希土類鉄 (R-Fe) 磁石は世界を支える*

佐 川 眞 人**

1. はじめに

筆者は1982年の初めに Nd-Fe-B 焼結磁石の薄片を世界で初めて作製した。この薄片を核として、R-Fe 磁石の新研究分野が発展した。それは、R-Fe 磁石の基礎研究の発展と工業化である。本稿では、R-Fe 磁石誕生の経緯、R-Fe 磁石は世界を支えていること、R-Fe 磁石が世界を支え続けているために工業的に必要な研究、および R-Fe 磁石に関する基礎研究の発展について述べる。

2. R-Fe 磁石の誕生

筆者は1977年にサマリウムコバルト (Sm-Co) 磁石についての研究テーマを与えられた。磁石の研究について、筆者は初心者であった。一生懸命に Sm-Co 磁石の勉強をし、研究テーマの目標達成を目指して、Sm-Co 磁石の研究に没頭した。

ところがある日、疑問が浮かんだ。なぜ希土類鉄 (R-Fe) 磁石は存在しないのだろうか。Fe は Co よりもはるかに資源が豊富である。Fe は Co よりも大きな磁気モーメントをもっている。筆者は確信した。「R-Fe 磁石は人類の強いニーズである。」

筆者は何とかして R-Fe 磁石を実現したいと思った。どうしたら、R-Fe 磁石ができるだろうか。くる日もくる日も考え抜いたが、良いアイデアが浮かばなかった。1978年1月31日に開催された日本金属学会主催のシンポジウムに出席している時にアイデアが浮かんだ。そのシンポジウムの題目は「希土類磁石の基礎から応用まで」で、R-Fe 磁石や R-Fe 化合物の研究も含まれるが、すべての講演は R-Co 磁石

や R-Co 化合物についての発表であった。その中で、最初の講演者である浜野正昭氏が講演の最後の方で、数分間、なぜ R-Fe 化合物が強い磁石にならないのかについて触れた。浜野氏は R_2Fe_{17} 化合物の結晶構造を示して、「この化合物の中の Fe-Fe 原子間距離が小さすぎるので、強磁性状態が不安定である。これが磁石にならない理由である。」と説明した。筆者はこの時、「それでは、C や B を格子間に入れてやれば、Fe-Fe 原子間距離が伸びて、強磁性状態が安定化するのではないか」というアイデアが浮かんだ。筆者はその翌日からたくさんの R-Fe-C や R-Fe-B 合金をアーク溶解炉で作製して磁気測定を行っていった。

Nd-Fe-B 磁石発明までの年表は次の通りである。(1) R-Fe 磁石の候補として、R-Fe-C および R-Fe-B 合金のアイデアを持った(1978年1月)。(2) Nd-Fe-B の組み合わせが有望であることに気づいた(1978年末)。(3) Nd-Fe-B 焼結磁石の薄片を作製した(1982年1月)。(4) $(BH)_{\max} = 270 \text{ kJ/m}^3$ の Nd-Fe-B 焼結磁石を作製した。これは当時の世界最強磁石である(1982年7月)。(2)と(3)の間、組成と製法を工夫して Nd-Fe-B 合金に保磁力を持たせる微細構造の開発に3年を要した。

Nd-Fe-B 焼結磁石についての最初の学術発表を1983年10月に秋田大学で開催された日本金属学会秋期講演大会で発表し、引き続き翌月にアメリカ、ピッツバーグで開催された Conference on Magnetism and Magnetic Materials にて次の内容の発表をした⁽¹⁾。

① Nd-Fe-B 磁石の主相について

- 結晶構造は正方晶で、格子定数 $a = 0.880 \text{ nm}$, $c = 1.221 \text{ nm}$ である。
- およその組成は $Nd_{12}Fe_{82}B_6(\text{at}\%)$ である。

* 2020年3月17日に予定していた日本金属学会第166回春期講演大会での口頭講演は中止したが、本概要掲載により、本会第166回春期講演大会で発表したものとみなす。

** 大同特殊鋼株式会社；顧問(〒457-8545 名古屋市中区大同町 2-30)

Rare-earth Iron Magnets Sustain the World; Masato Sagawa (Daido Steel Co. Ltd., Nagoya)

Keywords: Nd-Fe-B magnet, rare earth iron magnet, hard disc drive, voice coil motor, $Nd_2Fe_{14}B$, $Sm(Fe_{0.8}Co_{0.2})_{12}$, electric vehicle, air conditioner

2019年11月22日受理[doi:10.2320/materia.59.247]

・キュリー温度 $T_c=585\text{ K}$, 飽和磁化 $J_s=1.35\text{ T}$, 磁化容易方向は c 軸方向で, 異方性磁界 $H_a=8.8\text{ MA/m}$ である.

