Sm₂Co₁₇系磁石とアルニコV磁石の 経時変化

正 員 西 尾 博 明 (東英工業)

1. ま え が き

希土類磁石は永久磁石として優れた磁気特性を持っており、民生および産業用電子機器の小形、軽量、高性能化に大きく貢献している。か酷な条件の下に使用される電子機器の部品としての信頼性を得るためには、永久磁石は長時間にわたり磁氣的に安定でなければならない。永久磁石の磁氣的安定性は主として温度特性と経時変化に分けられる。可逆温度変化の補償には整磁鋼を使用し、経時変化に対しては着磁後あらかじめ磁界や熱を加えることによって、人工的に必要最小限の安定化減磁を施して使用されていることは良く知られている。

永久磁石の経時変化は、熱ゆらぎ余効定数 S_v と不可逆磁化率 X_{irr} に依存することが知られている⁽¹⁾⁻⁽⁴⁾。熱ゆらぎ余効による磁化の時間的変化量 ΔJ は、一般に次式で表される。

$$\Delta J = X_{irr} H_K \dots\dots\dots (1)$$

$$H_K = S_v (Q + \ln t) \dots\dots\dots (2)$$

ここで、 H_K は余効磁界⁽³⁾⁽¹³⁾、 t は経過時間を示し、 Q は定数である。

アルニコ磁石に関して、長期にわたる経時変化の研究は Kronenberg 氏⁽⁵⁾、河野氏と山川氏⁽⁶⁾⁻⁽⁸⁾の報告があり、 S_v の研究は Street 氏⁽⁹⁾⁻⁽¹¹⁾、Barbier 氏⁽¹²⁾と山田氏⁽³⁾⁽⁴⁾⁽¹³⁾の報告がある。

一方、希土類磁石では SmCo₅ 系に関して Strnat 氏⁽¹⁴⁾⁻⁽¹⁷⁾による多くの経時変化の研究報告と Hahn 氏⁽¹⁸⁾⁽¹⁹⁾や山田氏⁽²⁰⁾による S_v に関する研究報告があるが、Sm₂Co₁₇系磁石に関する長期にわたる経時変化と S_v の研究報告は少ない。

本論文では、最近多く使用されている Sm₂Co₁₇系磁石と従来の代表的なアルニコV磁石を比較し、着磁

後の自然放置とパルス磁界による安定化減磁を施した場合の 3~4 年間の室温における経時変化を詳細に測定し、対数法則の成立する期間と永久減磁の有無を確認した結果を述べる。また、磁界による最適安定化条件については、経過時間 t の対数値 $\ln t$ に対する有限な寸法比の試料の磁化の変化(余効量) $\Delta J'/\ln t$ が見掛けの余効磁界 H'_K (反磁界を補正していない場合はダッシュを付けて表すことにする)を越えた外部磁界 H_{ex} においては本来 H_{ex} に依存した値を有するので、この H'_K に相当する磁界を与えて減磁すれば安定化すると考えられる。本実験においては、 H_{ex} に対する $\Delta J'/\ln t$ 、見掛けの不可逆磁化率 X'_{irr} および H'_K を待ち時間 1000 秒で測定し、 S'_v と長時間における H'_K を算出した。この H'_K の値がパルス磁界による減磁後の長期にわたる安定性確保に必要な減磁界にはほぼ一致することを確認したので、これらの結果について報告する。

2. 実験方法

本実験に用いたアルニコV磁石は市販の MCB-500 相当品であり、Sm₂Co₁₇系磁石は東芝とセイコーエプソンによって提供されたものである。これらの永久磁石の磁気特性を表1に示す。各実験における測定温度は $24 \pm 1.5^\circ\text{C}$ であった。着磁には立上り時間 3.2 ms、半値幅 8 ms、実効最大磁界 4,600 kA/m のパルス磁界を用いた。

表 1 実験に用いた永久磁石の磁気特性

Table 1. Magnetic properties of permanent magnets used for experiment.

