

ホソカワ粉体工学振興財団設立 30 周年記念特別講演
「Nd-Fe-B 焼結磁石の開発 40 年」*Special Lecture for the 30th Anniversary of the Establishment of HPTF
“40 Years of Nd-Fe-B Sintered Magnet Development”

佐川 真人

Masato SAGAWA

大同特殊鋼株式会社 顧問

Advisor, Daido Steel Co., Ltd., JAPAN



はじめに

本話をします Nd-Fe-B 焼結磁石は、40 年前の 1982 年に生まれました。その時に世界一強い磁石になりました。いつかは世界一ではなくなり他のものが出てくると思いましたが、ずっと世界一のままで

〈著者紹介〉

1966 年 3 月神戸大学工学部電気工学卒業，1972 年 3 月東北大学大学院博士課程修了。同年富士通に入社，住友特殊金属を経て，1988 年インターメタリクス（株），2013 年 NDFEB（株）を設立し代表取締役役に就任，2016 年大同特殊鋼（株）の最高技術顧問就任。主な受賞に，日本金属学会功績賞，日本国際賞，エリザベス女王工学賞など。専門分野／金属工学（磁性体）

今まできています。図 1 は世界最強永久磁石の変遷を示しています。(BH)max（最大エネルギー積）は磁石の強さを表しますが，60 MGOe（メガガウスエルステッド）は限界値です。作っている化合物の磁化が全て出現したときに 60 MGOe の (BH)max が出ます。ほとんどフルに出ており，これもまた Nd-Fe-B 焼結磁石の特徴です。どうしてなのか説明します。

Nd-Fe-B 焼結磁石の (BH)max の世界記録はなぜ破られないのか？

本当に恵まれているところがあります。Nd-Fe-B 焼結磁石よりも強い磁石を探そうとして，他のさまざま



*本解説記事は，2022 年 9 月 5 日に開催されましたホソカワ粉体工学振興財団設立 30 周年記念講演会での佐川先生の特別講演の一部を編集してまとめたものです。

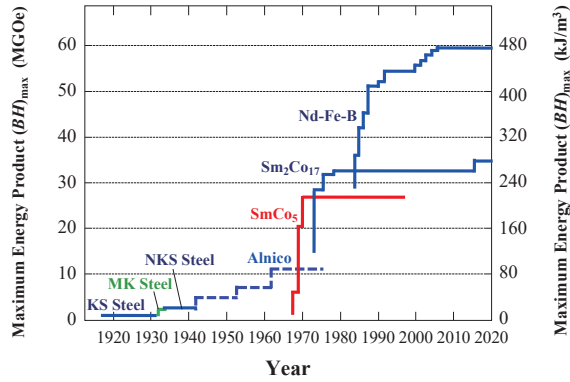


図1 世界最強永久磁石の変遷

まな化合物や物質が探索されています。磁化の大きさを表す飽和磁化と保磁力に関する異方性磁場の関係をプロットしますとネオジム磁石よりも強くなる可能性がある材料はいろいろと見つかっています。

また、Nd-Fe-B 焼結磁石は熱に弱いので、図2に示すように、飽和磁化が温度によって結構早く低下してしまいます。それ以外の物質は比較的熱に強いですが、磁気異方性も早く低下してしまいます。このように Nd-Fe-B 焼結磁石自体はひ弱な物質です。そのため、新しい最強の磁石が出てきてもいい訳ですが、なぜ出てこないのかについて説明します。

図3は Nd-Fe-B 焼結磁石のマイクロストラクチャーです。この中の結晶粒界に、非常に薄いネオジムリッチ相ができていますが、その効率が大変良いのです。普通に焼結して熱処理をするとネオジムリッチ相が非常にうまく出てきます。このようなマイクロストラクチャーについては、NIMS 物質・材料研究機構の宝野さんや広沢さんらのグループが詳しく調べられ、どのようなことが起こっているのが非常によく分かるようになりました。それによると、Nd-Fe-B 焼結磁石の熱処理をする前は結晶粒界に何もありません。ところが熱処理をすると、非常に薄いネオジムリッチ相が出てきます。この粒界三重点では磁石が途中で酸化した酸化物、あるいは余分なネオジムリッチ相のネオジムがたまりまます。できるだけ酸化させないで、余分なネオジムを加えないぎりぎりの組成で磁石を作ると、上述のような限界ぎりぎりの 60 MGOe が出ます。このマイクロストラクチャーは、粒界三重点も全てなくなって結晶と結晶粒界だけになると、結晶の大きさが 5 μm ぐらいで、結晶粒界にネオジムリッチ相ができます。

