論
Paper
説

不可逆減磁率の改善された
低Nd系希土類ボンド磁石

小山恵史*1, 西尾孝幸*2, Viswanathan Panchanathan*3

Low Rare-Earth Nd-Fe-B Bonded Magnets with Improved
Irreversible Flux Loss

Shigenobu Koyama, Takayuki Nishio, and Viswanathan Panchanathan

Synopsis

Isotropic bonded magnets made of rapidly quenched Nd-Fe-B powder (MQP-B powder) are widely used in various applications because of their superior magnetic properties and shape flexibility. However, it is not so easy to obtain fully magnetized magnets when a multipole magnetizing is necessary. Bonded magnets made of row rare-earth Nd-Fe-B powder (MQP-Q powder) show superior magnetizability to that of those made of MQP-B powder, because of the lower value of H_d . Therefore, the magnets seem to be suitable for applications where full magnetization is difficult. However, the irreversible flux losses of the bonded magnets made of MQP-Q powder are higher than that of bonded magnets made of MQP-B powder. Therefore, it is necessary to improve the irreversible flux loss in order to adapt these magnets to various applications.

The effects of Nb addition on magnetic properties and irreversible flux loss were studied on bonded magnets with composition of $Nd_8Fe_{86-x}B_6Nb_x$, where $x = 0 - 3$. An irreversible flux loss was measured at $P_c = 2$ after exposure at 393 K for 3.6 ks in air. It was found that the Nb addition of 2 at.% or more decreased the irreversible flux loss. The value was less than 5 %, similar to that obtained with MQP-B magnets. B_r decreased with the increase in Nb content. The effect of Nd content on the magnetic properties and irreversible flux loss was also studied on the bonded magnets with compositions of $Nd_xFe_{92-x}B_6Nb_2$, where $x = 6 - 8$. The bonded magnet with the optimum composition of $Nd_{6.5}Fe_{85.5}B_6Nb_2$ had B_r similar to that of MQP-Q magnets that did not contain Nb, and the value of irreversible flux loss was comparable to that of MQP-B magnets. A multipole magnetizability test on the bonded magnets with the above optimum composition was

1998年8月7日受付

*1 (株) ダイドー電子(Daido Electronics Co., Ltd.), *2 大同特殊鋼(株) 技術開発研究所, 工博(Dr., Eng., Research & Development Lab., Daido Steel Co., Ltd.), *3 Ph. D., Research & Development, Magnequench International, Inc.

1. はじめに

磁石粉末とバインダ樹脂との混合物を成形硬化させることにより得られる磁石はボンド磁石と呼ばれている。ハードディスク(HDD)やCD-ROMのディスク回転用モータに使用される高性能ボンド磁石では、磁石粉末としてNd-Fe-B系の急冷粉が主に用いられている。この急冷粉はMagnequench Internatioal社(MQI社)より供給されている。代表的な粉末はMQP-B粉(商品名)であり、その組成は $\text{Nd}_{12}\text{Fe}_{77}\text{Co}_5\text{B}_6$ で表される。粉末の主相は $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ という組成式で表される金属間化合物であり、その結晶粒径は40~60 nm程度である。MQP-B粉を圧縮成形して得られるボンド磁石は、約80 kJ/m³の最大エネルギー積 $((BH)_{\text{max}})$ と約800 kA/mの固有保磁力(H_{ci})を有し、上述のように各種OAモータに使用されている。

Nd-Fe-B系急冷粉の一つのバリエーションとして近年注目されているものに、低Nd系の急冷粉がある^{1)~3)}。これらの急冷粉は1種以上の硬質磁性相(以下これをハード相と呼ぶ。)と1種以上の軟質磁性相(以下これをソフト相と呼ぶ。)の微細な結晶粒(結晶粒径:20~40 nm)から構成されている。これまでに2種類の異なるタイプの合金系が見いだされている。1つはハード相が $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 、ソフト相が $\gamma\text{-Fe}$ および Fe_3B である合金系であり、典型的な組成は $\text{Nd}_4\text{Fe}_{78}\text{B}_{18}$ である^{1),2)}。もう1つはハード相が $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 、ソフト相が $\gamma\text{-Fe}$ である合金系であり、典型的な組成は $\text{Nd}_8\text{Fe}_{86}\text{B}_6$ である³⁾。後者の急冷粉はMQP-Q粉という商品名でMQI社より供給されている。

