.
- [5] Kim, B. J., Park, I. K., Kim, Y. S., 2021, Study on the Demagnetization and Classification of NdFeB Magnets According to Different Heat Treatment Temperatures, *J. Korean Soc. Manuf. Technol. Eng.*, 30:2 119-126, <https://doi.org/10.7735/ksmte.2021.30.2.119>.
- [6] Kim, S. H., Kim, J. W., Byun, J. M., Kim, Y. D., 2015, Enhancement of Coercivity for Nd-Fe-B Sintered Magnets, *J. Korean Powder Metall. Inst.*, 22:1 60-67, <https://doi.org/10.4150/KPML.2015.22.1.60>.
- [7] Incropera, F. P., Dewitt, D. P., 1999, *Fundamental of Heat and mass Transfer (4th)*, Wiley, New Jersey, USA.
- [8] White, F. M., 1998, *Fluid Mechanics (4th)*, McGraw-Hill Higher Education, New York, USA.
- [9] Shin, H. J., Park, G. W., 2019, CFD Analysis of a 2-Stage Air Compressor for a Hydrogen Electric Car, *J. Korean Soc. Manuf. Technol. Eng.*, 28:6 453-459, <https://doi.org/10.7735/ksmte.2019.28.6.453>.
- [10] Haavisto, M., Tuominen, S., Kankaanpaa, H., Paju, M., 2010, Time Dependence of Demagnetization and Flux Losses Occurring in Sintered Nd-Fe-B Permanent magnets, *IEEE Trans. Magn.*, 46:9 3582-3584, <https://doi.org/10.1109/TMAG.2010.2047262>.
- [11] Haavisto, M., Tuominen, S., Santa-Nokki, T., Kankaanpaa, H., Paju, M., Ruuskanen, P., 2014, Magnetic Behavior of Sintered NdFeB Magnets on a Long-Term Timescale, *Adv. Mater. Sci. Eng.*, 2014 1-7, <https://doi.org/10.1155/2014/760584>.
- [12] Bae, Y. W., Kim, W. J., Hong, J. S., 2019, Economic Analysis of Optical Communication Control System in High Voltage Magnetizer, *J. Inf. Technol. Appl. Manag.*, 26:6 103-117, <https://doi.org/10.21219/jitam.2019.26.6.103>.
- [13] Nababan, D. C., Mukhlis, R., Durandet, Y., Pownceby, M. I., Prentice, L., Rhamdhani, M. A., 2021, Kinetics of High Temperature Oxidation of End-of-life Ni/Cu/Ni Coated NdFeB Rare Earth Permanent Magnets, *Corrosion Sci.*, 189 109560, <https://doi.org/10.1016/j.corsci.2021.109560>.



**Byeong Jun Kim**

Master Candidate in the Graduate School of NIDE Fusing Technology, Seoul National University of Science and Technology. His research interest is Material and Nano-Micro Technology. E-mail: kbj1020@seoultech.ac.kr



**Young Sung Kim**

Professor in the NDT Research Center, Seoul National University of Science and Technology. His research interest in Material and Nano-Micro Technology. E-mail: youngsk@seoultech.ac.kr





**Gi Tae Joo**

Senior Research in the NDT Research Center, Seoul National University of Science and Technology. His research interest is Optical Ceramics.

E-mail: gtjoo@seoultech.ac.kr



**Joon Hyun Kim**

Research Professor in NDT Research Center, Seoul National University of Science and Technology. His research interest is Tribology.

E-mail: joonk61@seoultech.ac.kr



**Ik Keun Park**

Professor in the Department of Mechanical&Automotive Engineering, Seoul National University of Science and Technology. His Research interest is Nondestructive Evaluation.

E-mail: ikpark@seoultech.ac.kr



**Jae Yong Lee**

Director in Corporate R&D Center, Hanchung R.F. His research interest is Resource Recycling.

E-mail: 57jylee@naver.com



**Su Won Yang**

Chief researcher in Corporate R&D Center, Hanchung R.F. His research interest is Soft magnetic material and Resource Recycling.

E-mail: hcswyang@gmail.com