

## Some Suggestions to Search New Permanent Magnets Using First-Principles Calculations

Soon Cheol Hong\*

Department of Physics, University of Ulsan, Ulsan 44610, Korea

Dorj Odkhuu

Department of Physics, Incheon National University, Incheon 22012, Korea

(Received 7 August 2019, Received in final form 27 August 2019, Accepted 27 August 2019)

Since Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B permanent magnet was developed in 1982, a new permanent magnet with higher performance than Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B has not been reported yet. On the other hand, new permanent magnet materials, which do not include rare-earth elements but are compatible to ferrites in price, also are needed to be searched urgently. In this paper, we will review required material properties for good permanent magnets and discuss ways to search new permanent magnets, using first principles calculations. The goal to search the new permanent magnets should be set to find materials to have higher performance than Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B or to be consisted of 3d transition metal as magnetic elements with compatible performance to Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B to replace high performance rare-earth magnets or cheap ferrites.

**Keywords** : permanent magnet, first-principles calculation, Curie temperature, energy product

### 제일원리계산에 의한 새로운 영구자석 소재 개발 방향

홍순철\*

울산대학교 물리학과, 울산시 남구 대학로 93, 44610

오희

인천대학교 물리학과, 인천시 연수구 아카데미로 119, 22012

(2019년 8월 7일 받음, 2019년 8월 27일 최종수정본 받음, 2019년 8월 27일 게재확정)

현재 최고 성능을 보여주고 있는 Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 영구자석이 1980년대에 개발된 이후 그 이상의 성능을 나타내는 영구자석이 보고되고 있지 않을 뿐 아니라 Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 영구자석은 정제·가공 과정에서 심각한 환경 문제를 야기하는 희토류 원소를 포함하고 있어 희토류 원소를 적게 사용하거나 아예 사용하지 않는 영구자석 개발이 시급하다. 본 논문에서 성능이 우수한 영구자석이 갖추어야 할 물성이 무엇인지? 몇 십년 동안 새로운 영구자석이 개발되고 있지 못한 물리적인 이유가 무엇인지? 영구자석의 성능을 높이거나 Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 영구자석에서 희토류를 사용하지 않고도 버금가는 영구자석을 개발할 수 있을지? 제일원리계산 결과로 할 수 있는 일이 무엇인지? 등에 대해서 논의하고자 한다.

**주제어** : 영구자석, 제일원리계산, 큐리온도, 에너지적

### I. 서 론

자철광에서 자석 특성이 있음을 발견한 이후 자석에 대한 호기심이 인간이 과학 공부를 시작한 출발점이라고 하여도 좋겠다. 자연에서 발견된 자철광은 화학식으로 표현하면 Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>

이고 서양에서는 방향석(lodestone)으로, 동양에서는 애석(loving stone)으로 불렸다. 인간에 의해 18세기경에 최초로 개발된 영구자석은 탄소강으로 일정 수준의 자기적 경도와 기계적 경도를 동시에 가지고 있다. 자기적 경도와 기계적 경도는 둘 다 구역(domain)의 움직임과 밀접한 관계가 있기 때문에 대체적으로 자기 경도가 큰 물질은 기계적 경도도 같이 크다. 이후 알니코(Alnicos), 페라이트(ferrites), 희토류 자석이 차례로 개발되어 발전하여 왔다.

© The Korean Magnetics Society. All rights reserved.

\*Corresponding author: Tel: +82-52-259-1693,

Fax: +82-52-259-1693, e-mail: schong@ulsan.ac.kr

환경문제에 대한 관심이 높아지면서 자연스럽게 친환경 에너지 생산과 소비에 활용할 수 있는 소재에 대한 연구가 요구되고 있다. 관련하여 풍력발전, 전기자동차 등 영구자석의 에너지를 효율적으로 사용할 수 있는 소재 개발에 대한 집중적인 노력이 세계적으로 이루어지고 있다[1-9]. 현재 영구자석 시장은 최고의 성능을 보여주는 Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 자석과 가격이 저렴한 페라이트 자석이 거의 양분하고 있으며 SmCo<sub>5</sub>, Alnico 자석 등 다른 영구자석은 특수한 목적으로 활용되고 있다.