低Nd系急冷粉の特徴は、磁氣的に等方性でありながら高い残留磁化(B_r :0.9-1.2T)を有することと、固有保磁力(H_{ci})がMQP-B粉に比べて低い(約320 kA/m)ことである。高い B_r が得られる理由は、微細な結晶粒を有するソフト相とハード相の間に働く交換相互作用によるものと説明されている⁴⁾。すなわち、両相の界面を通して、交換相互作用によりソフト相の磁気モーメントがハード相の磁気モーメントと平行に結合するため、相互作用の無い場合に比べて高い B_r が得られるという考え方である。このモデルでは異方性の材料をベースとしており、実際の材料は等方性であることを考えると、異方性を仮定したモデルとの定量的一致は難しいが、定性的には現象をよく説明しているものと考えられている。また、 H_{ci} が $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 単相の急冷粉に比べて低くなることも、ソフト

相の存在により、系全体の平均的な磁気異方性エネルギーが低下すると考えることにより定性的には理解できる。一般に等方性ボンド磁石の着磁性は H_{ci} とよい相関があり、限度はあるものの、 H_{ci} が低いほど優れている。その結果、これらの急冷粉より得られるボンド磁石は、MQP-B粉を用いたボンド磁石に比べて、低い着磁磁界でも優れた着磁性を示す。そのため、高い磁界の発生が困難な多極着磁を必要とするステッピングモータなどへの適用が期待されている。

低Nd系急冷粉を用いたボンド磁石の欠点として、不可逆減磁率がMQP-B粉によるボンド磁石のそれに比べて悪いことが挙げられる^{3),5)}。ここで、不可逆減磁率とは、着磁した磁石を所定の温度で加熱保持した後に、室温に冷却した場合に生ずる磁束の低下率である。従って、低Nd系の急冷粉を種々の用途で使用するためには、得られるボンド磁石の不可逆減磁率を改善する必要がある。

$\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ と Fe_3B および $\gamma\text{-Fe}$ とから成る合金系の場合には、Crの添加がボンド磁石の不可逆減磁率の改善に有効であることが報告されている⁵⁾。これに対して、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ と $\gamma\text{-Fe}$ より成る合金系(MQP-Q粉)の場合には、この種の研究報告はまだ成されていない。しかし、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ を主成分とする類似の急冷粉(MQP-A粉)に対する筆者らの研究により、少量のNbの添加によりボンド磁石の不可逆減磁率が著しく改善されることが見いだされている^{6),7)}。従って、本系合金すなわちMQP-Q粉においても、Nbの添加がボンド磁石の不可逆減磁率の改善に有効であることが推測される。

本研究の目的は、MQP-Q粉の組成を最適化することにより、得られるボンド磁石の室温での磁気特性を損なうことなく、その不可逆減磁率をMQP-B粉と同等のレベルに改善することである。そのために、磁気特性および不可逆減磁率に及ぼすNbならびにNdの効果を調べた。その結果、所期の特性を有するボンド磁石の開発に成功したのでその結果を報告する⁸⁾。加えて、リング形状のボンド磁石についてラジアル方向での多極着磁試験を行い、モータへの応用の可能性を検討した。

2. 実験方法

本研究で用いた成分系は $\text{Nd}_x\text{Fe}_{(94-x-y)}\text{B}_6\text{Nb}_y$ で表される。ここでNd量は6 at.%から8 at.%の間で変化させNb量は0 at.%から3 at.%の間で変化させた。出発原料であるNd,

