高保磁力 Pr-Fe-Co-Ti-B-Si 系交換スプリング磁石の磁気特性 Magnetic Properties of High-Coercivity Pr-Fe-Co-Ti-B-Si System Exchange-Spring Magnets

山元 洋・高橋 一馬

明治大学理工学部, 川崎市多摩区東三田 1-1-1 (〒214-8571)

H. Yamamoto and K. Takahashi

School of Science and Technology, Meiji University, 1-1-1 Higashimita, Tama-ku, Kawasaki 214-8571.

Melt-spun ribbons of $\text{Pr}_x\text{Fe}_{91.5-x-y-z}\text{Co}_8\text{Ti}_y\text{B}_z\text{Si}_{0.5}$ ($x = 9.0\sim 11.0$, $y = 0.5\sim 2.0$, $z = 7.5\sim 11.5$) alloys were prepared by the single roller liquid rapid-quenching method, and the effects of composition, substrate surface velocity and annealing condition on the magnetic properties were studied. The optimum preparation conditions and some of the properties were as follows: composition: $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{69.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$; substrate surface velocity: 10.0 m/s; annealing condition: 650 °C for 0 min in Ar atmosphere; magnetic properties: $(\text{BH})_{\text{max}} = 119.9 \text{ kJ/m}^3$, $H_{\text{cJ}} = 1004.0 \text{ kA/m}$, $H_{\text{cB}} = 559.3 \text{ kA/m}$, $J_{\text{r}} = 0.87 \text{ T}$, recoil ratio = 29.0 %, $H_{\text{k}}/H_{\text{cJ}} \times 100 = 33.0 \%$, $\alpha(J_{\text{r}})_{\text{ave}} = -0.047 \text{ \%/}^\circ\text{C}$, $\alpha(H_{\text{cJ}}) = -0.43 \text{ \%/}^\circ\text{C}$ and $T_{\text{c}} = 393 \text{ }^\circ\text{C}$. From TEM observation, the average particle size of this ribbon was found to be about 16 nm. Compression-molded isotropic bonded magnets were prepared by using $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{69.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ ribbons annealed at 650 °C for 0 min. Their magnetic properties were $(\text{BH})_{\text{max}} = 80.2 \text{ kJ/m}^3$, $H_{\text{cJ}} = 953.1 \text{ kA/m}$, $H_{\text{cB}} = 461.9 \text{ kA/m}$, $J_{\text{r}} = 0.69 \text{ T}$, $H_{\text{k}}/H_{\text{cJ}} \times 100 = 32.8 \%$, irreversible loss = -2.12 % (at 125 °C), density = 6.29 Mg/m^3 .

Key words: Pr-Fe-Co-Ti-B-Si system melt-spun ribbon, magnetic property, exchange-spring magnet, bonded magnet, irreversible loss

1. 緒言

硬質磁性材料中に鉄のような軟質磁性材料をいれたナノコンポジットを構成すると、両者の間に交換結合がある場合には単一の硬質磁性材料のように振る舞う。このような交換結合磁石は、減磁曲線で磁化が外部磁界に対して可逆的にスプリングバックするユニークな挙動を示すことから交換スプリング磁石¹⁾と呼ばれている。これらナノコンポジット交換スプリング磁石については、Nd, Pr 系の種々研究^{2)~19)}がなされている。また、Chang 等は、(Nd, La)-Co-Ti-B 系急冷薄帯について詳細な実験検討を行い、高性能な急冷薄帯を作製している。これら組成は、Co, Ti 量も多く、保磁力が 960 kA/m 以上得られ、La 添加が微細組織に寄与していることを述べている。^{15), 19)}

そこで、本実験では Pr-Fe-Co-Ti-B-Si 急冷薄帯において、交換スプリング磁石の特徴を持ち、実用化の際の熱安定性とを考慮して 800 kA/m 以上の高保磁力を有する α -Fe/ $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 系交換スプリング磁石を作製することを目的に、組成比を変化させ、ロール周速度、熱処理などの諸条件が薄帯磁石の磁氣的、物理的性質にどのような影響を