② Nd-Fe-B 焼結磁石の製法について

- ・Nd-Fe-B 焼結磁石は合金の高周波溶解・鋳造, 粗粉碎, ボールミルによる微粉碎, 横磁場配向プレス成型, Ar ガス中焼結, 焼結後熱処理によって作製された.
- ・Nd-Fe-B 焼結磁石の磁気特性の組成依存性, 焼結温度依存性, 熱処理温度依存性が示された.

③ Nd-Fe-B 焼結磁石の磁気特性と微細構造

- ・ $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{77}\text{B}_8(\text{at}\%)$ の組成をもつ標準的な Nd-Fe-B 焼結磁石の磁気特性と密度は次のとおりである.
 $B_r=1.23\text{ T}$, $H_{cJ}=960\text{ kA/m}$, $(BH)_{\max}=290\text{ kJ/m}^3$, 焼結体密度 $=7.4\text{ Mg/m}^3$
- ・ $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{77}\text{B}_8$ 焼結磁石の微細構造は主相と Nd-rich 副相からなる.
- ・ $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{77}\text{B}_8$ 焼結磁石の磁化曲線は次の特徴を持っている. すなわち, 初磁化曲線は印加磁界の増大によって急激な立ち上がりを示し, 最大印加磁界の大きさによって, 磁化曲線の角形性と保磁力が変化する. 印加磁界が大きいほど, この角形性と保磁力が増大する. これはこの磁石が典型的なニュークリエーション型磁石であることを示している.

この Nd-Fe-B 焼結磁石の最初の論文⁽¹⁾では, 最後にこの磁石の短所として温度特性が悪いことを指摘している. そして, それに対する対処の方法として, 合金組成として, Co の添加と重希土類の添加が有効であることを指摘している.

3. R-Fe 磁石は世界を支える

R-Fe 磁石は世界を支えている. R-Fe 磁石が出現し, その最初のそして最も重要な役割は, IT 社会への貢献である. IT 社会の発展にハードディスク装置(HDD)の性能向上が不可欠であった. その HDD の性能向上はハードディスク記録媒体(HD)の性能向上と磁気ヘッドの性能向上だけによるものではない. これらの性能向上以前に, 磁気ヘッドの位置決め機構の発展が不可欠であった. HDD の中で, 磁気ヘッドの位置決めはボイスコイルモータ(VCM)によって行われる. この VCM にはニッケル被覆 Nd-Fe-B 焼結磁石が不可欠である.

HDD の中の VCM 用磁石として, もし Nd-Fe-B 磁石が出現していなかったら, Sm-Co 磁石しか選択肢がない. VCM 用磁石として, Sm-Co 磁石の決定的な問題点は, SmCo_5 型磁石も, $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 型磁石も, 極めて脆いということである. VCM の組み立てはクリーンルーム内で行われる. VCM 組み立て作業中に, 磁石に加えられる小さな衝撃で, または作業者の小さな誤作業で, 磁石にひびが入る可能性がある. あるいは, 組み立て終了後, 磁石にパルス磁界を印加して磁石を着磁するときに, 磁石にひびが入る可能性がある. 磁石にひびが入ると, 割れ目から磁粉が噴出してクリー

ンルームを汚染してしまう. HDD 内部には一粒のほこりも許されない. 一粒のほこりでも, HD に書き込まれた情報が消されてしまう. Sm-Co 磁石は金属間化合物だけで構成されているために脆い. これは, HDD 用 VCM の用途には不適である.

これに対して, Nd-Fe-B 磁石は比較的靱性が高い. これは, Nd-Fe-B 磁石が, 主相の金属間化合物 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ とそれを取り囲んでいる Nd-rich 合金粒界相で構成されていて, この Nd-rich 合金粒界相が高靱性であるためだと推定される. そのため Nd-Fe-B 磁石は, 筆者が発明した Nd-Fe-B 焼結磁石も, J. Croat らが発明した熱間加工磁石も, 高い機械的強度を持っている. 特に, VCM に使われているニッケル被覆 Nd-Fe-B 焼結磁石は高い機械的強度と耐環境性を併せ持つ. VCM 組み立て作業中に誤って落下させても壊れることはない. またパルス磁界印加による磁石の着磁中にひびが入ることも決して起こらない.

Nd-Fe-B 焼結磁石は, 極めて精密に機械加工が出来て, その表面に光沢のあるニッケルメッキを施すとその表面はいつまでも清浄さを維持する. また, Nd-Fe-B 焼結磁石の $(BH)_{\max}$ が抜きんで大きいこと, さらに, 磁石の主成分が豊富で安価であることなどの特徴を持ち, Nd-Fe-B 焼結磁石は, 高性能 HDD の VCM を実現するために生まれてきたと言っても過言ではない.