FeおよびBを所定量秤量した後、高周波誘導溶解法により超急冷用の母合金を作製した。得られた母合金を、アルゴン雰囲気中で単ロール液体急冷法により超急冷し、薄帯状の試料を得た。その際、必要に応じてロール周速度を14 m/sから22 m/sの間で変化させ、各組成ごとに最も高い磁気特性が得られる様ロール周速度を選定した。得られた急冷薄帯は乳鉢を用いて300 μ m以下の粉末に粉砕した。これらの粉末に、結晶化のための熱処理をアルゴン雰囲気中にて施した。最適結晶化条件も成分により異なることが予想されるため、必要に応じて953 Kから1033 Kの温度で保持し、最も高い特性が得られる条件を選定した。保持時間は600 sとした。熱処理後の粉末に2 wt%のエポキシ樹脂をバインダとして添加混合した後、1 GPaの成形圧力にて圧縮成形を行った。この成形体にもアルゴン雰囲気中にて423 K $\times$ 3.6 ksの硬化処理を施し、ボンド磁石を得た。作製したボンド磁石の形状は直径10 mm、高さ7 mmの円柱状であり、高さ方向のパーミアン係数 P_c は2である。これに加えて、外径23.0 mm、内径20.9 mm、高さ11.8 mmのリング状圧縮成形ボンド磁石を同一条件で作製し、多極着磁試験用の試料とした。

円柱状ボンド磁石の室温での磁気特性は、B-Hカーブトレサを用いて測定した。試料は測定前に予め3.2 MA/mのパルス磁界にて着磁した。円柱状のボンド磁石試料($P_c=2$)を393 Kの大気中で3.6 ks加熱し、室温まで冷却した後、不可逆減磁率を測定した。本研究では不可逆減磁率の算出は下記の式を用いて行った。通常計算結果は負数で得られるが、慣例に従い、表に記す場合には正数とした。

不可逆減磁率 (%) = [(加熱後の室温での磁束 -

加熱前の室温での磁束) / 加熱前の室温での磁束] $\times$ 100

多極着磁特性を評価するために、リング形状のボンド磁石の外周に対して、種々の着磁磁界にてラジアル着磁を行った。着磁極数は48極である。着磁後の試料の磁束をサーチコイルを用いて測定した。さらに、所定の条件で着磁されたリング形状のボンド磁石を、333 Kから393 Kの温度の大気中で3.6 ks加熱した後、室温にて不可逆減磁率を測定した。

3. 実験結果および考察

$\text{Nd}_8\text{Fe}_{(86-x)}\text{B}_6\text{Nb}_x$ 組成のボンド磁石において、Nb量を変化させた場合の B_r 、 H_{ci} および $(BH)_{\max}$ の変化をFig.1に示

Fig. 1. Variation in B_r , H_{ci} , and $(BH)_{\max}$ of bonded magnets as a function of Nb content with compositions of $\text{Nd}_8\text{Fe}_{(86-x)}\text{B}_6\text{Nb}_x$.

す。この実験では、いずれの組成においても急冷時のロール周速度は22 m/s、熱処理温度は973 Kとし、個別の組成に対する急冷条件および熱処理条件の最適化は行わなかった。ボンド磁石の B_r および $(BH)_{\max}$ はNb量の増加とともに単調に減少するのに対して、 H_{ci} はNb量の増加とともに高くなるが見いだされた。Fig.2には、Nb量に

Fig. 2. Variation in irreversible flux loss of bonded magnets

Table 1. Room-temperature magnetic properties and irreversible flux loss of bonded magnets with compositions of

Composition (at.%)	B_r (T)	H_{ci} (Ka/m)	$(BH)_{max}$ (kJ/m ³)	Density (Mg/m ³)	Irreversible flux loss (%)
Nd ₈ Fe ₈₆ B ₆ (MQP-Q)	0.71	310	54	5.9	16.1
Nd ₈ Fe ₈₅ B ₆ Nb ₁	0.67	340	50	5.9	9.8
Nd ₈ Fe ₈₄ B ₆ Nb ₂	0.64	370	44	6.0	7.9
Nd ₈ Fe ₈₃ B ₆ Nb ₃	0.60	420	37	5.9	3.4
Nd ₁₂ Fe ₇₇ Co ₅ B ₆ (MQP-B)	0.69	720	78	5.9	4.5