材 質	磁気特性 B_r (T)	H_{CB} (kA/m)	H_{CJ} (kA/m)	$(BH)_{max}$ (kJ/m ³)
アルニコV磁石 (MCB-500)	1.24	50.6	50.9	42
Sm ₂ Co ₁₇ 系 焼 結 磁 石	0.96	524	553	180
Sm ₂ Co ₁₇ 系 樹脂結合磁石 (圧縮成形法)	0.81	494	740	116

Time Dependence of Magnetization in Sm₂Co₁₇ Magnets and Alnico V Magnet. By Hiroaki Nishio, Member (TOEI Industry Co., Ltd).
西尾博明: 正員, 東英工業株式会社

〈2・1〉 長期経時変化の実験方法 アルニコ V 磁石

石は $\phi 10 \times 10$ mm (パーミアンス係数 $P_c = 3.5$), $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 系磁石は $\phi 10 \times 7$ mm ($P_c = 2$) および $\phi 10 \times 2$ mm ($P_c = 0.5$) を用いた。いずれもまだ磁化されたことがない円柱状の試料である。これらの試料は磁氣的相互干渉を避けるために、試料間隔を 20 cm 以上離して保管した。放置温度は $P_c = 0.5$ の試料については $24 \pm 3^\circ\text{C}$ に管理し、 $P_c = 3.5$ および 2 の試料は最初の約 3,000 時間までは $3 \sim 30^\circ\text{C}$ に放置したが、その後は $24 \pm 3^\circ\text{C}$ にした。パルス磁界による減磁は、開路磁束減少率 (%) がパルス磁界の印加回数に対してほぼ一定となる 3 回とした。試料の磁石の磁束変化の測定には、電圧一周波数変換方式のデジタル磁束計 (4 けた表示, 感度 1×10^{-6} Wb) と試料自動掃引装置を用い、試料と同一温度条件下で常時電源を入れたままでドリフトを管理し、試料を一定速度 (2.8 mm/s) で検出コイル内を通過させ、20 回の平均を求めた。デジタル磁束計は標準電圧発生器により測定ごとに校正をした。

〈2・2〉 熱ゆらぎ余効定数 S_v と余効磁界 H_K の実験方法 S_v と H'_K の測定には、直径 3.6~4.9 mm の球状試料 ($P_c = 2$) と $\phi 10 \times 2$ mm の円柱状試料を用いた。 H_{ex} を一定に保持したときのわずかな見掛けの余効量 $\Delta J'$ は、安定性と再現性を考慮した振動試料形磁力計、応答速度が早い電磁石用定電流電源と GP-IB インターフェイスを付属させたパーソナルコンピュータを組合せて測定した。 S_v および H'_K の測定方法は次の通りである。図 1 に示すように、減磁曲線上で H_{ex} をある磁界 H_A に保持し、A 点から B 点までの磁化の変化 ($J'_A - J'_B$) を 3~1,000 秒間測定して、その磁化変化の量を $\Delta J' (1)$ とする。その直

図 1 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 系焼結磁石の磁気余効量と外部磁界の関係

Fig. 1. Relationship between magnetic aftereffect of $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ sintered magnet and external field.

図 2 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 系焼結磁石の対数時間に対する磁気余効

Fig. 2. Magnetic aftereffect to the logarithmic time of $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ sintered magnet.

後に H_{ex} を H_A から H_D まで ΔH だけ変化させて減磁曲線上のある点 D で H_{ex} を保持し、D 点から E 点までの磁化の変化 ($J'_D - J'_E$) を前と同じ時間だけ測定して、その磁化変化の量を $\Delta J' (2)$ とする。 $H_{ex} = -239$ kA/m, $\Delta H = -80$ kA/m における $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 系焼結磁石 (球) の実測例を図 2 に示す。 H_{ex} を H_D から H_A まで ΔH だけ戻して、EF 間の磁化の差 ($J'_F - J'_E$) を測定すれば、見掛けの可逆微分磁化率 X'_{rev} が求められる。見掛けの全微分磁化率 X'_{tot} は減磁曲線を H_{ex} で微分した値を用いた。見掛けの不可逆磁化率 X'_{irr} は ($X'_{tot} - X'_{rev}$) となる。