与えるかについて、詳細に実験検討した。また、これら薄帯試料の粉末を用いてボンド磁石を作製し、それらの諸特性についても詳細に検討をした。

2. 実験方法

急冷薄帯作製に用いた試料は、組成式を $\text{Pr}_x\text{Fe}_{91.5-x-y-z}\text{Co}_8\text{Ti}_y\text{B}_z\text{Si}_{0.5}$ とし、 $x (= 9.0\sim 11.0)$, $y (= 0.5\sim 2.0)$, $z (= 7.5\sim 11.5)$ と変化させたものである。上記の母合金は、真空吸い上げ法により作製した。急冷薄帯は高純度 Ar ガス雰囲気中においてロール周速度を 7.5~12.5 m/s と変化させて片ロール液体急冷法により作製した。石英射出管のオリフィス径は 0.5 mm のものを用い、射出時には高純度 Ar ガスを用いて 38 kPa 一定とした。ロールは銅製に Cr メッキを施したもので、直径 300 mm である。熱処理は高純度 Ar ガス雰囲気中で温度を 625~700 °C、時間を 0~10 min と変化させて行った。熱処理昇温速度は 25 °C/min 一定とし、熱処理時間 0 min の時は所定の温度に達したのちに炉の電源をきり約 30 分で常温まで冷却した。急冷薄帯の微細組織は、透過型電子顕微鏡(TEM)により観察した。薄帯試料の磁気特性、キュリー温度、温度特性は全て 4.8 MA/m のパルス着磁を行った後に、振動試料型磁力計(VSM)を用いて測定した。薄帯の結晶構造は粉末 X 線回折法により調べた。また非晶質試料の結晶化温度は、示差熱分析計(DTA)を用いて測定した。次にこれらの薄帯試料を 150 μm 以下に粉碎して、エポキシ樹脂 2.5 wt.% を混合攪拌し、980 MPa の圧力で圧縮成形した後、150 °C $\times$ 1 h のキュア処理を行いボンド磁石を作製した。ボンド磁石の磁気特性は、4.8 MA/m のパルス着磁後、高感度自記磁束計を用いて測定した。ボンド磁石の経時変化は、高温槽中において所定の温度で 1 時間保温した後に、常温でフラックスメーターを用いて測定した。

3. 実験結果ならびに考察

Fig.1 は $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{69.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ 組成において、ロール周速度を 10.0 m/s とし作製した急冷薄帯試料の DTA 曲線を示す。図から知られるように、三つの発熱ピークが見られた。これは X 線回折の結果より α -Fe, Fe_3B , $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶相に対応していると考えられる。なお $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型

結晶相の結晶化開始温度は、590 °Cと分かったので、熱処理は 590 °C以上で行った。

組成の影響を詳細に検討するためにまず Pr 量を変化して実験を行った。Fig.2 は $\text{Pr}_x\text{Fe}_{79.5-x}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ 組成急冷薄帯試料において、Pr 量 x を 9.0, 10.0, 11.0 at%と変化した時の磁気特性を示したものである。なお作製条件は、ロール周速度 10.0 m/s, 熱処理条件 650 °C×0 min 一定とした。図から分かるように、 J_r , $(BH)_{\max}$ は x の増加とともに減少する傾向を示し、 H_{cJ} は x の増加とともに増加する傾向を示した。 H_{cB} は $x = 10.0$ at%の時最大値をとり、 $x = 11.0$ at%では減少傾向を示した。以上の結果より、 $x = 11.0$ at%では保磁力が約 1600 kA/m でありこれは工業的な着磁界¹⁸⁾では着磁しにくいことが知られており実用上の着磁性等を考慮して良好な $(BH)_{\max}$, H_{cJ} が得られた Pr 量 $x = 10.0$ at%を本実験において最適値とした。