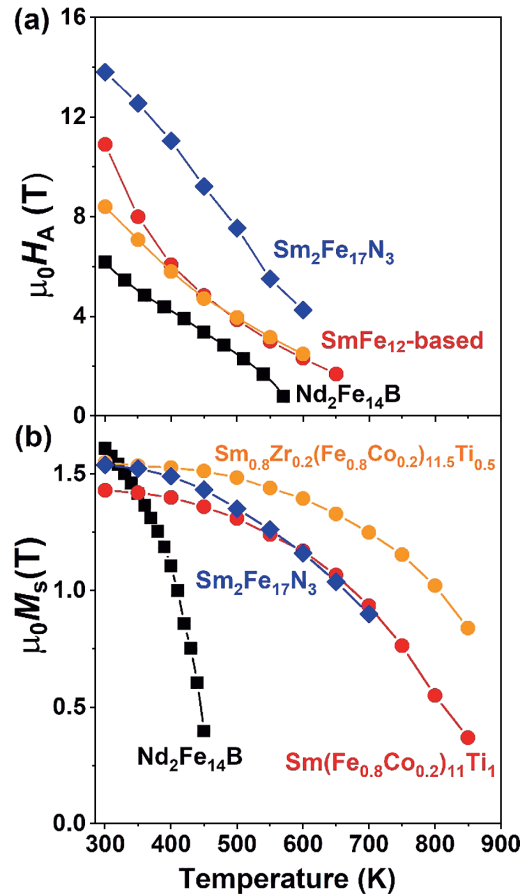
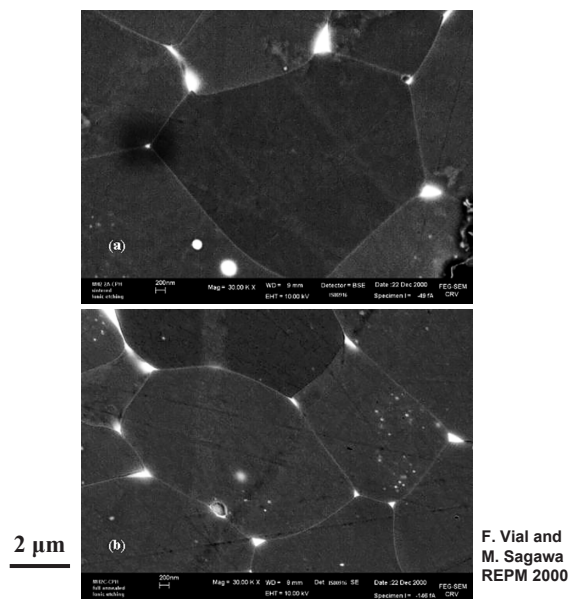


図2 固有磁石特性の温度依存性



FEG-SEM micrographs of cross sections perpendicular to the alignment direction of (a) as-sintered magnet ($H_{ci} = 439$ kA/m), (b) optimally heat treated magnet ($H_{ci} = 1094$ kA/m).

図3 Nd-Fe-B 焼結磁石の微細構造

この層の厚みは 2 nm から 3 nm です。ネオジムリッチ相という磁石はセル状構造です。このネオジムリッチ相が占める割合はほんの少しで 0.2% しかなく、99.8% が主相のセル状構造ができます。

この前まで最も強かったサマリウムコバルト磁石では、そのようなことは全くできません。セル状構造のセルのバウンダリーの比率は非常に大きく、10% ぐらいあるかもしれません。このような構造ができることが Nd-Fe-B 焼結磁石の強い理由です。中にある化合物はひ弱なところがありますが、マイクロストラクチャーでこれほど極端にぜい肉を取ったようなものができます。それが強い磁性が維持される理由です。

なぜ (BH)_{max} の世界記録が破れられないのかというと、極端に効率の良いセル状構造が実現しているからです。これは私が意図したわけではなくて、できたことは発明者として幸運でした。その幸運はどこにあるかという、鉄、ネオジム、ボロンの三元系の状態図の中にあります。これによると Nd-Fe-B 焼結磁石は先ほど見たように主相がほとんどで、非常にわずかなネオジムリッチ相ができます。そして、ネオジム・鉄・ボロンの化合物だけが磁性体で他は非磁性であることがいいのです。