対する不可逆減磁率の変化が示されている．それによれば，ボンド磁石の不可逆減磁率はNb量の増加とともに減少（改善）されることがわかる．Nb量が3 at.%の合金薄帯を用いて作製したボンド磁石において，3.4 %の不可逆減磁率が得られた．この実験で得られた種々の数値はTable 1にまとめて示されている．なおTable 1の最下段にはMQP-B粉を使用したボンド磁石で得られた結果も合わせて示されている．

Table 1に示す結果から，MQP-Q組成をベースとする合金にNbを添加することにより，得られるボンド磁石の不可逆減磁率が改善されることがわかる．しかし，Nb添加により，ボンド磁石の B_r および $(BH)_{max}$ は低下し， H_{ci} が増加する．このことはこの材料の特長である高い B_r ならびに優れた着磁性が損なわれることを意味する．そこで，これらを改善するために，所定のNbを含有した合金系について，Nd量とボンド磁石の磁気特性および不可逆減磁率との関係を調べた．Nbの添加量は B_r ， H_{ci} （＝着磁性）および不可逆減磁率のバランスにより決定されるが，Table 1の結果に基づけば，優れた着磁性を維持するのに必要な400 kA/m以下の H_{ci} を確保できるNb量は2 at.%以下であり，その中で不可逆減磁率がMQP-B粉のそれに近い組成は2 at.% Nbである．そこでNb添加量を2 at.%に固定したNd_xFe_(92-x)B₆Nb₂組成の合金系について調べた．ここで，Nd量は6，6.5，7および8 at.%とした．

Fig.3には最適の急冷条件および熱処理条件で得られた薄帯を用いて作製した円柱状ボンド磁石の， B_r ， H_{ci} および $(BH)_{max}$ に及ぼすNd量の効果を示す．Nd量の変化にともなう B_r の値の変化は小さく，得られた値はMQP-Q粉のそれとほぼ同等である． H_{ci} はNd量の低下とともに単調に減少する．Fig.4にはNd量の変化にともなうボンド磁石の不可逆減磁率の変化を示す．Nd量が6.5 at.%から8 at.%の間では，不可逆減磁率は約5 %程度の値で安定しているが，Nd量が6 at.%まで低下すると，不可逆減磁率

Fig. 3. Variation in B_r , H_{ci} , and $(BH)_{max}$ of bonded magnets as a function of Nd content with compositions of Nd_xFe_(92-x)B₆Nb₂.

Fig. 4. Variation in irreversible flux loss of bonded magnets as a function of Nd content with compositions of

Table 2. Room-temperature magnetic properties and irreversible flux loss of bonded magnets with compositions of

Composition (at.%)	B_r (T)	H_{ci} (Ka/m)	$(BH)_{max}$ (kJ/m ³)	Density (Mg/m ³)	Irreversible flux loss (%)
Nd ₈ Fe ₈₄ B ₆ Nb ₂	0.67	454	51	5.9	4.8
Nd ₇ Fe ₈₅ B ₆ Nb ₂	0.67	422	51	5.9	4.5
Nd _{6.5} Fe _{85.5} B ₆ Nb ₂	0.69	382	50	5.9	5.0
Nd ₆ Fe ₈₆ B ₆ Nb ₂	0.68	318	44	5.9	7.0
Nd ₁₂ Fe ₇₇ Co ₅ B ₆ (MQP-B)	0.69	720	78	5.9	4.5

は7 %まで悪化する．得られた種々の数値はTable 2にまとめて示されている．

Table 1およびTable 2に示した結果から，MQP-B粉と同等の B_r および不可逆減磁率を有し，400 kA/m以下の H_{ci} が達成される組成（最適組成）はNd_{6.5}Fe_{85.5}B₆Nb₂であることが判明した．Nbを添加することにより不可逆減磁率が改善される理由は現在の所明らかではない．これを明らかにするためには，本系合金中に存在する磁区の熱揺らぎ挙動を観察する必要があるものと思われる．