次に Ti 量を変化させ実験を行った、Fig.3 は $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{71-y}\text{Co}_8\text{Ti}_y\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ 組成急冷薄帯において、Ti 量 y を 0.5, 1.0, 1.5, 2.0 at%と変化した時の磁気特性を示したものである。作製条件は、ロール周速度 10.0 m/s, 熱処理条件 650 °C×0 min 一定とした。図から分かるように、すべての磁気特性である J_r , H_{cJ} , H_{cB} , $(BH)_{\max}$ は Ti 量 1.5 at%まで上昇し、その後減少する傾向を示した。この結果より Ti 量 y を 1.5 at% を本実験において最適値とした。

Fig. 1 DTA curve for melt-spun $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{69.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ alloy ribbon. ($V_s = 10.0$ m/s)

Fig.4 は $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{80-z}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_z\text{Si}_{0.5}$ 組成試料において、B 量 z を 7.5, 8.5, 9.5, 10.5, 11.5 at%と変化した時の磁気特性を示したものである。なお作製条件は、ロール周速度 10.0 m/s, 熱処理条件 650 °C×0 min 一定とした。図から分かるように、 H_{cJ} は $z = 10.5$ at%の時最大値をとり、以後大きく減少するという傾向になり、 H_{cB} はほぼ一定を示した。 J_r は z 増加とともに減少するという傾向になり、 $(BH)_{\max}$ は 8.5 at%の時最大値をとり、以後減少するという傾向を示した。以上の結果より B 量が 10.5 at%の時、最も高い保磁力(H_{cJ})が得られたことから、B 量は 10.5 at%を

本実験において最適値とした。以上の結果より、本実験の最適組成を $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{69.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ として以後実験検討を行った。なお、Si 添加は溶湯の流れを改善するために添加したもので 0.5 at%一定とした。

Fig. 2 Effect of the value of the magnetic properties of melt-spun $\text{Pr}_x\text{Fe}_{79.5-x}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ alloy ribbons. Annealing condition: 650 °C×0 min ($V_s = 10.0$ m/s).

Fig. 3 Magnetic properties of melt-spun $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{71-y}\text{Co}_8\text{Ti}_y\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ alloy ribbons.

次にロール周速度を変化させて実験を行った。Fig.5 は $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{69.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ 組成急冷薄帯において、ロール周速度を 7.5~12.5 m/s と変化した時の磁気特性を示したものである。なお熱処理条件は、650 °C×0 min 一定とした。図から分かるように、 H_{cJ} は 10.0 m/s の時最大値をとり、その後減少する傾向を示した。 H_{cB} , $(BH)_{\max}$ はロール周速度の影響をほとんど受けずほぼ一定を示し、 J_r はロール周速度の増加とともに若干増加する傾向を示した。以

上の結果よりロール周速度 10.0 m/s の時、最も高い保磁力 (H_{cJ}) を得られたことから、最適ロール周速度は 10.0 m/s と比較的 low 周速度で最適値が得られた。

次に熱処理温度を変化させたときの磁気特性について検討した。Fig. 6 は $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{69.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ 組成急冷薄帯において、熱処理温度を 625~700 °C と変化させた時の

Fig. 4 Magnetic properties of melt-spun $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{80-x}\text{Co}_x\text{Ti}_{1.5}\text{B}_z\text{Si}_{0.5}$ alloy ribbons.

Fig. 5 Effect of wheel velocity on the magnetic properties of melt-spun $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{69.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ alloy ribbons.