一般には、反磁界係数が N である有限な寸法比の試料の磁気余効はある時刻 t_1, t_2 における磁化の値を J'_1, J'_2 とすれば、

$$\begin{aligned} \Delta J' &= J'_1 - J'_2 \\ &= X'_{irr} S'_v (\ln t_1 - \ln t_2) \end{aligned} \quad (3)$$

と表すことができる。可逆磁化率 X_{rev} は、

$$X_{rev} = X'_{rev} / (1 - N X'_{rev}) \quad (4)$$

で求められるので、 S_v は次式の如く計算される⁽²¹⁾。

$$S_v = \frac{\Delta J'}{X'_{irr} (\ln t_1 - \ln t_2)} \times \frac{1}{1 + N X_{rev}} \quad (5)$$

一方、見掛けの余効磁界 H'_K は次式で表される。

$$H'_K = S'_v (Q + \ln t) \quad (6)$$

よって、余効磁界 H_K は次式で求められる⁽¹³⁾。

$$H_K = H'_K / (1 + N X_{rev}) \quad (7)$$

H'_K を越えた H_{ex} において、余効量 $\Delta J' / \ln t$ は H_{ex} に依存した値を有する。 H'_K は次のようにして実験によって求めた。減磁曲線上の各点における $\Delta J' (1) / (\ln t_1 - \ln t_2)$ を測定して ΔH を少しずつ増加させたときの $\Delta J' (2) / (\ln t_1 - \ln t_2)$ を求め、この二つの値が一致した ΔH を H'_K とした⁽¹³⁾⁽²²⁾。

図 3 アルニコ V 磁石 ($\phi 10 \times 10$ mm, $P_c = 3.5$) のパルス磁界による減磁後の経時変化

Fig. 3. Time dependence of magnetization after demagnetization by pulse field of Alnico V magnet ($\phi 10 \times 10$ mm, $P_c = 3.5$).

3. 実験結果および討論

〈3・1〉 アルニコ V 磁石の経時変化 動作点が H_{CB} に近い $\phi 10 \times 10$ mm の円柱状のアルニコ V 磁石について、着磁後の自然放置とパルス減磁界の大きさを変えた場合の約 4 年間の経時変化を図 3 に示す。自然放置の経時変化は、約 2,000 時間まで (3) 式の対数法則が成立している。6,000 時間後の再着磁では永久減磁はほとんどなく、初回と再着磁後の経時変化は良い一致を示している。パルス減磁界の大きさを増加させると、次第に経時変化が小さくなる傾向となるが、11.5 kA/m の場合は増進し、約 1 年後から減磁傾向を示している。本実験における最適安定化減磁界は約 8.3 kA/m であった。

直径 3.6 mm の球状試料を用いて、減磁曲線上で磁化 J' の変化が大きい 1.1 T 以下における H_{ex} に対する J' , X'_{irr} および $\Delta J' / (\ln t_1 - \ln t_2)$ を測定して S_v を求めた結果を図 4 に示す。 S_v は H_{ex} に対してわずかに変化し、 $(BH)_{max}$ 付近ではほぼ一定で、 $H_{ex} = 0$ における値は 150 A/m であった。同一試料を用いて $H_{ex} = 28$ kA/m ($P_c = 3.5$ 相当の動作点) における 1,000 秒での H'_K を測定したところ図 5 の如く 8.3 kA/m を得た。 Q 値を計算すると約 48 となる。この Q および S_v の値を用いて自然放置の経時変化が対数法則を満たす 2,000 時間での H'_K を計算すると約 9.7 kA/m となった。この値は図 3 における最適安定化減磁界条件とほぼ一致している。