새로운 영구자석을 구현하기 위한 집중적인 연구에도 불구하고, 1980년대에 Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 자석이 소개된 이후 이렇다 할 새로운 영구자석 소재가 개발되고 있지 못하고 있고 희토류 원소의 자원 제약에서 벗어나기 위해 대체 영구자석의 개발이 필요하다. 본 논문에서는 지금 개발된 대표 영구자석의 특성을 간략하게 정리하고 영구자석이 갖추어야 할 고유 물성을 살펴보고자 한다. 이후 새로운 영구자석 소재를 제안하기 위해 제일원리계산 방법이 할 수 있는 역할과 개발 방향을 논의한다.

## II. 영구자석의 기본 물성

이 절에서는 영구자석의 특성을 나타내기 위해 필요한 물리량을 살펴보고 제일원리계산으로 예측할 수 있는 범위와 한계에 대해 서술하고자 한다.

### 1. 에너지적(energy product)

영구자석의 성능은 쉽게 말하자면 주변에 얼마나 센 자기장을 만드느냐로 결정이 된다. 이 성능을 나타내는 물리량이 최대에너지적  $(BH)_{max}$ 인데 자기장에 대한 기본 법칙인 가우스 법칙과 앙페르 법칙을 사용하면[10] 에너지적은 영구자석이 만드는 자기장( $B$ )의 제곱에 비례함을 쉽게 보일 수 있다.

Fig. 1은 교과서 등에서 흔히 볼 수 있는  $B(M)-H$  자기이력 곡선을 보여주고 있는데  $(BH)_{max}$ 는 제2사분면에서  $B-H$  자기이력 곡선에 의해 정해지는 직사각형의 최대 넓이로 정의된다.  $B-H$  자기이력 곡선에서  $(BH)_{max}$ 를 잘못 정의하여 혼란을 야기하는 경우가 자주 있는데 그 이유는  $(BH)_{max}$ 를 정의할 때 사용하여야 하는  $B-H$  자기이력 곡선의  $H$  축은 영구자석 내의 내부자기장이어야 하는데 외부자기장으로 표시되어 있는 경우가 종종 있기 때문이다. Fig. 1의 경우에도 수평축에 해당하는  $H$ 가 외부 자기장인지 내부 자기장인지 명확하지 않고 두 물리량이 섞여 있다. 만약에 수평축  $H$ 가 외부 자기장이라면 뒤에서 논의할 작업점은 당연히 수직축 선상에 있어야 하고 만약에 수평축  $H$ 가 내부 자기장이라면 잔류 자속밀도  $B_r$ 은 작업점에 위치하여야 한다.

Fig. 1에서 제2사분면에 표시된 작은 녹색 원을 작업점

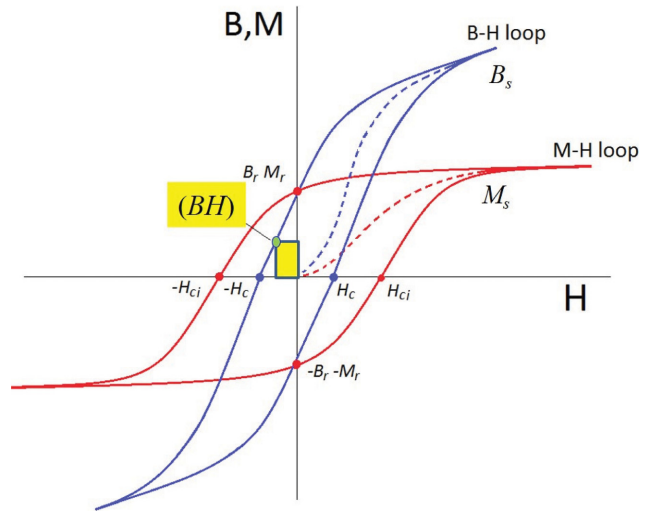


Fig. 1. (Color online) B(M)-H hysteresis loop.