磁気特性を示したものである。なお作製条件は、ロール周速度 10.0 m/s、熱処理時間 0 min 一定とした。図から分かるように H_{cJ} は 650 °C の時最大値をとりその後減少する傾向にあり、 H_{cB} はほぼ一定を示した。 J_r は熱処理温度の増加とともに増加する傾向になった。また $(BH)_{\text{max}}$ は 675 °C の時最大値となった。以上の結果より熱処理温度 650 °C の時最も高い保磁力 (H_{cJ}) を得られたことから、最

適熱処理温度は 650 °C ということが分かった。次に、各熱処理温度における結晶構造を調べるために、作製した試料の X 線回折を行った。その結果を Fig. 7 に示す。図から分かるように As-melt-spun では α -Fe 型結晶相が確認され、 $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶相は明確にあらわれず微細な核が存在しているように思われる。またどの熱処理温度においても、 α -Fe 型結晶相と $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶相の回折線が明瞭に現れ、上記 2 相の複合組織であることが分かった。DTA で確認された Fe_3B 型結晶相は熱処理時分解拡散されたものと思われるが、後の σ -T 曲線にも現れていないので、B がどこに存在するかは、明確には分からなかった。

Fig. 6 Effect of annealing temperature on the magnetic properties of melt-spun $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{69.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ alloy ribbons.

Fig. 7 X-ray diffraction patterns of melt-spun $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{69.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ alloy ribbons as a function of annealing temperature. Annealing time: 0 min ($V_s = 10.0$ m/s)

Fig. 8 は $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{69.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ 組成急冷薄帯において、熱処理時間を 0, 5, 10 min と変化させた時の磁気特性を示したものである。 H_{cJ} は熱処理時間の増加とともに減少を示し、 H_{cB} 熱処理時間の影響をほとんど受けずほぼ一定を示した。 J_r , $(BH)_{\max}$ は熱処理時間の増加とともに若干増加した。この結果より熱処理条件 0 min のとき最も高い保磁力(H_{cJ})を得られたことから、最適熱処理条件は $650\text{ }^{\circ}\text{C} \times 0\text{ min}$ であることが知られた。

Fig. 8 Effect of annealing time on the magnetic properties of melt-spun $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{69.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ alloy ribbons.

Fig.9は、上記急冷薄帯試料の減磁曲線と Recoil ratio を示したものである。このときの磁気特性は $J_r = 0.87\text{ T}$, $H_{cJ} = 1004.0\text{ kA/m}$, $H_{cB} = 559.3\text{ kA/m}$, $(BH)_{\max} = 119.9\text{ kJ/m}^3$, $H_k/H_{cJ} \times 100 = 33.0\%$ であった。またスプリングバック率として保磁力付近から磁界を戻したとき、残留磁化 J_r が約 29.0 % 回復することが知られた。Fig.10 は、最適条件で作製された急冷薄帯試料の σ - T 曲線を示したものである。図よりキュリー温度は $393\text{ }^{\circ}\text{C}$ であり、前述の X 線回折図形と σ - T 曲線より、 α -Fe 型結晶相と $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶相を含んでいることが分かった。また、この図よりそれぞれの結晶相の大まかな割合は α -Fe 型結晶相 11 %, $\text{Pr}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶相 89 % であることが知られた。

次にこれらの TEM 写真を示す。Fig.11 は、最適条件で作製された $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{69.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ 組成急冷薄帯試料の TEM 写真である。写真より、粒径は $10 \sim 30\text{ nm}$ のものが観測され、平均粒径は約 16 nm であることが知られた。また電子線回折写真より、等方性であることも確認された。

Fig.12 は、前述した急冷薄帯試料の残留磁化 J_r と保磁力 H_{cJ} において、温度を $25 \sim 125\text{ }^{\circ}\text{C}$ まで変化させたときの温度特性を示したものである。図から分かるように、 J_r , H_{cJ} は温度の上昇とともに減少する傾向にあり、 J_r の可逆温度係数の平均 $\alpha(J_r)_{\text{ave}} = -0.047\text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$ で、この値は、後

のボンド磁石の作製に使用した MQB-B の粉末に比べ約 1/2 であった。 H_{cJ} の温度係数は直線近似で求めると、 $\alpha(H_{cJ}) = -0.43\text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$ となり良好な結果が得られた。

Fig. 9 Demagnetization curves and recoil loop of melt-spun $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{69.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ alloy ribbon. Annealing condition: $650\text{ }^{\circ}\text{C} \times 0\text{ min}$ ($V_s = 10\text{ m/s}$).