100°C 以上で減磁, Dy によって保磁力増大 (工業化)

サマリウムコバルト磁石やそれ以外にも他の化合物がいろいろと見つかっていますが、それらは皆、これほど離れた所に非磁性のものがあるような状態図ではありません。非常に複雑でたくさんの化合物があり、それが磁気を持っており磁石が作り難いのです。これは生まれながらに恵まれた状態図を持っており、これが磁気の強い理由です。そのため、これを抜くことはなかなか難しいです。これから 20 年、さらに 2050 年まで見てみると、もしかするとこのままずっといくのではないかと思います。他にも新しいものが見つかったと報告されています。先ほど言った NIMS のグループ等が取り組んでいます。サマリウムコバルト 12 もその一つです。確かに非常に有望ですが、これがネオジム磁石を抜くのは非常に難しいです。それはこの粒界構造、セル状構造を作るのが非常に難しいためです。

Nd-Fe-B 焼結磁石がずっと世界一なのはそのような理由です。化合物の素質としては、60 MGOe に対して 75 MGOe ぐらいまでの可能性はあります。ところが、今のネオジムリッチ相の極端な、効率の良いセル状構造はできないのでなかなか難しいです。Nd-Fe-B 焼結磁石を工業化するに当たり、最も問題だったことは熱に弱いところでした。Nd-Fe-B 焼結磁石は 100°C ぐらいまでしか持ちません。ところが、温度特性を改良する方法として、Dy (ディスプレイシウム) を加えればよいことが分かりました。これは私が住友特殊金属に移り、同社の人たちと一緒に見つけました。これにより 100°C 以上に使える Nd-Fe-B 焼結磁石ができて、工業化が実現できました。

残留磁束密度と保磁力、あるいは耐熱性の異なるさまざまなグレードのものができ、MRI や Speaker から、OA 機器用モーター、そして電気自動車に使えるものまでできるようになりました。このように様々な物ができるようになったのは、Dy を見つけ、その組成を 0%、5%、10% と変化させることができたからです。しかしながら、2000 年を越える辺りから、Dy は非常に資源が少ないため、重希土類を使わないものを開発して欲しいとの要望があり、これが問題として残っています。重希土類を使わないか少なくし、かつ耐熱性のある Nd-Fe-B 焼結磁石の開発が切望されました。

これに対して、最も簡単な方法は結晶粒の微細化です。結晶粒を微細化すると、Dy がなくても保磁力が上がることは分かっています。そのために粉末の粒径を小さくします。そうすると、焼結体の結晶粒も小さくなり保磁力も上がります。その方法として粒径を小さくしても扱える成形方法がプレスプロセスです。プレス法については後で述べますが、細かいものを扱うのは苦手です。そこで粒径の小さいものを作り、0.5 μm まで小さくすると、Dy が 20% 入っていたと同じぐらいの組成、保磁力が出るはずであるという予想が立ち、これに向かって研究していきました。

結晶粒微細化により H_{cj} 向上, Dy なし耐熱磁石の可能性

もう一つの問題は、Dy を入れるとどんどんと磁

化が落ちていきます。ネオジウムと Dy の磁気モーメントの方向が反対を向いているので落ちます。しかし、粒径を小さくしていくだけでは何も落ちないので、このままの磁石の強さで耐熱性だけを上げることができます。そのためには粒径を 0.5 μm にしなければいけません。これが大変なことでしたが、取り組んでいきました。図 4 は粒径と保磁力の関係を示します。出発点は黒い星印で、粉末の粒径は 5 μm、その時の保磁力は 1,040 kA/m、12 kOe ぐらいです。これを上げていき粒径を小さくして、0.5 μm のときに 30 kOe が出れば、電気自動車用に使えます。この時は窒素を用いたジェットミルを使っていました。より小さくして性能の良い粉末を得るために、ジェットミルがよいということは定着しました。ホソカワミクロンの MJT (図 5) というターゲット型ジェットミルによって 3 μm のところまで出来ました。そして、保磁力が 15 kOe、あるいは 16 kOe まで上げることが出来ました。これだけでも結構メリットです。