(working point)이라고 하고 그 위치는 영구자석의 형상에 의해 결정이 되는데 외부자기장이 제거되었을 때  $B$ 와  $H$ 를 나타낸다. 반자장( $H_d$ )은 형상에 의해 결정되고 외부 자기장이 없는 상황에서는  $H = H_d$ 이고  $M = M_r$ (잔류자화)이므로  $(BH)$ 는 SI 단위계를 사용하면 다음과 같다.

$$\vec{H}_d = -D\vec{M}_r; \vec{B} = \mu_o(\vec{M}_r + \vec{H}_d) = \mu_o(1 - D)\vec{M}_r;$$

$$(BH) = \mu_o D(1 - D)M_r^2$$

여기서  $D$ 는 반자장 계수이고 영구자석의 형상에 의해 결정되는데 0 보다는 크고 1 보다는 작다. 잔류자화가 형상의 영향을 받지 않는다고 가정하면  $(BH)$ 는  $D = 1/2$ 에서 최대가 되고 다음과 같으며 영구자석의 성능은 잔류 자화에 의해 다음과 같이 결정됨을 알 수 있다.

$$(BH)_{max} = \frac{1}{4}\mu_o M_r^2$$

에너지적의 단위는 산업계에서는 cgs 단위인 MGOe를 주로 사용하고 있고, 이에 해당하는 SI 단위는 KJ/m<sup>3</sup>이다. 두 단위 사이의 변환 인자는 1 MGOe = 7.956 KJ/m<sup>3</sup>이다.

자기이력 곡선으로부터 최대 에너지적을 예측하는 것에 관해서는 김남규 등이 자세하게 풀어서 서술한 국문지 논문[11]을 참고하여도 좋겠다.

### 2. 잔류자화

영구자석의 성능  $(BH)_{max}$ 는 결국은 잔류자화( $M_r$ )가 결정되는데 잔류자화는 영구자석 소재의 고유특성이 아니라 여러 외부조건에 의하여 결정되는 물리량이라서 실질적으로 제일원리계산으로는 구하는 것은 불가능하다. 제일원리계산으로 단지 포화자화( $M_s$ )만을 얻을 수 있다. 영구자석이 가질 수 있는

최대 잔류자화( $M_r$ )는 포화자화( $M_s$ )이므로 어떤 물질이 가질 수 있는 이상적인 최대 에너지적을 아래 첨자를 대문자로 사용하여  $(BH)_{MAX}$ 로 표시하여 다음과 나타낼 수 있고 제일원리계산으로 구할 수 있는 물리량이다.

$$(BH)_{MAX} = \frac{1}{4} \mu_0 M_s^2$$

관련하여 제일원리계산에서는 원자 별 자기모멘트를 구하고 그 결과를 보여 마그네톤( $\mu_B$ ) 단위로 나타내는 것이 일반적이다. 예로 대표적 강자성체인 순수 bcc Fe은 원자당 자기모멘트는  $2.20 \mu_B$ 이고 bcc 격자상수가  $2.87 \text{ \AA}$ 이라 한다면 여기에 해당하는 포화자화( $M_s$ )는 cgs 단위로는  $1.73 \times 10^3 \text{ emu/cm}^3$ 이고 SI 단위로  $1.73 \times 10^6 \text{ A/m}$ 이다. 편의상 포화자화  $M_s$ 에  $\mu_0$ 를 붙여 자속밀도  $B$ 와 같은 단위로 표현하는데 Fe의 포화자화( $\mu_0 M_s$ )는 cgs(SI) 단위로  $2.17 \times 10^4 \text{ G}$  ( $2.17 \text{ T}$ )이다. 공교롭게도  $\mu_B$  단위로 표시한 Fe의 원자당 자기모멘트와 SI 단위로 표시한 포화자화( $\mu_0 M_s$ )가 거의 같은 수치를 보여주고 있어 제일원리계산 결과로부터 얻은 원자 당 자기모멘트로부터 포화자화를 대략 추정할 수 있다.

### 3. 보자력

보자력은 포화자화된 강자성체를 자화( $M$ ) 혹은 자속밀도( $B$ )가 0이 되게 하기 위해 필요한 외부자기장의 세기로 정의되고 각각을  $H_c$ ,  $BH_c$ 로 표시하는데 Fig. 1에서처럼  $H_{cb}$ ,  $H_c$ 로 쓰기도 한다.  $B = \mu_0(M + H)$  이므로 Fig. 1에서 보는 바와 같이  $H_c$ 는  $BH_c$  보다는 항상 크고 영구자석의 형상과는 무관하여  $H_c$ 를 따로 고유 보자력이라 부른다.

