希土類磁石のヒステリシスと反磁界補正

Magnetic Hysteresis and Demagnetizing-Field Correction
for Rare Earth Magnet Materials

中川康昭・加藤宏朗*

東北工業大学, 仙台市太白区八木山香澄町 35-1 (〒982)

*東北大学金属材料研究所, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (〒980)

Y. Nakagawa and H. Kato*

Tohoku Institute of Technology, 35-1, Yagiyama-Kasumicho, Taihaku-ku, Sendai 982

*Institute for Materials Research, Tohoku Univ., 2-1-1, Katahira, Aoba-ku, Sendai 980

The standard method for measuring magnetization, using a closed magnetic circuit, is inapplicable to rare earth magnet materials with very high coercivity. An open magnetic circuit method in a steady high magnetic field is therefore examined, where a correction for a demagnetizing field is important. We measured hysteresis curves for some commercial rare earth magnet materials by using cylindrical samples with various dimension ratios. The correction for the demagnetizing field gives a reasonable result for bonded magnets, whereas even the intrinsic coercivity seems to depend on the sample shape for sintered magnets. Therefore, it is necessary to reconsider the correction for the demagnetizing field and also the standard specifications of rare earth magnet materials.

Key words: demagnetizing field, rare earth magnet, open magnetic circuit method, hysteresis curve

1. はじめに

最近の希土類磁石は保磁力および飽和磁化が大きいため, 材料の特性評価がむずかしい. 従来の工業規格で定

められている永久磁石試験法は鉄心電磁石を用いたループトレーサー法すなわち閉磁気回路法であり^{1), 2)}, 材料の保磁力が鉄心電磁石の発生磁界を上回る場合には適用できない. 超伝導マグネットや大電力水冷マグネットを用いれば磁界の強さは十分であるが, 試料振動法 (VSM) や磁気天秤のような開磁気回路法を用いる場合, 試料が極めて細長いものでない限り表面磁極による反磁界の影響が問題になる. すなわち, 外部から与える磁界を H_{app} とするとき実際に試料にかかる磁界 H_{eff} は

$$H_{eff} = H_{app} - NI \quad (1)$$

となる. ここで I は試料の磁化であり, N を反磁界係数という. cgs 非有理化単位系では球状の試料について $N/4\pi = 1/3$ になることはよく知られている. 磁石の特性にとって重要なのはヒステリシスの第2象限であり, そこでは反磁界の補正が不可欠である. (1) 式によれば I がゼロになるような磁界すなわち保磁力の値は N によらないはずであるが, 試料の内部の磁化が完全に一様でない場合には, 再検討する必要がある. 反磁界は, 試料の形状に依存するだけでなく, 試料の特性によって変わることも考えられる. そこで種々の磁石材料について,

Table 1 Rare earth magnet samples

	JH_c (kOe)	B_r (kG)	$(BH)_{max}$ (MGOe)
Bonded magnets			
Sm-Co anisotropic	9.4	7.5	12.7
Nd-Fe-B isotropic	9.4	6.7	9.4
Sintered magnets			
Sm-Co (Sm_2Co_{17} type) #1	9.8	10.8	27.3
Sm-Co (Sm_2Co_{17} type) #2	8.7	11.1	28.3
Sm-Co ($SmCo_5$ type)	19.2	8.6	18.1
Nd-Fe-B (high H_c type) #1	34.5	10.5	26.1
Nd-Fe-B (high H_c type) #2	30.1	10.4	25.8
Nd-Fe-B (low H_c type) #1	12.2	12.6	36.9
Nd-Fe-B (low H_c type) #2	11.5	12.3	34.6

Fig. 1 Saturated hysteresis loop for bonded rare earth magnets. (a) isotropic Nd-Fe-B magnet; (b) anisotropic Sm-Co magnet.

