

希土類磁石開発秘話—貧乏研究はつらいよ—

片山 利一 (旧電子技術総合研究所 磁性材料研究室)

要旨

この希土類磁石開発秘話は、旧電子技術総合研究所磁性材料研究室で、1960年代後半から1970年代の半ばのおよそ6,7年間に行われた短い期間の研究の回想である。この秘話は、旧工業技術院時代の中で特許料収入が、たまたま、10番以内であったという理由で選ばれたらしいが、当時の印象を一言で言えば、いつも研究費をどう確保するかに窮々としていたことに尽きる。少し纏まった研究費を頂いたのは1970年代初頭の頃で、主にこの時期の仕事がこの開発秘話の舞台である。その後の数年間は、何とか正式な研究テーマとして研究を続けるために一生懸命に働いた。しかし、その望みは儂くも絶たれ、再び経常研究に戻った。その一方、所内の評価とは対照的に、学会や一部の企業からはある程度評価されていたようで、この時期に申請した特許が日本発明協会昭和58年度全国発明表彰朝日新聞発明賞に選ばれた。

本文

1、はじめに

2016年の初めに、「希土類磁石開発秘話」という題目で、工業技術院時代の「革新的な技術はどのようにして生まれたか—AISTにおける革新的研究成果誕生秘話—」(産工会ホームページ)への執筆を依頼された。今回の依頼は、どうやら、我々(芝田次男と片山利一)が1960年後半から概ね1970年代の半ばにかけて開発していたサマリウム・コバルト(Sm-Co)系永久磁石の特許料収入が工業技術院の中で10番以内(手元にある資料では、1992年3月の時点で累計9番目。もっと前の資料の順位はもう少し上位であった。)に入っていたのがその理由らしい。当時、この研究は芝田さんが中心になって進めていたので、本来ならば、当然、芝田さんが執筆すべきであるが、現在ご病氣療養中であるので、代わって、私(片山)が、薄れゆく記憶の糸を手繰り寄せながら、研究を行った当時の社会的、学術的背景、研究の目的や見通し、さらに苦労したこと、感じたこと、エピソードなどを書いて見たい。しかし、当時を思い出すと、研究費の工面に大変苦勞をしていたので、どうしてもその辺の話が中心になってしまうことを予めご容赦頂きたい。

2、希土類磁石研究の発展の推移

1960年代初めというと、希土類遷移金属(R)同士の分離精製がようやく始まり、その一部が磁性を持つことが判り、さらにR金属と鉄(Fe)やコバルト(Co)などの鉄族遷移金属との相図(状態図)の研究や、これらの金属が作る各種金属間化合物の基礎研究が始まったばかりの頃である^{1),2),3)}。その後、1966年に、RとCoの金属間化合物の磁気特性、

とりわけ SmCo_5 が優れた永久磁石としてのポテンシャル（大きな結晶磁気異方性）を持つことが報告されて大きな注目を集めた^{4),5)}。当時は、単体元素としての希土類金属はまだ極めて高価で、酸化し易く、取り扱いが難しいなどの理由から、我国の企業のほとんどがまだ研究を始めてはいなかった。事実、当時、精製された単体の希土類金属は米国からしか輸入出来ず、学術目的の研究の為には輸入の免税措置がある時代であった。

しかし、磁性研究者にとっては、希土類金属 (R) と鉄 (Fe) 或いはコバルト (Co) との間に多様な結晶構造の金属間化合物が存在すること、それら化合物の多くの物性がまだ明らかでなく、しかも磁性材料としての応用研究もまだ手付かずに近い状態であったこと、などの理由から極めて魅力的な分野の一つであった（注参照）。興味はあったものの、当時の我々は、いわゆる経常研究の枠の中で研究している貧乏グループであったから、高価な精製された希土類金属を買うことはとても儘ならない状態で、希土類金属の混合物であるミッシュメタルを買うのが精一杯であった。精製されたサマリウム (Sm) とイットリウム (Y) を買って、どうにか少し研究が始められたのは、材料部内特研という名目で、年 200 万円、2 年間という期眼で研究費を頂いた 1960 年代の終り頃になってからである。これは勿論大変有り難いことであったが、原料と消耗品代でほとんどが消えてしまうような金額であったから、記憶では、専ら、電気炉を作ったり、工作部の大きな旋盤でコイルを巻いたり、試作品を作って貰ったり、さらに他研究室で装置を借りたりして過ごした 2 年間であった。しかし、毎年、何校かの大学から多くの卒研究生が来ていたし、磁性材料研究室の皆さんも陰に陽に応援してくれたので、結構楽しく、気分的には充実していたように思っている。当時、我々の、この研究に対する目的や学術的な位置付けは単純明解で、当時トップクラスの Sm-Co 磁石を試作することと、関連する大型の単結晶を作製して基礎研究を行うことにあった。これらの金属間化合物に関する基礎研究は始まったばかりであったし、磁石の作製にも漠然とした少し自信めいたものも感じていた。

資金的に漸く一息ついたのは、当時の石井材料部長の勧めで、森所長が始めた「契約研究」という制度に応募した時期である。正直なところ、私自身は契約研究制度には少し疑問があったが、背に腹は代えられずに、2 年後の磁石特性を約束して、契約研究を申請した。契約研究申請の約 1 か月後、森所長と黒川企画室長が視察に来たが、研究目的と内容を説明したら、森所長の「判った、判った」の一言で契約研究が決まったと聞いている。時期は、多分 1970 年代の初めの頃で、2 年間で 1000 万円であった。これで買った主な装置が磁場中圧縮装置と単結晶製作炉で、単結晶炉は次の段階の研究に備えたものであった。