〈3・2〉 Sm₂Co₁₇ 系焼結および樹脂結合形磁石の経時変化 減磁曲線上の動作点が $(BH)_{max}$ の前後で、磁化の変化が小さい $P_c = 2$ および磁化の変化が

図 4 アルニコ V 磁石 ($\phi 3.6$ mm 球, $P_c = 2$) の磁気余効

Fig. 4. Magnetic aftereffect of Alnico V magnet ($\phi 3.6$ mm sphere, $P_c = 2$)

図 5 アルニコ V 磁石 ($\phi 3.6$ mm 球, $P_c = 2$) の余効磁界 H_K

Fig. 5. Magnetic aftereffect field H_K of Alnico V magnet ($\phi 3.6$ mm sphere, $P_c = 2$).

図 6 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 系焼結磁石 ($\phi 10 \times 7 \text{ mm}$, $P_c=2$) のパルス磁界による減磁後の経時変化
Fig. 6. Time dependence of magnetization after demagnetization due to pulse field of $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ sintered magnet ($\phi 10 \times 7 \text{ mm}$, $P_c=2$).

図 7 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 系焼結磁石 ($\phi 10 \times 2 \text{ mm}$, $P_c=0.5$) のパルス磁界による減磁後の経時変化
Fig. 7. Time dependence of magnetization after demagnetization due to pulse field of $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ sintered magnet ($\phi 10 \times 2 \text{ mm}$, $P_c=0.5$).

図 8 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 系樹脂結合形磁石 ($\phi 10 \times 7 \text{ mm}$, $P_c=2$) のパルス磁界による減磁後の経時変化
Fig. 8. Time dependence of magnetization after demagnetization due to pulse field of $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ resin-bonded magnet ($\phi 10 \times 7 \text{ mm}$, $P_c=2$).

図 9 Sm₂Co₁₇ 系樹脂結合形磁石 (φ 10×2 mm, P_c=0.5) のパルス磁界による減磁後の経時変化
Fig. 9. Time dependence of magnetization after demagnetization due to pulse field of Sm₂Co₁₇ resin-bonded magnet (φ 10×2 mm, P_c=0.5).

比較的大きい P_c=0.5 の円柱状の Sm₂Co₁₇ 系磁石について、焼結および樹脂結合磁石をパルス磁界により着磁した後の自然放置とパルス磁界の大きさを変えて減磁した場合の経時変化を図 6～図 9 に示す。自然放置の経時変化において、対数法則を満たす期間は P_c=2 では約 700 時間、P_c=0.5 の場合は約 200 時間であった。6,000 時間後の再着磁によって、対数法則を満たす期間は約 2,000 時間に延長している。焼結磁石および P_c=2 の樹脂結合磁石の永久減磁は、わずかに 0.2% 程度であった。P_c=0.5 の樹脂結合磁石では約 0.6% であった。

パルス磁界による減磁後の経時変化は減磁界を増すと、P_c=2 ではいったん増磁した後に約 1 年後から減磁する。P_c=0.5 では経時変化が小さくなる傾向を示すが、約 50% も減磁を行わないと長期間の安定化は困難であり、磁界だけによる安定化処理法は実用的とは言えない。自然放置の経時変化が対数法則を満たす期間内における最適安定化減磁界の大きさは、焼結磁石では 119 kA/m 程度であり、樹脂結合磁石では P_c=0.5 の場合は 40 kA/m と 143 kA/m の中間程度で、P_c=2 では約 72 kA/m である。

φ 10×2 mm の円柱状試料を用いて H_{ex} に対する J', X'_{irr} と ΔJ/(ln t₁-ln t₂) を測定して S'_v を求めた。図 10 に示す如く焼結磁石の S'_v の値は H_{ex} に対してほぼ一定の 1.0～1.2 kA/m であった。樹脂結合磁石の S'_v は図 11 の如く、J' の変化がゆるやかな範囲では、一定の 1.6 kA/m であったが、J' の変化が大きい所では S'_v は H_{ex} に対して増加する傾向

図 10 Sm₂Co₁₇ 系焼結磁石 (φ 10×2 mm, P_c=0.5) の磁気余効

Fig. 10. Magnetic aftereffect of Sm₂Co₁₇ sintered magnet (φ 10×2 mm, P_c=0.5).