異なる形状の試料を用意し、十分強い磁界の下で開磁気回路法によるヒステリシスの測定を行った。これによって希土類磁石の特性評価の標準化に寄与することが本研究の目的である。

2. 実験方法

試料はメーカー数社から提供された円柱状の各種希土類磁石 (Sm-Co 系および Nd-Fe-B 系のボンド磁石および焼結磁石) であり、それぞれ長さを 4 mm に固定し、直径を 1 mm, 2 mm, 3 mm, 4 mm とした 4 種のものである。Table 1 はその材料の一覧表であり、この実験によって得られた主な特性すなわち (磁化の) 保磁力 H_c , 残留磁束密度 $B_r (=4\pi I_r)$ および最大エネルギー積 $(BH)_{\max}$ が付記されている。また、これらと全く同一形状の純 Ni 試料を用意し、磁化の絶対値の較正および反磁界の補正に用いた。純 Ni は磁氣的に十分軟らかいので、磁化曲線すなわち (1) 式の I 対 H_{app} 曲線の立ち上がりは $1/N$ の勾配をもつことになる。したがって同一形状の純 Ni についての実験によって N を求めることができるのである。しかしこのようにして求めた N の値にはいろいろな問題点があり、後で考察することにする。

磁界発生には東北大学金属材料研究所強磁場超伝導材料研究センターのハイブリッドマグネット³⁾ HM-2 を用いた。これは口径 52 mm の室温空間に 230 kOe の定常磁界を発生させる装置であり、現在の目的にはやや牛刀の感があるが、後で述べるように、十分な磁界均一性を確保するために効果的であった。

磁化測定には試料引抜法⁴⁾を用いた。普通の VSM は、試料駆動部に電磁力を利用しているため、ハイブリッドマグネットの近くの大きい漏洩磁界の影響を受けやすい

Fig. 2 Demagnetizing factors $N/4\pi$ for cylindrical samples. (b , length; a , diameter.)

が、試料引抜法は非磁性体のエアピストンで駆動されるので、その影響を全く受けない。また、4 個のエアピストンで 4 個の試料を次々に引き抜くことにより、4 個の試料の磁化曲線を 1 回の磁界スイープで測定することができる。ところで、ピックアップコイルを通して試料を引き抜くとき、その両端間の磁界は十分均一でなければならない。磁化曲線の第 2 象限の保磁力の近傍のように磁化曲線が急峻な場合には、特に均一な磁界が必要である。このハイブリッドマグネットは 80 kOe の大口径超伝導マグネットの内側に 150 kOe の大電力水冷マグネットを組み合わせたものであり、磁界の均一性は、前者のみの方が遙かによい。そこで、両者による強い磁界

で十分に飽和させて第1象限の磁化曲線を測定した後、第2象限では超伝導マグネットだけの磁界で測定を行った。それでも磁界は80 kOeに達するので、現在の目的には十分である。

なお小口径の超伝導マグネットを用いてVSMや試料引技法で磁化を測定するとき超伝導体による磁界遮蔽効果が測定結果に影響することがあるが、この測定に用いたような大口径の超伝導マグネットではその心配は全くない。しかし、ピックアップコイルの断面に比べて試料の断面が小さいことのために起こる還流磁束の問題は避けられない。そこで、試料と同一形状の純Ni試料の飽和磁化の値を用いて磁化の絶対値を校正した。極めて厳密なことを言えば、ヒステリシスの第2象限における磁化の不均一性が還流磁束の分布に影響することも考えられるが、そのことは一応無視することにした。

3. 実験結果

2種類のボンド磁石について得られた大ヒステリシス環線をFig. 1に示す。横軸は H_{app} であるが、これを単に

H と書いたのは、この図のスケールでみる限り、 H_{app} と H_{eff} の違いを無視できるからである。すなわち両極端の試料である1 mm ϕ の曲線(実線)と4 mm ϕ の曲線(破線)でさえほとんど重なっている。Fig. 1(a)はNd-Fe-B系の等方性ボンド磁石であり、磁留磁化は飽和磁化の約1/2になっている。150 kOeの磁界中でもまだ完全な飽和には至っていないが、40 kOeでヒステリシスは閉じるので、第2象限の特性を調べるためには第1象限で40 kOeかければ十分であることがわかる。Fig. 1(b)はSm-Co系の異方性ボンド磁石について磁化容易方向に磁界をかけたときの結果である。残留磁化は飽和磁化の90%に近く、ヒステリシスが閉じる磁界は(a)の場合と同程度である。