保磁力をより上げることを考えましたが、窒素のジェットミルでは出来ませんでした。同じターゲット型ですが、ヘリウムガスを使うジェットミルが必

要になりました。なぜヘリウムガスが良いのかというと、ヘリウムガスのジェットは非常に速く、窒素の 3 倍ぐらいのジェットを作ることができます。ヘリウムガス循環式のジェットミル粉碎を行ったところ、1.2 μm で保磁力が 20 kOe まで上がってきました。しかし、これ以上はうまくいかず、これが限界となっています。保磁力の改善はそこまでですが、まだ今も挑戦しています。

粉末成型・配向性の改良

もう一つの課題は粉末成型・配向性の改良です。焼結部品は Near Net Shape Manufacturing を目指すのが一般的で、自動車のさまざまな焼結部品は全て Net Shape で作って生産しています。ところが、Nd-Fe-B 焼結磁石だけは皆が全くそれをしません。Near Net Shape Process は非常に難しいのですが、私はこれを行っています。強く大きな磁石の間に金型を挟み、金型の中に粉末を入れて、プレスします。横方向に磁場を掛け、縦方向に圧縮するプレス法 (TDP: Transverse Die Pressing) です。これで行くと、大きな塊のブロック磁石しかできません。殆どの磁

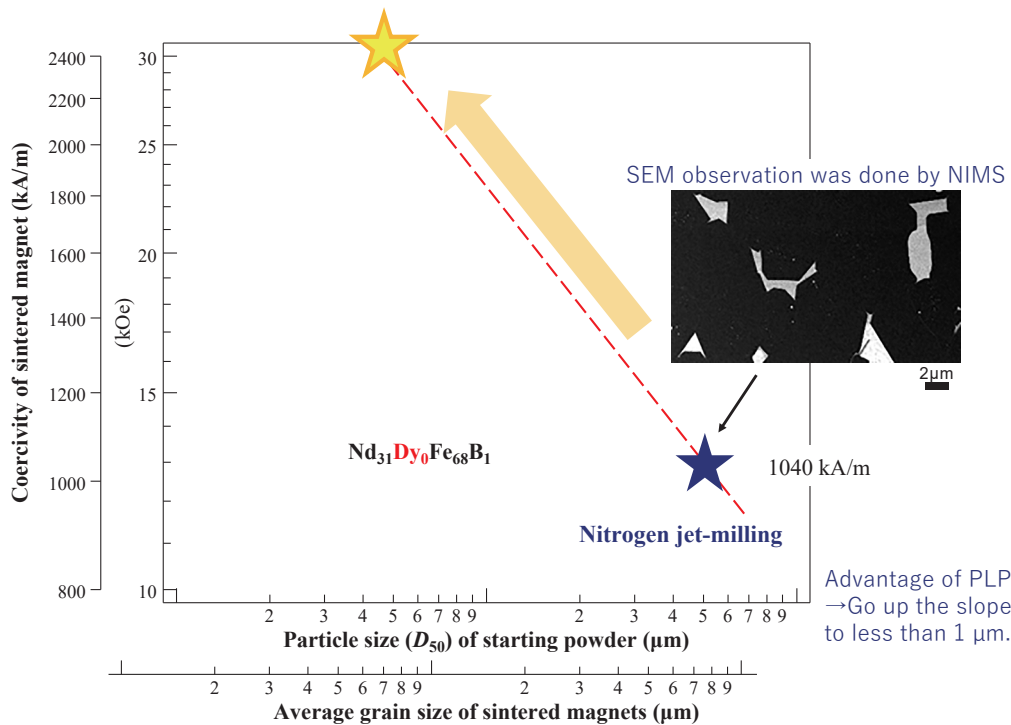


図 4 5 μm 焼結磁石の磁気特性

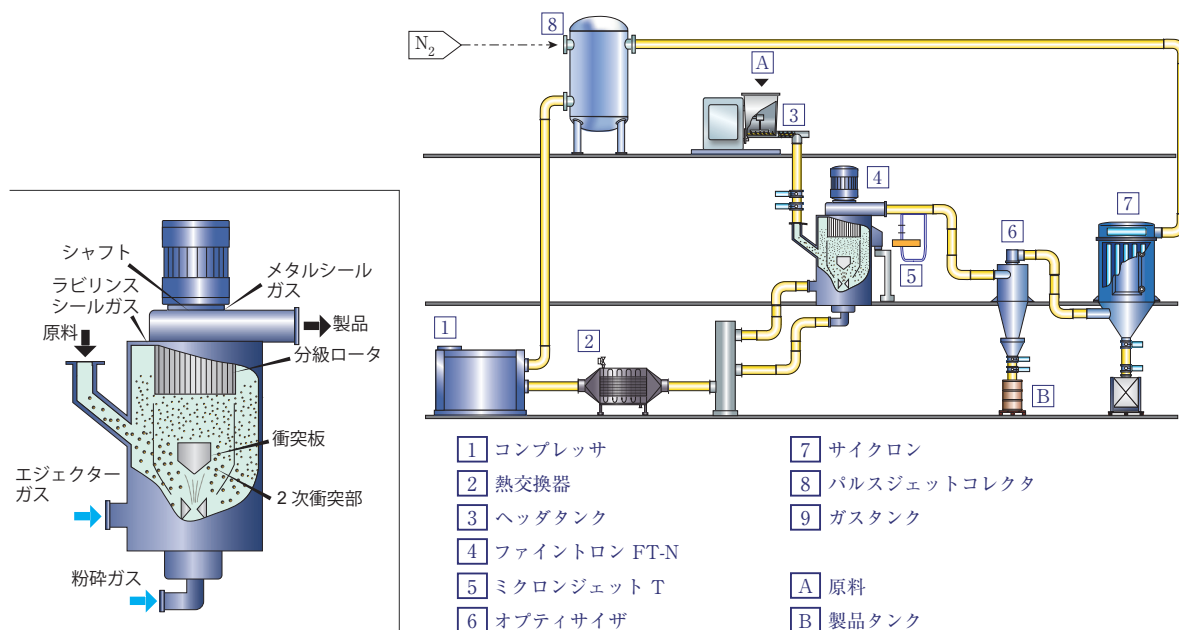


図5 ミクロジェットT型の構造模式図（左）および循環回路システムフロー（右）

石は薄い製品なので、薄い製品にするためにスライスして使われています。

スライスの時に様々なスラリーが出てロスになります。そのロスは全て回収していると言われていますが、回収は大変面倒なプロセスになり、SDGsの観点からこの様なことで良いのかと思います。Net Shapeで行う方法にしなければいけないと思いますが、多くの磁石メーカーはあまり積極的ではありません。上述のTDPで金型プレスすると、粒径が小さくなると配向がしにくくなります。保磁力は上がりますが、Brも落ちていって何の改良にもなりません。ところが、これから話しますプレスをしないう方法で成型をすると、ここのBrが落ちないようなプレスが出来ます。