図 11 Sm₂Co₁₇ 系樹脂結合形磁石 (φ 10×2 mm, P_c=0.5) の磁気余効

Fig. 11. Magnetic aftereffect of Sm₂Co₁₇ resin-bonded magnet (φ 10×2 mm, P_c=0.5).

図 12 Sm₂Co₁₇ 系焼結磁石の余効磁界 H_K
Fig. 12. Magnetic aftereffect field H_K of Sm₂Co₁₇ sintered magnet.

図 13 Sm₂Co₁₇ 系樹脂結合形磁石の余効磁界 H_K
Fig. 13. Magnetic aftereffect field H_K of Sm₂Co₁₇ resin-bonded magnet.

であった。 $S'v$ の測定と同一試料 ($P_c=0.5$) と球状試料を用いて $H_{ex}=0$ における 1,000 秒での H'_K を測定したところ、焼結磁石では図 12 に示す如く、それぞれ 71 kA/m, 82 kA/m であった。樹脂結合磁石では、図 13 に示す如く 64 kA/m, 40 kA/m であった。 Q 値を計算すると、焼結磁石では約 60、樹脂結合磁石では 18~25 となる。

この Q 値および図 10、図 11 における $S'v$ の値を用いて自然放置の経時変化が対数法則を満たす期間、すなわち $P_c=0.5$ では 200 時間、 $P_c=2$ では 700 時間における H'_K を計算すると、焼結磁石ではそれぞれ約 85 kA/m, 約 79 kA/m となった。樹脂結合磁石ではそれぞれ約 72 kA/m, 約 54 kA/m となった。これらの H'_K の値は、図 6~図 9 における最適安定化減磁界の概略値とほぼ一致している。

4. ま と め

本論文では、アルニコ V 磁石および Sm₂Co₁₇ 系磁石の着磁後の自然放置とパルス磁界による安定化減磁を施した場合の 3~4 年間の経時変化および待ち時間 1,000 秒における熱ゆらぎ余効定数 Sv と余効磁界 H_K の測定結果について報告した。以下に得られた主要な結果を要約する。

(1) 着磁後の自然放置とパルス磁界による減磁後の長期にわたる経時変化は、Sm₂Co₁₇ 系焼結および樹脂結合磁石とアルニコ V 磁石では、異なっていない。

(2) Sm₂Co₁₇ 系磁石の着磁後の自然放置の初期における経時変化は、 P_c が小さいほど大きく、対数法則を満たす期間は P_c が大きいほど長い。

(3) 永久減磁は、アルニコ V 磁石ではほとんどなかったが、Sm₂Co₁₇ 系磁石ではわずかにあり、樹脂結合磁石では P_c が小さいほど多かった。

(4) パルス磁界による安定化減磁によって、約 1 年間は経時変化を十分に小さくし、安定化させることができた。 P_c が小さい場合は、減磁界を特に大きくする必要がある。あまり減磁界を大きくすると、いったん増磁傾向を示し、いずれの磁石でも約 1 年後から減磁してきた。

(5) 熱ゆらぎ余効定数 Sv は、永久磁石が一般に多く使用される $(BH)_{max}$ 付近では、外部磁界に依存せずに、ほぼ一定の値であった。

(6) 磁界による最適安定化減磁条件は、自然放置の経時変化が対数法則を満たす期間内では、余効磁界 H_K とほぼ一致し、短時間の測定により決定できることを確認した。

終りに、本研究を進めるにあたり、終始有益な御討論と御助言を賜った岡山大学理学部山田 幸教授に感謝の意を表します。

(昭和 61 年 6 月 10 日受付)