Nd-Fe-B 焼結磁石が出現していなかったら, HDD は工業的に発展していなかったと言える. Nd-Fe-B 磁石が発明された1982年頃の HDD は極めて大型で, 一人の人間が持ち上げることは不可能であった. それが, 手のひらに乗るくらいに小さくなったのは, HD や磁気ヘッドの発展だけによるものではない. これらの媒体や素子は, Nd-Fe-B 焼結磁石の出現があったから性能を発揮できたのである. HDD が発展していなかったら, IT 社会の発展は大きく遅れていたと推測される. Nd-Fe-B 焼結磁石の出現が, HDD の高性能化を可能にし, IT 社会を発展させた. 現在も, HDD は Big Data を支えている. Nd-Fe-B 磁石は IT 社会を支えているのである.

Nd-Fe-B 磁石は, 世界のエネルギー消費を低減させることによって社会を支えている. その代表的な応用は空調機である. 鉄心に薄い Nd-Fe-B 焼結磁石を差し込んだ回転子によって駆動されるコンプレッサーが開発されて, 空調機の効率は格段に向上した. 高効率空調機の発展によって, 空調機は世界中に普及したと言っても過言ではない. Nd-Fe-B 焼結磁石は, 世界中の人々の快適な生活を支えている. また, Nd-Fe-B 磁石は, ハイブリッド自動車, プラグインハイブリッド自動車, 純粋の電気自動車, 燃料電池車のすべてのタイプの電気自動車用主機モータ, 発電機に使われて, これらの自動車の高効率化に貢献している. 地球温暖化低減のために電気自動車の普及と高効率化は極めて重要な人類の課題である. Nd-Fe-B 磁石は, 電気自動車の高効率化に貢献することによって世界を支えている.

4. R-Fe 磁石が世界を支え続けていくために工業的に必要な研究開発

Nd-Fe-B 磁石によって世界を支え続けていくために、Nd-Fe-B 焼結磁石の製造プロセスを改良して、次の研究課題を成功させることが必要である。

課題(1) 薄い板上の Nd-Fe-B 焼結磁石を焼結後、機械加工なしで直接作るニアネットシェイププロセスの開発。

課題(2) Dy を使わずに高保磁力の Nd-Fe-B 焼結磁石を作ることができる製造プロセスの開発。

現行の Nd-Fe-B 焼結磁石製造プロセスでは、横磁場プレス成型法(Transverse Die Pressing=TDP)が用いられる。TDP 法では大きいブロック状の圧粉体を焼結してブロック状の焼結体を作り、これを薄切りにして薄板状磁石を製造する。TDP 法では、薄板磁石を直接生産することができない。この工程ではブロック状焼結体の薄切りの時に、多量の

切りくずが出るのが大きな問題である。

TDP 法のもう一つの問題は、微細な粉末を使うことが困難であることである。TDP 法では粉末が微細になるほど、成形と磁場配向が難しくなる。Nd-Fe-B 焼結磁石では、使用する粉末の粒径が小さいほど、高い保磁力が得られることが知られている。しかし、TDP 法では、小さい粉末を使って、高い保磁力の Nd-Fe-B 焼結磁石を作ることが困難である。できる限り小さい粉末を使って Nd-Fe-B 焼結磁石を作り、資源希少な Dy に依存しないで高保磁力を達成することが人類のニーズである。

TDP 法の問題に対して筆者のグループは、新しい磁石粉末配向成形法を提案してきた。それらは、プレスをしなくて粉末を配向成形する Pressless Process⁽²⁾ (PLP 法と略す)と New Pressless Process⁽³⁾ (NPLP 法と略す)である。PLP 法と NPLP 法の概略図を図 1 と図 2 に示す。PLP 法では、グラファイト製の底の浅い容器に粉末を充填して、パルス磁界をかけて粉末を配向する。次に、配向した粉末を容器ごと焼結炉に入れて焼結すると、薄板状 Nd-Fe-B 焼結磁石が直接

図 1 PLP 工程の模式図。

図 2 NPLP 工程の模式図。

図3 Dy を含まない標準材質 Nd-Fe-B 焼結磁石の保磁力の原料粉末粒径依存性。

作製できる。PLP 法では、出発の粉末がどんなに小さくても、成形配向に問題はない。PLP 法の特徴はその名前の通り、粉末をプレスしないことが特徴である。これによって、TDP 法の欠点である薄い板を直接成形、配向できないこと、および微細な粉末の成形配向が困難であることを同時に回避している。PLP 法でも TDP 法でも焼結体の密度は、ほぼ100%に達して変わらない。PLP 法の問題は、グラファイト製粉末容器の必要数が量産では1000個以上になり、容器の費用がかかることである。