プレスレス法

プレスレスプロセスPLP (Press-less Process) はプレスしない成型方法です。この方法では、カーボンでできたモールド(金型)に粉末を詰めて、蓋をしてパルス磁界を掛けます。そして、金型ごと焼結炉中に入れて焼結すると、薄い磁石が直接できます。プレスをしません。そうすると、粒径を小さくしても配向度を落とさずに焼結体ができます。

これをさらに改良した方法として、ニュープレス

レスプロセスNPLS (New Pressless Process) という方法があります(図6)。例えばモールドに仕切板を50ぐらい付けて、粉末を充填します。それほど高密度ではありませんが、ある程度は高密度に充填しなければいけません。そして、蓋をして横方向にパルス磁界を掛けて配向します。充填した粉末を、仕切板を入れた状態で、焼結炉に入れます。焼結すると薄い板状の磁石が一度に出てきます。この金属のモールドには薄い仕切板が付いており、粉末を充填して、配向、焼結すると、50個の薄い板状の磁石が出来ます。

先ほど述べましたように、この方法で行うと、粒径が $3\mu\text{m}$ だと保磁力が少し上がり、 $1\mu\text{m}$ で倍ぐらいに上がります。工業的には $3\mu\text{m}$ までで、磁気特性のメリットがあります。Near Net Shapeを工業的に広めたいのですが、まだ限界があります。このサンプルの作製実験の結果を見ると、組成はDyとTb(テルビウム)がほとんどゼロです。酸素、カーボン、窒素は少なくしています。そして、粒径は $3\mu\text{m}$ 弱です。この粉末を使ってNPLPの実験を行い、できた磁石の代表的な磁気特性は保磁力が15 kOe以上、(BH)maxが52.8 MGOeと非常に高い値が出ています。これほど高い値は、金型プレスでは困難です。