보자력( $H_c$ ,  $H_{cb}$ ,  $BH_c$  둘다)도 잔류자화와 마찬가지로 제조 공정에 좌우되는 물리량으로서 제일원리계산으로 구하는 것은 실질적으로 불가능하다. 보자력( $H_c$ )과 관련이 깊은 물질의 고유 물리량은 자기이방성 에너지이다. 자화 방향에 따른 총에너지 차이가 자기이방성 에너지로 정의되는데 자화 방향을 바꿀 때 넘어야 하는 에너지 장벽이어서 자기이방성 에너지가 작은 물질은 높은 보자력을 가질 수 없다. 보자력이 낮으면 반자장때문에 물질이 큰 잔류자화를 유지할 수 없기 때문에 포화자화가 크더라도 성능이 우수한 영구자석이 될 수 없다.

보자력과 가장 가까운 고유 물리량은 이방성 자장인데 이방성 자장은 일축 강자성체의 경우 자화곤란방향으로 포화시키기 위해 필요한 자기장으로 정의되고 다음 식으로 표현된다.

$$H_a = (2K_u / \mu_0 M_s)$$

보자력과 이방성 자장 사이의 관계를 1947년 W. F. Brown 이 엄밀한 계산을 통해 다음과 같은 부등식을 증명하였고 이

를 Brown 정리라 한다[10].

$$H_c \geq (2K_u / \mu_0 M_s) - DM_s \quad \text{즉, } H_c \geq H_a - H_d$$

앞에서 정의한 바와 같이  $H_a$ 은 이방성 자장이고  $H_d$ 는 반자장이다. 이 식을 이용한 제일원리계산으로 보자력의 하한선을 정할 수 있을 법도 한데, 실 측정에서는 Brown 정리를 만족시키는 경우가 드물다. 실험과 이론의 이러한 차이를 Brown 패러독스라 하고 이 패러독스를 극복하지 못하고 있는 상황이라 제일원리계산으로 영구자석의 자성을 예측하는 데에는 한계가 있다.

### 4. 큐리 온도

모터나 발전기에 영구자석을 사용하게 되면 패러데이 법칙에 의한 유도전류를 피할 수 없고 유도전류로 인하여 영구자석의 온도 상승은 불가피하다. 온도 상승으로 약화되는 자석의 세기(에너지적)는 전기 자동차 등에 활용할 때 문제가 된다. 영구자석의 온도가 상승하더라도 보자력과 잔류자화가 떨어지지 않아야 모터 혹은 발전기에 실질적인 응용이 가능하다. 열물성이 우수하기 위해서는 큐리 온도가 높아야 하는 것이 필요조건이다.

온도 거동이 Heisenberg 모형로 합리적으로 설명되는 영구자석의 큐리 온도는 교환 작용을 평균장 근사로 구하면 다음과 같이 표현된다[12-14].

$$T_C = 2J_0 / (3k_B)$$

여기서  $J_0 = z_{ij}^{1NN} J_{ij}^{1NN} + z_{ij}^{2NN} J_{ij}^{2NN} + z_{ij}^{3NN} J_{ij}^{3NN} + \dots$ 으로 모든 이웃 간의 교환 상호 작용을 더한 것으로  $z_{ij}^{1NN}$ 와  $J_{ij}^{1NN}$ 는 각각  $l$ 번째 이웃( $l$ th nearest neighbours:  $lNN$ ) sublattice의 수와  $lNN$  사이의 유효 교환상호 작용 세기를 나타낸다. Heisenberg 모형에서 교환 에너지는 다음과 같은 식으로 표현되어 제일원리 총에너지 계산으로  $J_{ij}$ 를 구할 수 있다.

$$E_{ex} = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{j \neq i=1}^N n_i z_{ij} J_{ij} S_i S_j; \quad J_{ij} = \frac{\Delta_{ij} - \Delta_i - \Delta_j}{4n_i z_{ij} S_i S_j}$$

여기서  $n_i$ 는  $i$  sublattice의 수이고  $\Delta_{i(j)}$ 는  $i(j)$  sublattice 스핀의 방향이 기저상태의 스핀 방향과 반대가 되었을 때 에너지 증가를 표시하고  $\Delta_j$ 는  $i, j$  스핀의 방향이 동시에 기저상태의 스핀 방향과 반대가 되었을 때 에너지 증가를 나타낸다. 이 방식에 따라 3번째 이웃 원자 간의 교환 작용까지 고려하여 구한 B2 FeCo의 큐리 온도는 실험치  $1253 \text{ K}$ [15,16]와 비교적 잘 일치하는  $1195 \text{ K}$ 이었다[17].