これらの第2象限を拡大すると試料の形状による差異が現れてくるが、それを述べる前に純Ni試料の磁化曲線の立ち上がりの勾配から求めた反磁界係数の値をFig. 2に示す。横軸は寸法比すなわち長さ(b)/直径(a)であり、4種の試料の値は1, 1.33, 2および4である。円柱状試料の反磁界係数は透磁率を一定と仮定すれば比較

Fig. 3 Second-quadrant magnetization curves for bonded rare earth magnets. (a) isotropic Nd-Fe-B magnet; (b) anisotropic Sm-Co magnet.

の容易に計算できる。図には現在の実験結果とともに小林ら⁵⁾の計算結果および Bozorth の本⁶⁾に載っている値が示されている。

Table 1 の各種試料について第 2 象限の磁化曲線を Fig. 3, Fig. 4 および Fig. 5 に示す。同系統の試料で #1, #2 とあるものについては #1 の結果だけを示した。これはいわゆる減磁曲線であるが、英語の demagnetization curve という言葉が demagnetizing field (反磁界) と紛らわしいので、ここではわざわざ第 2 象限の磁化曲線と呼ぶことにする。Fig. 3~Fig. 5 の上図は反磁界補正前の $4\pi I$ 対 H_{app} 曲線であり、下図は上記の N の値を用いて補正した後の $4\pi I$ 対 H_{eff} 曲線である。また下図には磁束密度

$$B = H_{eff} + 4\pi I \quad (2)$$

も示されており、これから $(BH)_{max}$ が求められる。

Fig. 3(a) および (b) はそれぞれ Fig. 1(a) および (b) で示したヒステリシスループの第 2 象限を拡大したものである。これらのボンド磁石の場合には上図で異なっていた 4 本の曲線が下図ではほとんど一致し、反磁界補正が成功している。言い換えれば、1 mmφ の試料について

測定しても 4 mmφ の試料について測定しても反磁界補正によって同じ特性が得られるということである。

これに反して、Fig. 4(a) の Sm_2Co_{17} 焼結磁石の場合には反磁界補正後の曲線も一致していない。元来反磁界に依らないはずの保磁力の値さえも異なっている。このような場合、細い試料ほど反磁界補正が小さいので、正しい結果に近いものを与えていると思われる。実際、細い試料ほど保磁力が大きく、磁化も大きい。

ところが Fig. 4(b) の $SmCo_5$ 焼結磁石や Fig. 5(a) および (b) の Nd-Fe-B 系統焼結磁石はさらに異常な結果を示している。すなわち第 2 象限で磁化が 2 段階の減少を示し、細い試料ほどその異常が著しい。これは反磁界とは全く別問題であり、試料の表面層の特性が劣化することによるものと思われる。Nd-Fe-B 系統焼結磁石の表面層の劣化については西尾ら⁷⁾の詳細な研究がある。このような材料については太い試料を用いなければならないが、その場合には Fig. 4(a) について述べたような問題点、すなわち太い試料よりも細い試料の方が正しい結果を与えるということがあるので、いずれにしても満足な結果は得られないことになる。

Fig. 4 Second-quadrant magnetization curves for sintered Sm-Co magnets. (a) Sm_2Co_{17} type; (b) $SmCo_5$ type.