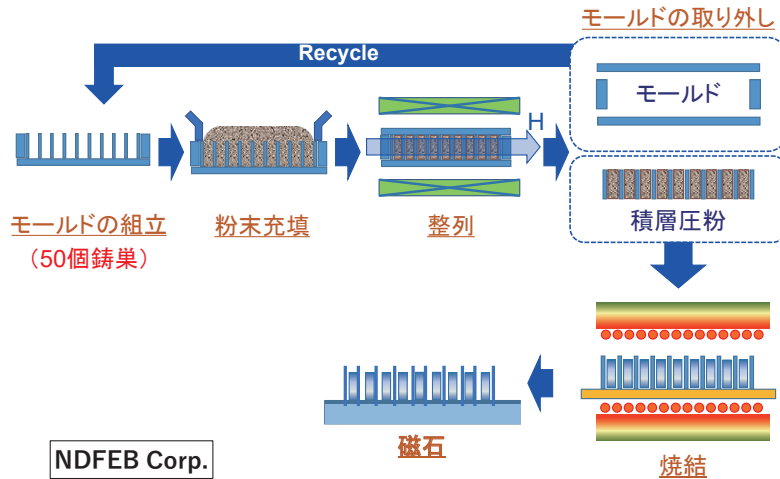


図6 ニュープレスレスプロセス (NPLP)

NPLP によるサンプル作製実験

図7のような15個のセルを持ったモールドで焼結体の作製実験を行い、焼結体の横方向、高さ方向の寸法と厚さのばらつきを調べました。モールドへの粉末の充填率は 3.5 g/cm^3 です。焼結体は 7.52 g/cm^3 で、ほとんど最密充填になっています。その寸法をみると、横方向で1.25%、縦方向で1.41%、厚さは3.83%ばらついています。焼結体寸法のばらつきは、粉末の充填量のそれによるため、粉末の充填を非常に均一にする方法を開発することが重要です。実験室でこの程度しかできていませんが、工業的にさらに取り組んでもらいたいと思います。

さらに磁気特性のばらつきを調べています。板状の磁石から6個のサンプルを切り出して測定しました。そうするとBr残留磁束密度は0.3 kG、配向度は1.76%、保磁力は0.62 kOeばらついています。ばらつくといっても、それほど大きなばらつきではなく、普通の金型プレスでも、結構ばらつきます。しかし、これをより完全に均一にしていきたいと思っています。

このような寸法変化のばらつきを小さくするにはどうするか。技術はできているので、あとは工業的により力を入れて取り組んでいかなければいけません。そのためには、より多くの磁石メーカーで取り組んでもらう、あるいはNPLPを実施する量産装置の導入です。ある会社で取り組んでもらっていますが、より多くの競合が現われ競争してもらいたい

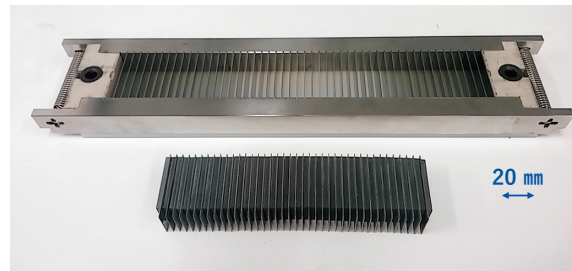


図7 NPLP 装置用モールドとこれを用いて作製した焼結体

す。そのように競争してもらえると、世界中の磁石をこの方法で作ることが出来るようになります。というのは、焼結体でNet Shape Processを目指すのは、世界の常識というか普通なので、その様になっていくと思います。

積層 Nd-Fe-B 焼結磁石

私が設立しましたNDFEB社で行った仕事が積層磁石です。なぜ積層にするのかというと、全てのモーターで磁束が変化しますが、磁石の中で磁束が変化すると渦電流が発生して、それがエネルギーロスになります。渦電流の損失は結構大きいのです。全く積層していない磁石の中では、例えば400 Wぐらいの損失があるようです。今の電気自動車EVでは、積層まではいきませんが分割しています。これによって、渦電流損失はかなり減っていますが、

