Nd-Fe-B 磁石, その着想と実際*

佐 川 眞 人**

Masato Sagawa: Nd-Fe-B Magnet, Its Idea and Reality.

The research of the Nd-Fe-B magnet was started from an expectation that B and/or C might expand Fe-Fe interatomic distances in rare-earth iron alloys, leading to increase the Curie temperature of them. After the success in developing the powerful Nd-Fe-B sintered magnets with record high energy products, however, a crystal structure analysis revealed that Fe-Fe pairs having small interatomic distances existed also in the Nd-Fe-B alloy. It is emphasized that the success in this work is a result of many fortunate matters which were not expected in the beginning.

(Received June 29, 1987)

R_2Fe_{17} (R は希土類元素) のキュリー温度 T_c が α -Fe や RCo 化合物に比べて極端に低いのは, R_2Fe_{17} 中の dumbbell と呼ばれる, 2 個対になった Fe 原子の間の距離が, 0.24 nm 以下で大変小さいことに原因がある. ある講演会でこの話を聞いたとき, 筆者は RFe 化合物に C や B など原子半径の小さい元素を添加すれば, Fe-Fe 原子間距離が広がり, T_c が上がるのではないかと考えた. Nd-Fe-B 磁石の研究はこの時から始まった.

数年後, 我々は¹⁾ 12 at%Nd, 6 at%B, 残り Fe 付近の組成に, $a=0.88$ nm, $c=1.22$ nm の正方晶構造を持ち, 永久磁石材料として優れた性質を示す安定な化合物が存在することを見出した. この化合物をもとにして, 記録的な磁気エネルギー積を持つ強力な磁石を開発した.

我々の発表後, この相の詳細な構造は, Herbst ら²⁾ により中性子回折によって, Givord ら³⁾ により, X 線回折によって, 独立に解明され, その化学量論比が $R_2Fe_{14}B$ であること, $P4_2/mnm$ という対称性を持ち, Fig. 1 に示されるような構造を持っていることが初めて明らかにされた. この構造はつぎの特徴を持っている.

- (1) 全ての R と B は, $z=0$ と $z=1/2$ の層に集中している.
- (2) Fe の大部分 (96%) は R と B を含む層の間にあり, R どちらの間隔を z 方向に広げている. この Fe だけの層は, Fe-Cr 合金などに見られる σ 相とよく似た構造を有している.

$R_2Fe_{14}B$ の構造は我々の予想通りではなかった. 我々は $R_2Fe_{14}B$ 中には, R_2Fe_{17} 中における dumbbell Fe ペアーのような, 短い原子間距離を持つペアーは存在しないであろうと予想していた. ところが実際には Fig. 1 で, $8j_1$ と $16k_2$ の間の原子間距離は 0.2396 nm, $8j_1$ と, 隣の $8j_1$ の間の距離は 0.2433 nm で, 事情は R_2Fe_{17} の場合とあまり変わらないことが判明した. C や B が R-Fe 化合物の原子間距離を広げ, T_c を上げるかも知れないという着想は $R_2Fe_{14}B$ にあてはまらない.

Nd-Fe-B 磁石の発見は全くのまぐれ当たりであった.