文 献

- (1) L. Néel: "Théorie du Trainage Magnétique des Substances Massives dans le Domaine de Rayleigh", *J. Phys. Rad.* 11, 49 (1950)
- (2) L. Néel: "Le Trainage Magnétique", *ibid.*, 12, 339 (1951)
- (3) O. Yamada: "Irreversible magnetische Nachwirkung und deren Einfluss auf den Verlauf der Magnetisierungskurve", *Z.f. Phys.* 142, 225 (1955)
- (4) A. Kussmann und O. Yamada: "Zur Definition und Bestimmung der Koerzitivkraft von Dauermagneten unter Berücksichtigung der irreversiblen Nachwirkung", *Arch. f. Elek.* 42, 237 (1956)
- (5) K. Kronenberg: "Alterungsuntersuchungen an stabförm-

- igen Dauermagneten bei verschiedenen Temperaturen", *Z. angew. Phys.*, **5**, 321 (1953)
- (6) 河野:「永久磁石合金の経時変化」, 計測, **6**, 8, 380 (1956)
- (7) 山川:「MK 系異方性磁石合金の磁気的安定性について」, 金属材料技術研究所研究報告, **4**, 2, 15 (昭 36)
- (8) 山川・河野:「MK 系異方性磁石合金の経時変化現象について」, 同上, **5**, 1, 8 (昭 37)
- (9) R. Street & J.C. Woolley: "A Study of Magnetic Viscosity", *Proc. Phys. Soc. A* **62**, 562 (1949)
- (10) R. Street, J.C. Woolley & P.B. Smith: "Magnetic Viscosity under Discontinuously and Continuously Variable Field Conditions", *ibid.*, **B65**, 679 (1952)
- (11) R. Street & J.C. Woolley: "A Comparison of Magnetic Viscosity in Isotropic and Anisotropic High Coercivity Alloys", *ibid.*, **69**, B12, 1189 (1956)
- (12) J.C. Barbier: "Le Trainage Magnétique de Fluctuation" *Ann. Phys. (Paris)* **9**, 84 (1954)
- (13) 山田:「強磁性材料における不可逆磁気余効」, 電学誌, **78**, 33 (昭 33)
- (14) H.F. Mildrum & K.J. Strnat: "Research to investigate the aging characteristics of samarium cobalt magnets", *Technical Report AFML-TR-74-50* (1974)
- (15) H.F. Mildrum, M.F. Hartings, K.D. Wong & K.J. Strnat: "An Investigation of the Aging of Thermally Prestabilized Sintered Samarium-Cobalt Magnets", *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-10**, 723 (1974)
- (16) H.F. Mildrum & K.J. Strnat: "Physical Properties of Rare Earth Cobalt Magnet (Alternator Service Aging Study)", *Technical Report AFML-TR-75-190* (1975)
- (17) H.F. Mildrum, K.D. Wong & K.J. Strnat: "Thermal Stability of Rare-Earth-Cobalt Permanent Magnets", *Proc. 2nd Int. Conf. on Advances in Magn. Mater. & their Applications*, 144 (1976)
- (18) A. Hahn & M. Paulus: "On the Magnetic Viscosity of SmCo₅", *Physics Letters* **44A**, 3, 219 (1973)
- (19) A. Hahn & M. Paulus: "Low Viscosity Coefficient Magnetic After-effect in Nickel and in SmCo₅", *Int. J. Magnetism* **6**, 167 (1974)
- (20) O. Yamada, M. Yamada & F. Ono: "Thermal Fluctuation After Effect in Samarium-Cobalt Magnets", *4th Int. Workshop on Rare Earth-Cobalt Permanent Magnets and Their Applications*, 241 (1979)
- (21) O. Yamada und H.D. Hahlbohm: "Über Methoden zur Bestimmung der Konstanten S_v der irreversiblen magnetischen Nachwirkung", *Z. angew. Phys.* **8**, 205 (1953)
- (22) 電気学会超高性能磁石調査専門委員会: 技術報告, 希土類コバルト磁石の現状と今後の問題点, 1部, 125, 46 (昭 53)