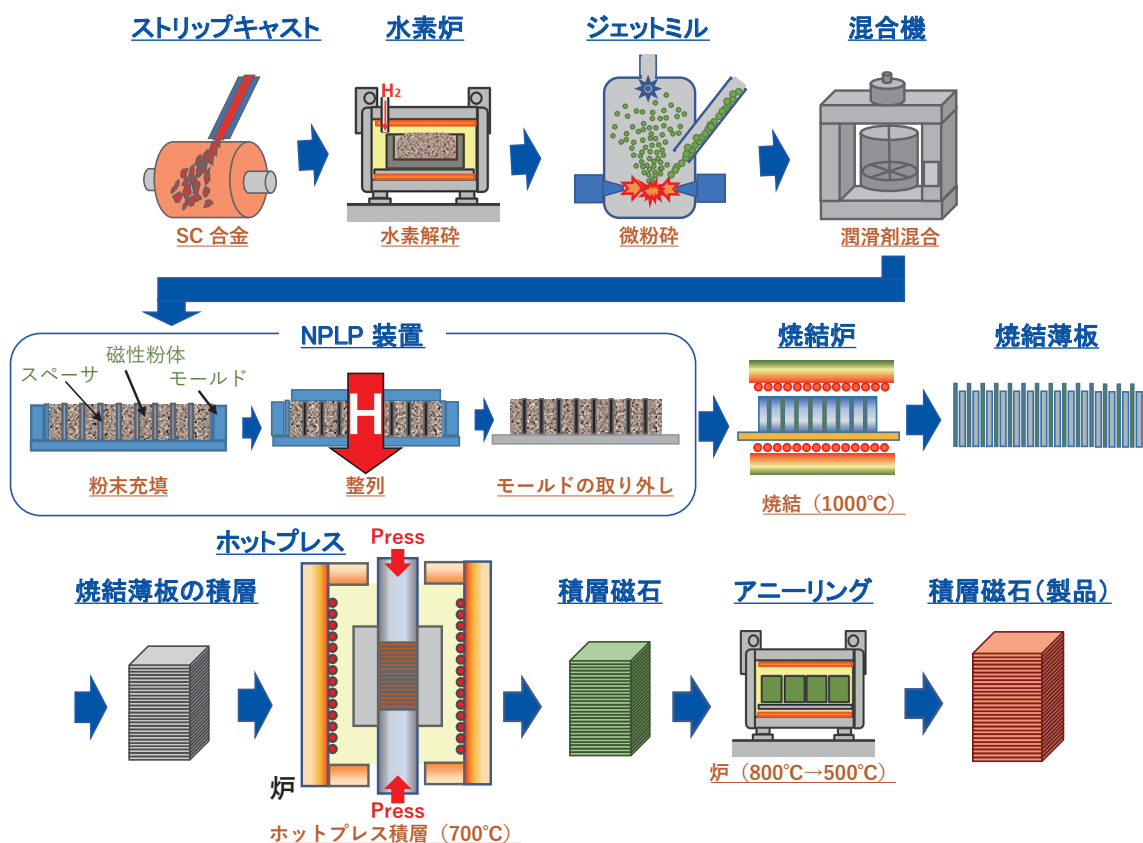


図8 NPLPによる積層磁石の製造プロセス（全工程で研削もスライスも不使用）

それでも 100 W 以上あります。100 W 以上がずっと続いていると、それだけでも磁石の温度が上がっていくので、これをできるだけ抑えるために積層が有効となります。

ケイ素鋼板やトランス等は全て積層されていますし、磁石も積層する必要があります。今までも世の中に積層の方法はたくさんありますが、従来の方法では、TDP や普通のプレス法でブロックを作り、それをスライスし、貼り合わせて焼結して積層します。それではロスも多く値段も高くなり、あまり使われていません。

私たちは、環境省からの委託を受けて、2019 年から三年間積層焼結磁石の開発事業に参加しました。これは、EV、FCV 駆動モーター用高効率低価格 Nd-Fe-B 積層磁石一体製法を目指したもので、後述の通り、ほとんどスライスせずに、一体で一度に作ることに成功しました。

この方法は、合金を溶かして冷却により塊状体を作り、ジェットミルで粉碎して、潤滑剤を混ぜます。ここまでは普通の方法と同じですが、その後、前述

のプレス法、NPLP を使いました（図8）。配向方向はこの縦方向に配向して、薄い磁石を直接作りました。薄い磁石を重ねてホットプレスを行います。ホットプレスをして積層体ができます。積層体を熱処理して、積層磁石が出来上がります。この方法を使うと磁石のロスが無く、安価にできる可能性があります。