まぐれ当たりはそれだけではない. Nd-Fe-B 磁石の記録的な高性能はいくつもの幸運が重なった結果である. そのひとつは $R_2Fe_{14}B$ の磁気異方性についてである. 我々は Y を含む一連の希土類 R について, $R_2Fe_{14}B$ の単結晶を作製して, 磁気的性質を測定した^{4,5)}. その結果, $R_2Fe_{14}B$ の 1 次の磁気異方性定数 Ku_1 は $R=Nd, Pr, Tb, Dy, Ho$ に対して正 (結晶の c 軸方向が磁化容易方向, 高保磁力を得るための必要条件), $R=Sm, Er, Tm$ に対して負 (c 面内に磁化容易方向があり, 高保磁力は得られない) であることが判明した. この事情は, これまでに知られている $R \cdot T$ (T は Fe または Co) 2 元化合物と全く逆である. これは $R_2Fe_{14}B$ の構造的特徴に原因がある. すなわち, $R_2Fe_{14}B$ では σ 相に似た Fe だけの層によって, R イオンどうしが c 軸方向に大きく隔てられている. $4f$ 電子の空間分布が全角運動量 J に対して偏平に広がっている $R=Nd$ のグループは, 電子雲が c 面内に広がったように分布する方が静電エネルギーが低いので, J は c 軸方向を向く. 葉巻型の電荷分布を持つ $R=Sm$ のグループはその逆である. これまでの 2 元化合物は, いずれも R イオンどうしの原子間距離は c 軸方向の方が c 面内より小さいので, $R=Nd$ のグループは c 面内に磁化容易方向を持つ. C や B を添加するという最初の着想のとき, 磁気異方性については何も考慮しなかった. $R_2Fe_{14}B$ において, $R=Nd$ のグループが正の磁気異方性を持つことは全くのまぐれ当たりであった.

第3の幸運は Nd-Fe-B 系の状態図に関係している. Fig. 2 に Nd-Fe-B 3 元系の液相に関する状態図を示す⁶⁾. ここで T_1 は $Nd_2Fe_{14}B$, T_2 は $Nd_{1.1}Fe_{14}B$, そして T_3 は Nd_2FeB_3 である. 高い保磁力は T_1, T_2 およ

* 第10回 (昭和61年度) 研究進歩賞受賞, 昭和62年6月本協会春季大会にて発表, 昭和62年6月29日受理.

** 住友特殊金属(株), 〒618 大阪府三島郡島本町江川2-15-17.

Fig. 1 Crystal structure of R₂Fe₁₄B. Fig. 2 Liquid phase projection of the Nd-Fe-B ternary system.
T₁; Nd₂Fe₁₄B, T₂; Nd_{1.1}Fe₄B₄, T₃; Nd₂FeB₃

び Nd を囲む三角形の内側で得られる。とりわけ、T₂ より、Nd と B が少し過剰な組成領域で高い (BH)_{max} が得られる。このような合金は、主相 Nd₂Fe₁₄B と、少量の T₂ 相および Nd からなる。この合金の高保磁力は少量の相、T₂ と Nd がともに非磁性であること、そし

て、T₁, T₂, Nd が低温で三元共晶を持つことと深く関わっている。

Nd-Fe-B 磁石はニュークレーション型磁石である。一方に磁界を印加して、焼結体を着磁すると、逆方向に磁界が印加されても逆磁区の芽がなかなかできない。

大きい逆磁界を印加して, いったん逆磁区の芽ができると, 結晶粒内に磁壁をピン止めするものがないので, いっぺんに磁化反転が起こる. ニュークリエーション, すなわち逆磁区の芽の発生は磁石中の磁氣的に柔らかい点で起こる. 同じニュークリエーション型磁石である SmCo_5 型磁石では, Sm_2Co_7 や $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ などの, SmCo_5 より磁氣的に柔らかい不純物相からニュークリエーションが起こると推定されている. ところが, Nd-Fe-B 系では主相以外は非磁性なので, 少量の相はニュークリエーションサイトにならない. したがって, 組成が狙いより少しくらいいずれでも Nd-Fe-B 系では高保磁力が得やすい.

T_1 , T_2 , Nd の 3 元結晶 E_2 点の存在は液相焼結を可能にし, 結晶粒成長を起こさずに高密度化ができる. また焼結中に生成する Nd に富んだ液相は, 合金の粉碎中にできた Nd-poor な粉末表面をぬらし, そこに Nd を供給する. E_2 地点で生成した純 Nd 相 (実際には 3~5 %程度 Fe を含む) は $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ の結晶粒を 1 つ 1 つ隔離する働きをする. こうして, ニュークリエーション型磁石として理想的な金属学的組織が形成される. Nd-Fe-B 系を調べてみようと思ったとき, 金属学的条件については全く何も考えなかった.