### 5. 자성 경로

어떤 영구자석이 가질 수 있는 최대 에너지적( $BH$ )은 잔류

자화와 직접적인 관계  $[(BH)_{max} = \frac{1}{4}\mu_o M_r^2]$ 가 있음을 앞선 절에서 논의한 바 있다. 그런데 “잔류자화가 형상의 영향을 받지 않는다”는 가정이 있어야  $[(BH)_{max} = \frac{1}{4}\mu_o M_r^2]$ 이 성립한다. 예를 들면 대표적인 강자성체인 철은 포화자화가 커서 높은 잔류자화를 가질 수 있을 것으로 기대된다. 그러나 철은 특정한 형태(즉 말굽형 혹은 긴 막대형)에서만 높은 잔류자화를 유지할 수 있다. 다른 말로 반자장 계수  $D$ 가 0에 가까워야 한다는 것이다. 이런 경우  $M_r$ 이 아무리 크더라도 에너지적  $[BH = \mu_o D(1 - D)M_r^2]$ 은 작을 수밖에 없다. 반자장 계수  $D$ 가 커져 반자장이 커지면 철은 자체 탈자화가 이루어져 잔류자화를 유지할 수 없기 때문이다.

“잔류자화가 형상의 영향을 받지 않는다”는 가정이 성립하려면 영구자석의 보자력이 충분히 커야 한다. 보자력은 공정의 문제이므로 소재의 성능을 평가하기에 적당하지 않다. 형상에 따라 잔류자화 유지 여부를 평가하는 위한 수단으로 다음과 같이 자성 경도를 정의한다.

$$\kappa = \sqrt{K_u / \mu_o M_s^2}$$

경험 법칙에 의하면 자성 경도  $\kappa$ 가 1보다 큰 소재인 경우에는 형상에 관계없이 잔류자화를 유지할 수 있는 영구자석을 제조하는 것이 가능한 것으로 알려져 있다.

앞 절에 서술한 Brown 정리는 다음과 같이 다시 쓸 수 있다.

$$H_c \geq (2\kappa^2 - D)M_s$$

이 식은 자성 경도  $\kappa$ 가 1보다 큰 소재는 영구자석이 반자장 계수가 가장 큰 1에 해당하는 형상을 가지더라도 보자력을 유지할 수 있음을 보여주고 있어 형상에 관계없이 영구자석을 제조할 수 있음을 의미한다. 이런 이유로  $\kappa$ 가 1보다 큰 소재를 hard 소재로 분류한다.  $\kappa$ 가 1/2인 경우에는  $(BH)_{max}$ 에 해당하는  $D = 1/2$ 에서도 보자력을 유지할 가능성이 있다. 형상에 대한 제약이 있지만 영구자석으로 활용될 가능성이 크므로  $\kappa$ 가 대략 1/2보다 크고 1보다 작은 소재를 semihard 소재로 분류한다.

### 6. 대표적인 영구자석의 주요 특성

대표적인 영구자석의 자성[18]을 Table I에 열거하였다. 자성경도가 1보다 작아 현실적으로  $(BH)_{MAX}$ 에 도달할 수 없는 소재를 제외하고 Table I에 나타난 바와 같이 현시점에서  $Nd_2Fe_{14}B$ 가 최고의 성능(에너지적)을 보여준다. 그러나  $Nd_2Fe_{14}B$ 의 최대 약점은 큐리온도가 충분하지 않아 모터 혹

**Table I.** Physical properties of some typical permanent magnets [10,18].

Magnet	$T_C$	$M_s$	$(BH)_{MAX}$	$\kappa$
Alnico 5	1210 K	1100 kA/m	(378) kJ/m <sup>3</sup>	0.66
BaFe <sub>12</sub> O <sub>19</sub>	740 K	380 kA/m	45 kJ/m <sup>3</sup>	1.35
SmCo <sub>5</sub>	1020 K	860 kA/m	231 kJ/m <sup>3</sup>	4.30
Sm <sub>2</sub> Co <sub>17</sub>	837 K	970 kA/m	260 kJ/m <sup>3</sup>	1.90
Nd <sub>2</sub> Fe <sub>14</sub> B	588 K	1280 kA/m	512 kJ/m <sup>3</sup>	1.54
Sm <sub>2</sub> Fe <sub>17</sub> N <sub>3</sub>	749 K	1230 kA/m	473 kJ/m <sup>3</sup>	2.13
MnBi	628 K	580 kA/m	105 kJ/m <sup>3</sup>	1.46
Fe <sub>16</sub> N <sub>2</sub>	810 K	1920 kA/m	(1152) kJ/m <sup>3</sup>	0.43