サンプルとして、スライスも研磨もせずに、厚さが約 2 mm、高さが約 10 mm で、20 層の積層磁石を作りました。磁石の中には Dy は全く入っていませんし、この様な物を作りました。積層しない磁石であれば、EV 用としてここまでの保磁力が必要です。ところが、仮に積層して温度が 150°C ぐらいまでしか上がらなくなると、ここまでの保磁力で良いという見込みを立てました。また、さらに保磁力を上げるために、重希土類の $TbF_3(Tb_2O_3)$ を少しだけ挟み、ホットプレスをしました。そうすると、図9の黄色星印のような今までになかった高性能の磁気特性を持つ積層磁石ができました。(BH)max が 50 MGOe という最高のままで保磁力が 25 kOe ぐら

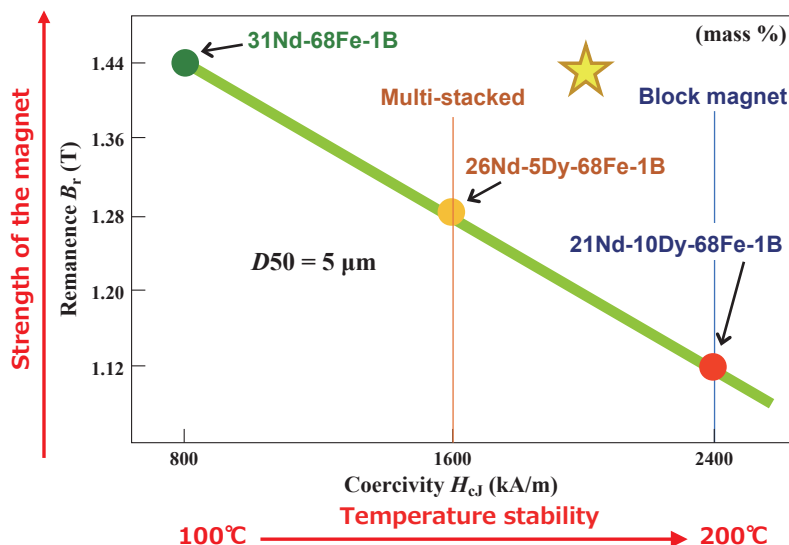


図9 Nd-Fe-B 積層磁石 (Tb 含有率 0.5%) の磁気特性

いまであり、さらに角型が良いのです。

先ほど積層した時にここまであればいいと言いましたが、それよりもより高い保磁力を得ています。Br も 1.44 T と非常に高いです。今までは最も弱い磁石だけにしか実現しなかったものが、これで保磁力の高い耐熱性のあるものとしてハイレベルの (BH)max, Br が使えます。これからはこれを工業化していくときに、今までの製品に対して Tb を使った場合は 25 kOe ぐらいです。Dy を使うと 20 kOe ぐらいの製品を売ってあげたいということで、企業に提案しています。

積層磁石のメリットは以下の通りです。最高記録は 50 MGOe を持っており、自動車用として使えます。完全にスクエア、角型で、このようなものは今までにありませんでした。それから、重希土類は 0.5 wt% で、渦電流損失はほとんどありません。そして、スライスや粉砕工程がないため、歩留りはほぼ 100% です。後はホットプレスをどのように安価に処理するかが課題で、現在検討中です。

おわりに

これからは、私が時々言っていますように、ロボットがたくさん作られるようになり、300 億台のロボットが作られる時代が来ると思います。その時には希土類や鉄、磁石は莫大な量が使用されるようになります。人類の歴史の推移の中で、石器時代、青銅器時代、鉄器時代、そして今をシリコン時代と呼ぶとすると、2050 年は希土類・鉄の時代になるかも知れません。ロボットの手足、ドローンの羽根、プロペラ等に使われて、焼結磁石が多量に使われる時代がきます。その際、原料資源の確保が懸念されます。現在は中国が多くの生産割合を占めていますが、中国の埋蔵量は 38% 程度と見込まれています。他にも産出国はいろいろあるので、中国に集中せず分散して、世界中で希土類を生産できるようにすると、希土類・鉄時代に対応できると思います。