Nd-Fe-B 磁石において, 幸運であったことは他にもたくさんある. これらの幸運のどれか 1 つでも欠けていたら, Nd-Fe-B 磁石は日の目を見なかったであろう.

Nd-Fe-B 磁石の発明は, 工業界はもとより, 基礎研究の分野にも強いインパクトを与えた. この意味で, これはまぐれ当たりであったけれど, 結果として独創的な研究といって良いであろう. 私は, この仕事を通じて, 独創的な研究がいかに多くの幸運の所産であるかを痛感した. その幸運はめったにやってこない. それが何重にも重なることはさらに稀なことである.

近年, 日本人の独創性について議論されることが多くなった. 雑誌や新聞で, 先輩・諸先生方のご意見を拝読して感銘を受けることがしばしばある. しかし, 応用磁気学会誌の最新号に発表された, 関澤先生 (千葉工大)⁷⁾ のご意見には疑問を感じる.

先生はつぎのように述べておられる.

- (1) ディラックやストラビンスキーのような独創力を獲得したり養成したりすることに悲観的である.
- (2) 独創は多すぎでは困る.
- (3) サッチャー首相が“英国で創造された科学が, 日本で

実用化している”と言ったが, 劣等感を抱く必要はない. 大独創しかできない国と小独創を得意とする国の間で国際的分業が成立することが望ましい.

これに対して私はつぎのように考える. まず, ディラックやストラビンスキー (なぜここに出てくるのか?) などの巨星だけが独創的というのなら悲感的にならざるを得ない. 私が疑問を感じるのは特に第 2 の点である. 独創的なものが生まれる確率はきわめて少ないのだから, できるだけ多くの人が, 成功すればインパクトの大きい何かを狙って研究すべきである. 少しでも大きい研究テーマにチャレンジするべきである. 応用研究に限らず, 基礎研究においても, 成功すればどれくらいのインパクトがあるかをテーマ選定の 1 つの規準とするべきである. 関澤先生のご意見の第 3 点是一种の開きなおりである. 貿易摩擦の問題でもそうであるが, もう開きなおりで済まなくなっている. 科学技術摩擦を起こさないための具体的な行動が必要である.

Nd-Fe-B 磁石の生産量は大きく伸展しようとしている. 現在最大の用途は磁気ディスク装置のボイスコイルモーター (VCM) である. フロッピーディスクのヘッド駆動用ステッピングモーター, 小型ハードディスクのヘッド駆動用トルクモーター, ワイヤドットプリンタ用ヘッド, ビデオディスクやコンパクトディスクのピックアップ, 8 mm ビデオのレンズ駆動アクチュエーターやテープ駆動用小型モーターなど多数の用途が実用段階に入っている. 磁気共鳴画像診断装置 (MRI = Magnetic Resonance Imaging) の磁気回路や自動車用電装部品も, 今後のコストダウンしだいでは, Nd-Fe-B 磁石の大きい市場になることが期待されている.

文 献

- 1) M. Sagawa, S. Fujimura, N. Togawa, H. Yamamoto and Y. Matsuura: J. Appl. Phys., **55** (1984), 2083.
- 2) J. F. Herbst, J. J. Croat, F. E. Pinkerton and W. B. Yelon: Phys. Rev., **B29** (1984), 4176.
- 3) D. Givord, H. S. Li and J. M. Moreau: Solid State Commun., **50** (1984), 497.
- 4) M. Sagawa, S. Fujimura, H. Yamamoto, Y. Matsuura and S. Hirose: J. Appl. Phys., **57** (1985), 4094.
- 5) S. Hirose, Y. Matsuura, H. Yamamoto, S. Fujimura and M. Sagawa: J. Appl. Phys., **59** (1986), 873.
- 6) Y. Matsuura, S. Hirose, H. Yamamoto, S. Fujimura, M. Sagawa and K. Osamura: Jpn. J. Appl. Phys., **24** (1985), L635.
- 7) 関澤: 日本応用磁気学会誌, **3** (1987), 459.