NPLP 法は PLP 法の改良である。NPLP 法では図2に示すように、粉末容器は金属製で、多数の仕切り板によって仕切られた多数の空洞を持っている。これらの空洞に均一に粉末を充填して、磁界配向をする。印加磁界の方向は、仕切り板に垂直な方向である。その次のステージで、粉末配向積層体から、周囲の金属容器を取り外して、粉末配向積層体だけを焼結炉に入れる。焼結後、多数の薄板状焼結体が、焼結台板の上に立った状態で出てくる。NPLP 法の利点は、金属容器を使い回すのでその必要数が少ない(3個で良い)ことと、生産性が良いことである。PLP 法、NPLP 法によって、課題(1)の目標は達成された。

次に粉末粒径微細化による、Nd-Fe-B 焼結磁石の高保磁力化の研究結果について述べる。図3は Nd-Fe-B 焼結磁石の保磁力の粉末粒径依存性を示す。使用する粉末の組成はすべて Dy を含まない標準的な組成、 $\text{Nd}_{31}\text{Dy}_0\text{Fe}_{68}\text{B}_1$ (mass%) である。出発点は粉末粒径 $D=5\text{ }\mu\text{m}$ のⒶの材質で、 $H_{\text{cJ}}=1040\text{ kA/m}$ である。この材質の Nd-Fe-B 焼結磁石が TDP 法で生産され、X-50材(Xは材質名)として商品化されている。この粉末を使って PLP 法、NPLP 法で焼結磁石を作っても TDP 法によるのと同じ大きさの保磁力が得られる。

$D=3\text{ }\mu\text{m}$ 、さらに $D=1.2\text{ }\mu\text{m}$ の粉末を作って PLP 法により焼結磁石を作ると、図3のⒷの材質、およびⒸの材質の

図4 Nd-Fe-B 焼結磁石の材質別特性マップと新規開発磁石の磁気特性。

Nd-Fe-B 焼結磁石ができた⁽²⁾。 H_{cJ} はそれぞれ、1240 kA/m および1600 kA/m である。目標はⒹの材質、 $D=0.5\text{ }\mu\text{m}$ で、 $H_{\text{cJ}}=2400\text{ kA/m}$ であるが、Ⓒの材質のレベルを超える Nd-Fe-B 磁石を作ることはできなかった。

図4に Nd-Fe-B 焼結磁石について、市販の材質、および PLP 法によって開発された新材質の磁気特性をまとめて示す。図4の斜めの線上の材質は TDP 法によるもので、Nd + Dy = 31 mass% 一定として、Dy 量を増やしていくことによって高保磁力化をしている。これに対して X-50を通る水平線上の材質は、PLP 法によって実現した Dy を含まない新材質である。目標はⒹの材質、 $H_{\text{cJ}}=2400\text{ kA/m}$ であるが、未達の目標である。課題(2)の目標はまだ達成される見通しが得られない。

5. R-Fe 磁石に関する基礎研究の発展

Nd-Fe-B 磁石、Sm-Fe-N 磁石は、工業的に発展して人々の役に立っているが、基礎研究の発展が遅れている。Nd-Fe-B 磁石で B はどんな役割をしているのか、Nd-Fe-B 磁石を超える R-Fe 磁石はできないのか、Nd-Fe-B 磁石の保磁力は微細構造とどのように関係しているのか、Nd-Fe-B 磁石の微細構造はどのような金相学的メカニズムで形成されるのか、もっと保磁力を上げる金相学的メカニズムはないのか、今後、近未来に至るまで、R-Fe 磁石が世界を支え続けていくために、基礎研究の発展が不可欠である。

最近、第一原理計算技術が格段の進歩を遂げて、R-Fe 化合物の安定性や磁気特性を予言できるようになった。Tatetsu ら⁽⁴⁾は、この第一原理計算により、 $\text{Nd}_{12}\text{Fe}_{14}\text{B}$ 構造をもつ仮想的な $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}$ 、および $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{X}$ (X=B, C, N, O, F, X₀) 化合物について化合物の磁化と安定性を計算した。X₀ は空孔を意味し、結晶構造と格子定数を維持したままの仮想

Nd-Fe-B 焼結磁石に関する最初の論文で、筆者ら⁽¹⁾は、この磁石が主相と Nd-rich 相から主としてなり、ニュークレーション型磁石の磁化曲線を示すことを発表した。最近、佐々木ら⁽⁷⁾⁽⁸⁾は In-Lens SEM 法により、10種類もある Nd-rich 相を区別して観察することに成功した。さらに、Nd-rich 粒界の構造と元素分布を原子スケールで解明した。このように、放射光施設を含めた高度な最先端分析機器を駆使して、Nd-Fe-B 磁石の微細構造の研究が大きく進展している。これまで保磁力と微細構造を関係づける理論は連続体モデルによるものであったが、原子スケールでの構造や元素分布と保磁力を関係づける理論がはじまっている。近い将来、R-Fe 磁石の微細構造から保磁力を予言し、所望の保磁力を得るために必要な微細構造の算出が出来るようになることを期待する。