은 발전기에 응용될 때 온도가 상승하면서 성능이 급격히 떨어지는 데 있다.  $Nd_2Fe_{14}B$ 에 버금가는 성능을 지니면서 큐리온도가  $Nd_2Fe_{14}B$  보다 약 150 K 높은  $Sm_2Fe_{17}N_3$ 은 일견 매력적으로 보인다. 하나  $Sm_2Fe_{17}N_3$ 은 N이 높은 온도에서 빠져나가는 문제가 있어 고온 소결이 어려워 충분히 밀도가 높은 영구자석으로 제조하기 어렵다는 문제가 있다. Nd와 Sm은 희토류 원소이어서 언제든지 자원무기화될 수 있는 점도 두 소재의 문제점이다.

열려된 영구자석 중에서 성능이 가장 떨어지는 육방정계 ferrite( $BaFe_{12}O_{19}$ ,  $SrFe_{12}O_{19}$ )는 가격 면에서는 다른 영구자석 소재가 필적할 수 없을 정도로 싸다. 현재 영구자석 시장은 가장 싼 ferrite 자석과 최고의 성능 Nd-Fe-B 자석과 양분하고 있고 그 외 다른 영구자석은 특수한 목적으로 사용되고 있다.

Ferrite 보다는 성능이 좋으면서 가격도 적당한 비희토류 영구자석 소재 개발에 연구자들의 관심이 높다. 그런 관점에서 가격이 싼 원소 Mn, Bi, Al으로 구성된 MnBi와 MnAl에 대한 연구가 활발하게 진행되고 있다[19].  $(BH)_{MAX}$ 는 ferrite의 2배 정도이다.

### III. 제일원리계산에 의한 새로운 영구자석 탐색 방향

앞 절에서 서술한 바와 같이 영구자석의 성능(에너지적)을 높이기 위한 필요조건이 높은 포화자화이다. Fig. 2는 3d 전이금속으로 합금을 구성하였을 때 원자 당 자기모멘트를 보여주는 Slater-Pauling 곡선이다. 그림에 따르면 3d 전이금속 합금으로 얻을 수 있는 원자 당 자기모멘트는 최대값 2.5  $\mu_B$ 인데 최적 조성의 Fe-Co 합금에서 얻을 수 있다. 이 값은 Fe의 자기모멘트 2.2  $\mu_B$ 에 비해 약 14% 크다. Fe-Co 합금의 포화자화로 추정된  $(BH)_{MAX}$ 는 1200 kJ/m<sup>3</sup>(150 MGOe)으로  $Nd_2Fe_{14}B$  영구자석의 성능 512 kJ/m<sup>3</sup>(64 MGOe)보다 두 배 이상 큰 수치로 인류가 얻을 수 있는 실질적인 BH 상한선이라 할 수 있겠다.

새로운 영구자석 개발 방향은 희토류 원소를 사용하더라도

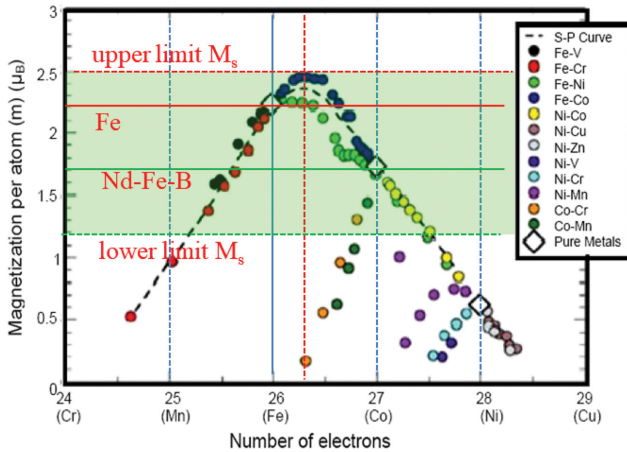


Fig. 2. (Color online) Slater-Pauling curve.

Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 영구자석의 성능을 증가시키는 소재를 찾는 방향이 한 방향일 수 있고 자성 원소로 희토류 원소를 사용하지 않고 3d 전이금속을 사용하여 Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 영구자석 성능의 반 정도이면서 원소 가격, 공정비용 측면에서 ferrites와 경쟁할 수 있는 비희토류 영구자석을 찾는 방향이 또 다른 한 방향이다. 원자 당 부피가 Fe와 같다는 가정 하에서 Fe의 자기모멘트의 반을 살짝 넘는 원자 당 자기모멘트 1.15 μ<sub>B</sub>이면 Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 영구자석 성능의 반인 206 kJ/m<sup>3</sup>(32 MGOe)이 된다. Fig. 2에 Fe와 Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B의 원자 당 자기모멘트, 3d 전이금속 합금으로 얻을 수 있는 최대 자기모멘트, Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 영구자석 성능의 반에 해당하는 자기모멘트를 수평선으로 표시해 두었다.

포화자화가 영구자석의 성능에 최대한 반영되기 위해서는 충분한 보자력이 필요한데 보자력을 제일원리계산으로 구하는 것은 현실적으로 불가능하다. 소재가 영구자석으로 활용될 가능성은 자성 정도  $\kappa = \sqrt{K_u / \mu_0 M_s^2}$ 로 경험적으로 짐작한다. 경험 법칙 상  $\kappa \geq 1$  이면 형상에 구애 받지 않는 영구자석 제조가 가능한 것으로 알려져 있다. 자기모멘트 1.15 μ<sub>B</sub>/atom 인 소재가 자성정도  $\kappa \geq 1$  을 만족하기 위해서는 이방성에너지  $K_u$ 는 0.076 meV/atom 이상이어야 한다. 성능(에너지적)을 향상시키기 위해 자기모멘트가 증가시키면 자성정도  $\kappa$ 를 일정하게 유지하기 위해서는 이방성에너지는 자기모멘트의 제곱으로 증가하여야하기 때문에 자기모멘트가 클수록 hard 소재가 되는 조건인  $\kappa \geq 1$  을 만족시키기가 점점 어려워진다. 제일원리계산에 의한 3d 전이원소를 기반으로 한 비희토류 영

Table II. Possible contribution to the magnetization and the sign of the atomic quadruple moment Q of magnetic 3d elements [18].

	Cr	Mn	Fe	Co	Ni
M (kA/m)	0.33	0.59	1.76	1.44	0.52
Q	+	-	-	+	+

구자석 소재 탐색은 자화를 높이는 소재를 찾기 보다는 자기이방성 높이기 위한 노력이 필요하다. Fig. 2에 의하면 Fe-V, Fe-Cr 합금으로도 Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 성능의 반 이상이 될 수 있고 포화자화가 줄어 들 것으로 예상되는 스핀-궤도 작용이 센 Cu나 Zn[20] 등을 첨가된 소재에 대한 탐색도 필요하다.

어떤 원소끼리 합금을 하여야 영구자석에 적합한 소재를 얻을 수 있는지에 대한 직관을 얻기 위해 Table II와 III은 원소의 포화자화와 원자 사중극자 모멘트의 부호를 나타내었다. 강자성인 원소는 밑줄을 그어 표시하였다. 합금의 구성이 사중극자 모멘트의 부호가 다른 원소로 이루어지면 한 원소의 자기이방성을 다른 한 원소가 상쇄하는 효과가 있어 합금 구성 원소로 서로 피하는 것이 좋다. 예로 Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B의 Nd와 Fe는 같은 음의 부호를, SmCo<sub>5</sub>의 Sm과 Co는 같은 양의 부호를 갖고 있다. 제일원리계산으로 보자력이 높은 소재를 탐색할 때 우선적으로 사중극자 모멘트의 부호가 같은 원소로 구성할 필요가 있다.

#### IV. 맺음말

1980년대에 현재 최고 수준의 Nd-Fe-B 영구자석 소재가 개발된 이후 새로운 영구자석 소재를 찾지 못하고 있다. 최근 소재의 중요성이 세계적으로 대두되고 있고 희토류 원소는 그 희극성과 국지성으로 더욱 주요 관심이 대상이 되고 있다. Nd-Fe-B 영구자석의 성능을 증가하거나 희토류 원소 사용하지 않고 가격이 싼 3d 자성 원소로 이루어진 소재로 Nd-Fe-B 영구자석 성능에 근접하면서도 ferrite 영구자석과의 가격 경쟁력이 있는 소재의 개발이 절실히 요구되고 있다. 전 기자동차, 풍력 발전 등 에너지 환경 관련 문제에 대한 세계적인 관심이 높아지면서 각국이 새로운 영구자석 소재에 대한 연구에 심혈을 기울이고 있다. 그럼에도 불구하고 성능 혹은 가격 경쟁력이 있어 현실에 적용할 수 있는 소재를 아직은 발굴하지 못했다고 할 수 있다.