実用磁石としての可能性を調べるために，最適組成の薄帯を用いて作製したリング形状のバンド磁石について，外周側に48極のラジアル多極着磁を行い，着磁性と不可逆減磁率を測定した．Fig.5はバンド磁石の全磁束の着磁電流依存性を示す．なお，本実験では多極着磁における着磁磁界を正確に求めることが困難であったの

で，着磁ヨークに流れた電流で着磁磁界を便宜的に表すこととした．Fig.5より明らかなように，バンド磁石の全磁束は着磁電流の増加とともに単調に増加する．このことは，本実験の着磁電流の範囲では，試料は十分に飽和まで着磁されていないことを示す．最適組成，すなわちNd_{6.5}Fe_{85.5}B₆Nb₂組成の合金薄帯より得られたバンド磁石の全磁束は，すべての電流値でMQP-B粉によるバンド磁石のそれを上回っており，特に本磁石の量産着磁条件である着磁電流9 kAの場合には，約10 %ほど高い値を示す．この事実は，最適組成合金より得たバンド磁石がMQP-B粉より得られたバンド磁石に比べて優れた着磁性を有することを示す．

Fig.5で示した3種類の組成のバンド磁石に対して，不可逆減磁率の温度依存性を比較した結果をFig.6に示す．着磁電流は9 kAである．393 Kで3.6 ksの加熱保持を行っ

Fig. 5. Variation in total flux of bonded magnets as a function of magnetizing current.

Fig. 6. Variation in irreversible flux loss of the bonded magnets as a function of exposure temperature.

た場合の不可逆減磁率を比較すると，MQP-Q粉（Nbを含まない）によるボンド磁石のそれが約16 %であるのに対して，最適組成のボンド磁石のそれは約8 %とほぼ半減しており，MQP-B粉によるボンド磁石で得られる値（6-7%）とほぼ同等の値となっている．

4．まとめ

$\text{Nd}_x\text{Fe}_{(94-x-y)}\text{B}_6\text{Nb}_y$ で表される合金薄帯から成るボンド磁石を作製し，その磁気特性と不可逆減磁率に及ぼすNbおよびNd量の効果を調べた．高い磁気特性と優れた不可逆減磁率が同時に得られる組成は， $\text{Nd}_{6.5}\text{Fe}_{85.5}\text{B}_6\text{Nb}_2$ であることが判明した．パーミアンス係数が2である円柱状のボンド磁石を飽和着磁した後，393 Kで3.6 ksの加熱保持を行った場合の不可逆減磁率は約5 %であり，MQP-B粉によるボンド磁石のそれにほぼ匹敵する値が得られた．外径23 mm，内径20.9 mm，高さ11.8mmのリング磁石を用いて外周48極のラジアル着磁試験を行ったところ，従来材であるMQP-B粉製のボンド磁石に比較して，標準着磁条件において約10 %高い磁束が得られた．これらの事実は，MQP-Q粉に対する今回の成分改良により，実用材として十分に機能するボンド磁石が得られたことを示すものといえる．

（文献）

- 1) R. Coehoorn, D. B. de Mooij, and C. de Waard : J. Magn. Magn. Mater., **80**(1989), 101
- 2) S. Hirose, H. Kanekiyo, and M. Uehara : J. Appl. Phys., **73**(1993), 6488
- 3) V. Panchanathan : IEEE Trans. Magn., MAG-**31**(1995), 3605
- 4) E. F. Kneller and R. Hawing : IEEE Trans. Magn., MAG-**27**(1991), 3588
- 5) S. Hirose and H. Kanekiyo : Proceedings of the 13th International Workshop on RE Magnets and Their Applications, (Birmingham, U. K., September 11-14, 1994), 87
- 6) Y. Kasai : Proceedings of the Gorham Advanced Materials Conference on NdFeB, RECo and REFeN Permanent Magnets, (Orlando, Florida, July 12-14, 1993)
- 7) 西尾孝幸：日本電子材料工業会マグネットセミナー概要集，(1996)
- 8) T. Nishio, S. Koyama, Y. Kasai, and V. Panchanathan : J. Appl. Phys., **81**(1997), 4447