Fig. 10 Temperature dependence of the magnetization for melt-spun $\text{Pr}_{10}\text{Fe}_{69.5}\text{Co}_8\text{Ti}_{1.5}\text{B}_{10.5}\text{Si}_{0.5}$ alloy ribbon. Annealing condition: $650\text{ }^{\circ}\text{C} \times 0\text{ min}$ ($V_s = 10.0\text{ m/s}$).

Fig.13 は、最適条件で作製された急冷薄帯試料を用いて作製した等方性圧縮成形ボンド磁石の減磁曲線と Recoil ratio を示したものである。磁気特性はそれぞれ $J_r = 0.69\text{ T}$, $H_{cJ} = 953.1\text{ kA/m}$, $H_{cB} = 461.9\text{ kA/m}$, $(BH)_{\max} = 80.2\text{ kJ/m}^3$, $H_k/H_{cJ} \times 100 = 32.8\%$, また密度は、 6.29 Mg/m^3 であった。またスプリングバック率として保磁力付近から磁界を戻したとき、残留磁化 J_r が約 28.1% 回復することが知られ、この減磁曲線は単相であり、また前述の組織写真よりナノコンポジットであることから、 α -Fe 型結晶相、

Pr₂Fe₁₄B 型結晶相が交換結合した交換スプリング磁石であることが知られた。

Fig. 11 TEM photograph of a melt-spun Pr₁₀Fe_{69.5}Co₈Ti_{1.5}B_{10.5}Si_{0.5} alloy ribbon. Annealing condition: 650 °C × 0 min (Vs = 10.0 m/s).

Fig. 12 Temperature dependence of J_r and H_{cj} in melt-spun Pr₁₀Fe_{69.5}Co₈Ti_{1.5}B_{10.5}Si_{0.5} alloy ribbon.

次に、上記の等方性ボンド磁石の 25～125 °C における磁束の経時変化を調べた(Fig.14)。このボンド磁石の大きさは直径 10 mm × 高さ 8.6 mm であった。磁束の測定はボンド磁石を 4.8 MA/m のパルス着磁後に高温槽中において所定の温度で 1 時間保持し空気中で 1 時間放冷して、室温に戻しその後フラックスメーターを用いて測定した。図から分かるように 25 °C～75 °C の間は減磁率の増加は MQP-B ボンド磁石とほぼ変わらないが、125 °C における減磁率は -2.12 % であり、この結果は、実用化されている MQP-B ボンド磁石と較べると約 1/2 で温度特性が良好であることが知られた。このことは、本実験で得られたボンド磁石の保磁力の値は、MQP-B ボンド磁石²⁰⁾と較べると約 200 kA/m 高く、また粉末の $\alpha(J_r)$ も MQP-B 粉末と比べ約 1/2 であったことが、減磁率の減少の要因であると考えられる。

$J_r = 0.69 \text{ T (6.9 KG)}$
 $H_{cj} = 953.1 \text{ kA/m (11.9 kOe)}$
 $H_{cB} = 461.9 \text{ kA/m (5.8 kOe)}$
 $(BH)_{max} = 80.2 \text{ kJ/m}^3 \text{ (10.03 MGOe)}$
 $H_k/H_{cj} \times 100 = 32.8\%$
 Recoil ratio = 28.1 %
 Density = 6.29 Mg/m³

Fig. 13 Demagnetization curves and a recoil loop for a bonded magnet prepared from melt-spun Pr₁₀Fe_{69.5}Co₈Ti_{1.5}B_{10.5}Si_{0.5} alloy ribbon. Annealing condition: 650 °C × 0 min (Vs = 10.0 m/s).

Fig. 14 Temperature dependence of the irreversible loss for isotropic compression-molded magnets.