4. 考 察

円柱状試料の反磁界係数については Fig. 2 の実験値を用いた。これは純 Ni の透磁率を無限大と仮定して求めたものであり、硬質磁性材料の第 2 象限の場合には必ずしもあてはまらないであろう。

よく知られているように、一様な磁界（電界）中におかれた楕円体は一様に磁化（分極）し、一様な反磁界（反電界）を与える。その場合の反磁界係数（反電界係数）については電磁気学の教科書⁶⁾に解析的な解が与えられている。しかし、円柱状試料では決してそのようにはならない。透磁率を一定と仮定すれば磁極は表面にしか生じないが、反磁界は場所によって異なる。マクロスコピックな連続体について、電磁気学の理論によってその分布を計算することは可能であり、Fig. 2 に挙げた小林らの計算もその一つである。図には円柱の中央部付近の平均的な反磁界係数が示されている。実際は、透磁率が磁化に依存し、磁極が体積的に分布するので問題は遙かに複雑になる。しかし、それよりも重要なことはマクロスコピックな連続体としての取り扱いが適当であるかどうか、ということである。

か、ということである。

第 2 象限の保磁力付近では焼結磁石は磁区構造をとっているであろう。それが極めて細かければマクロスコピックな理論があてはまるであろうが、そうでないときには、たとえ楕円体の試料であっても反磁界補正は適切でないと考えられる。ボンド磁石は各粒子が独立に振舞うので近似的にマクロスコピックな理論が成り立ち、反磁界補正が成功したものと思われる。

なお、Nd-Fe-B 系焼結試料などの表面劣化の問題は全く別問題である。これを防ぐには十分大きい試料を用いる他はない。実際、標準的な特性評価のための閉磁気回路法では直径も長さも 10 mm 程度の大きい試料が用いられている。開磁気回路法の VSM や磁気天秤でこのような大きい試料について測定することはほとんどないが、この実験で用いた方法なら、装置を少し変更するだけで大きい試料の測定が可能になる。しかしこれは今後の問題である。

5. ま と め

定常強磁場を用いた開磁気回路法によって種々の希土

Fig. 5 Second-quadrant magnetization curves for sintered Nd-Fe-B magnets. (a) high-coercivity type; (b) low-coercivity type.

類磁石材料の異なる形状の試料について磁化測定を行い、反磁界補正について論じた。ボンド磁石については補正がうまくいくが、焼結磁石では保磁力の値さえも形状に依存する結果が得られた。したがって保磁力の大きい希土類磁石材料の特性評価を試料の形状に依存しない形で行うことは本質的に困難ではないと思われる。しかしあまり厳密なことを言わないことにすれば一般的な特性評価はもちろん可能である。そのときにはこの実験で用いたような大がかりな装置は必要でない。もっと実用的な特性評価法、例えばパルス磁石を用いる方法などを指定することもできるであろう。

なお、この研究は日本電子材料工業会の依頼を受けて始めたものであり、試料は同会を通じて、下記のメーカー各社から提供された。住友特殊金属、日立金属、信越化学、TDK、トーキン、セイコーエプソン、セイコー電子部品および大同特殊鋼の関係者各位に謝意を表したい。また、測定に協力した林 東禹、入山恭彦の両氏お

よびハイブリッドマグネットの運転に当たった工藤 稔、斎 邦明、石川由実の諸氏に感謝する。

文 献

- 1) 日本工業規格：永久磁石試験法，JIS C 2501 (1989).
- 2) International Electrotechnical Commission: Method of measurement of the magnetic properties of magnetically hard materials (IEC Publication 404-5, 1982).
- 3) Y. Nakagawa, K. Noto, A. Hoshi, K. Watanabe, S. Miura, G. Kido and Y. Muto: *Physica B*, **155**, 69 (1989).
- 4) G. Kido, S. Kajiura, Y. Nakagawa, S. Hirose and M. Sagawa: *IEEE Trans. Magn.*, **23**, 3107 (1987).
- 5) M. Kobayashi and Y. Ishikawa: *IEEE Trans. Magn.*, **28**, 1810 (1992).
- 6) R. M. Bozorth: *Ferromagnetism*, p. 849 (D. van Nostrand, Princeton, 1951).
- 7) H. Nishio, H. Yamamoto, M. Nagakura and M. Uehara: *IEEE Trans. Magn.*, **26**, 257 (1990).
- 8) J. A. Stratton: *Electromagnetic Theory*, p. 213 (McGraw-Hill, New York, 1941).

1993年10月28日受理，1994年1月28日採録