본 논문에서는 제일원리계산으로 영구자석 소재를 탐색하

Table III. Possible contribution to the magnetization and the sign of the atomic quadruple moment Q of magnetic 4f elements [18].

	Ce	Pr	Nd	Sm	<u>Gd</u>	<u>Tb</u>	<u>Dy</u>	<u>Ho</u>	<u>Er</u>	Tm	Yb
M (kA/m)	0.59	0.89	0.93	0.20	2.03	2.69	3.06	3.08	2.80	2.18	1.26
Q	-	-	-	+	-	-	-	-	+	+	+

는 데 있어 고려하여야 할 물리량에 대해 논의하여 보았고 탐색 방향을 제시하여 보았다.

### 감사의 글

이 논문은 정부(과학기술정보통신부)의 재원으로 한국연구재단-미래소재디스커버리사업의 지원을 받아 수행된 연구임 (NRF-2016M3D1A1027831).

### References

- [1] R. Skomski and J. M. D. Coey, *Scr. Mater.* **112**, 3 (2016).
- [2] R. W. McCallum, L. Lewis, R. Skomski, M. J. Kramer, and I. E. Anderson, *Ann. Rev. Mater. Res.* **44**, 451 (2014).
- [3] D. Li, D. S. Pan, S. J. Li, and Z. D. Zhang, *Sci. China Physics, Mech. Astron.* **59**, 1 (2016).
- [4] Y. Hirayama, Y. K. Takahashi, S. Hirosawa, and K. Hono, *Scr. Mater.* **138**, 62 (2016).
- [5] R. C. Pullar, *Prog. Mater. Sci.* **57**, 1191 (2012).
- [6] W. Korner, G. Krugel, and C. Elsasser, *Sci. Rep.* **6**, 24868 (2016).
- [7] H.-R. Cha, Y.-K. Baek, and J.-G. Lee, *J. Korean Magn. Soc.* **29**, 98 (2019).
- [8] K. M. Kim, H. W. Kwon, J. G. Lee, and J. H. Yu, *J. Magn.* **20**, 21 (2015).
- [9] K. M. Kim, M. S. Kang, H. W. Kwon, T. H. Kim, C. W. Yang, J. G. Lee, and J. H. Yu, *J. Magn.* **23**, 274 (2018).
- [10] J. M. D. Coey, *Magnetism and magnetic materials*, Cambridge University Press (2010).
- [11] N. Kim, H.-S. Han, and K.-S. Lee, *J. Korean Magn. Soc.* **28**, 205 (2018).
- [12] A. I. Liechtenstein, M. I. Katsnelson, V. P. Antropov, and V. A. Gubanov, *J. Magn. Magn. Mater.* **67**, 65 (1987).
- [13] S. V. Halilov, H. Eschrig, A. Y. Perlov, and P. M. Oppeneer, *Phys. Rev. B* **58**, 293 (1998).
- [14] P. Novák and J. Ruzs, *Phys. Rev. B* **71**, 184433 (2005).
- [15] R. M. Bozorth, *Ferromagnetism* (Van Nostrand Reinhold Inc., U.S, 1951).
- [16] R. S. Sundar and S. C. Deevi, *Int. Mater. Rev.* **50**, 157 (2005).
- [17] D. Odkhuu and S. C. Hong, *Phys. Rev. Appl.* **11**, 054085 (2019).
- [18] J. M. D. Coey, *IEEE Trans. Magn.* **47**, 4671 (2011).
- [19] Y. Yang, J.-W. Kim, P.-Z. Si, H.-D. Qian, Y. Shin, X. Wang, J. Park, O. L. Li, Q. Wu, H. Ge, and C.-J. Choi, *J. Alloys Compd.* **769**, 813 (2018).
- [20] K. V. Shanavas, Z. S. Popović, and S. Satpathy, *Phys. Rev. B* **90**, 165108 (2014).