4. 結 言

本実験をまとめると以下になる。

Pr-Fe-Co-Ti-B-Si 急冷薄帯において Pr₁₀Fe_{69.5}Co₈Ti_{1.5}B_{10.5}Si_{0.5} 組成で高保磁力($H_{cj} = 1004.0 \text{ kA/m}$)を持つ、急冷薄帯を作製することができた。またそれら急冷薄帯を用いて作製したボンド磁石は、高保磁力($H_{cj} = 953.1 \text{ kA/m}$)で MQP-B 粉末を用いて作製したボンド磁石に比べて 125 °C の不可逆減磁率が約 1/2 と、大変温度特性が良好なボンド磁石の作製に成功した。

文 献

- 1) E. F. Kneller and R. Hawig, *IEEE Trans. Magn*, 27, 3588 (1991).
- 2) S. Hirosawa, H. Kanekiyo and M. Uehara, *J. Appl. Phys.*, 73, 6488 (1993).
- 3) A. Inoue, A. Takeuchi, A. Makino and T. Masumoto, *IEEE Trans. Magn.*, 31, 3626 (1995).
- 4) H. Yamamoto and T. Niinomi, *J. Magn. Soc. Jpn.*, 21, 369 (1997).
- 5) H. Yamamoto, M. Shiozawa, *Proc. 15th International Workshop on Rare Earth Magnet and Their Applications*, Dresden, Germany, 307 (1998).
- 6) H. Yamamoto, T. Niinomi, S. Koumo, M. Hamano and M. Yamasaki, *Trans. IEE of Japan*, 118-A, 1221 (1998).
- 7) H. Yamamoto, T. Niinomi, S. Koumo, M. Hamano and M. Yamasaki, *Trans. IEE of Japan*, 118-A, 1221 (1998).
- 8) H. Yamamoto, K. Kawamata M. Hamano and M. Yamasaki, *J. Magn. Soc. Jpn.*, 24, 415 (2000).
- 9) H. Yamamoto and T. Nagamori, *Trans. IEE of Japan*, 120-A, 651 (2000).
- 10) M. Hamano, M. Yamasaki, M. Hamao, T. Kobayashi, K. Hono, and H. Yamamoto, and A. Inoue, *Proc. 16th International Workshop on Rare Earth Magnet and Their Applications*, Sendai, Japan, 513 (2000).
- 11) H. Yamamoto, S. Koumo and K. Kawamata, *Proc. 16th International Workshop on Rare Earth Magnet and Their Applications*, Sendai, Japan, 631 (2000).
- 12) H. A. Davies, J. I. Betancourt R. and C. L. Harland, *Proc. 16th International Workshop on Rare Earth Magnet and Their Applications*, Sendai, Japan, 485 (2000).
- 13) T. Miyoshi, H. Kanekiyo and S. Hirosawa, *Proc. 16th International Workshop on Rare Earth Magnet and Their Applications*, Sendai, Japan, 495 (2000).
- 14) J. I. Betancour R. and H. A. Davies, *Proc. 16th International Workshop on Rare Earth Magnet and Their Applications*, Sendai, Japan, 595 (2000).
- 15) W. C. Chang, S. H. Wang, S. J. Chang, and Q. Chen, *IEEE Trans. Magn.*, 36, 3588 (2000).
- 16) H. Yamamoto and S. Konisi, *Trans. IEE of Japan*, 121-A, 784 (2001).
- 17) H. Ono, N. Waki, M. Shimada, T. Sugiyama, A. Fujiki, H. Yamamoto and M. Tani, *IEEE Trans. Magn*, 37, 2552 (2001).
- 18) H. Yamamoto, K. Takasugi and F. Yamashita, *Proc. 17th International Workshop on Rare Earth Magnet and Their Applications*, Delaware, U.S.A, 307 (2002).
- 19) W. C. Chang, J. F. Wen, H. W. Chang, M. D. Lee, B. M. Ma, *J. Magn. Magn. Mat.* 239 433 (2002).
- 20) Magnequench, Product Literature, (2002).

2003 年 1 月 29 日受理, 2003 年 3 月 26 日採録