この契約研究では、芝田さんが高性能 Sm-Pr (プラセオジウム) -Co 系焼結磁石の開発、私が高性能 Sm-(Co, Fe, Cu) 系鑄造磁石の開発で、共に当時トップクラスの特性を数値目標として挙げた。当時の永久磁石の開発手法には上記の 2 つがあったからである。2 年を待たずに契約研究の義務を果たしたが、この時期に、(Sm-Pr) Co_5 系希土類磁石の製造方法、焼結温度依存性、磁石組成の最適化、鑄造磁石の製造方法、等の特許を申請した。また関連した論文も何本か書いたし、新聞にスクープされたこともあった。このスクープ記事を

巡っては、一部の人達から「許可なく宣伝した」等と全く謂れ無い非難を受けた。

この当時に取得した特許の幾つかが、たまたま、住友特殊金属 KK の当時技術開発部長であった日口章さんの眼に止まり、同社と技術指導契約を結ぶことになった。正確な時期の記憶は定かではないが、確か契約研究が終了して間もなくの 1973, 4 年頃だったと思う。技術指導の担当は同社の技術開発部の石垣尚幸さんであった⁶⁾。これが始めに述べた工業技術院中で 9 番目の特許収入に繋がった訳である。我々の特許が具体的にどの程度役に立ったかについては直接聞いたことはなかったが、この技術指導は我々にとって大きな励みとなった。

しかし、契約研究の後我々の苦難は続いた。経常研究から抜け出し、特研の中のテーマに挙げて貰うべく、特許を書けば挙げてくれるか、論文を書けば挙げてくれるかと、Sm-Co 系や Gd-Co 系等の大きな単結晶を作り論文も書いた。学会活動にも我々なりの努力をした。また研究方針を巡って激しい議論もしたし、外部の研究資金にも応募した。しかし結果はすべて無駄であった。「民間企業が始めたような研究は電総研ではやる意味がない」というのが大方の理由のようであった。当時の電総研では国主導で民間企業を指導するような大型研究が幅を利かせており、地味な研究や実用研究は冷たくあしらわれていた。我々は勿論がっかりした。と同時にやっぱり！とも思った。少しでも安心して研究できる環境が欲しかっただけなのだが。

1974, 5 年頃には、SmCo₅ 系希土類磁石よりも高性能な Sm₂(Co, Fe, Cu)₁₇ 系第 2 世代希土類磁石（注参照）の開発も始まり、参入する企業も次第に多くなった。それに伴って希土類磁石作製に必要な研究設備も大幅に進歩した。我々も、老朽化した既存の装置を改造したり、新しい装置を試作したりして対応するよう努力した。例えば、自作のグローブボックスを使って酸化しないように微粒子を作製する工夫、磁性微粉末の磁場配向性を改良する為に磁場方向と直角にプレスする金型の試作、手探りで静水圧プレス、等々色々な事を試した。しかし、次々に問題が起き、なかなか最新の装置と同じ性能を出すという訳には行かなかった。という訳で、この頃から、我々の研究は、高特性化を狙う磁石開発から、徐々に、研究費のあまり掛からない安定性の研究とか、保磁力の機構解明とか、測定法の研究とか、単結晶を使った物性研究、などの方向に移って行った。

3、その後の展開

こうして、希土類磁石開発の研究は正式な研究テーマに取り上げられることなく終わった。芝田さんは、その後も、年を追って希土類磁石に必須の設備が老朽化する中、経常研究の枠内で、希土類磁石の測定法、磁気特性の安定化、保磁力の機構解明、希土類・遷移金属 (R-TM) 系金属間化合物の研究、等を定年まで続け、学会や研究会でも活躍した。また、求められれば企業や大学の技術指導に応じ、多くの卒研究生や大学院生を指導して世に送り出した。そして定年後はある企業の技術顧問に迎えられた。卒業生の中には、就職した企業で希土類磁石を使った光デバイスを開発し世界に羽ばたいた人もいる。私とは言う

と、研究費に惹かれて、1973年にIBMで始められた非晶質R-TM膜（Gd-Co膜やGd-Fe膜など）の研究を1970年代半ば頃から並行して始めていたが、徐々に非晶質膜や磁性人工格子膜の研究にのめり込み、遂には希土類磁石の研究からは離れてしまった。芝田さんにはこっぴどく叱られた。

ただ、こうした挫折した経緯の中で、唯一慰めとなったのが、皮肉にも、契約研究から8年近くも後になってから、（社）発明協会主催の昭和58年度全国発明表彰の「朝日新聞発明賞—希土類磁石の製造方法の発明—」を受賞したことである。住友特殊金属の日口章さんの強い後押しがあったと聞いた。この年の同時期に、住友特殊金属の佐川真人さんの発明したNd-Fe-B焼結磁石（注参照）の発表があった⁷⁾。この磁石は第3世代の希土類磁石で、今も世界最強の希土類磁石として君臨している。当時は磁石だけでなく希土類を含む水素吸蔵合金やB, Si, Geなどを含む非晶質合金などの材料研究が盛んな時期でもあった。この磁石の出現を契機に、住友特殊金属KKからの特許使用料は次第に減少し程なく終了となったが、今でも同社の関係者の協力には感謝している。

この頃から希土類磁石の応用分野は凄い勢いで広がり、小型スピーカー、ハードディスク、ロボット、携帯電話、などの電子機器をはじめ、MRI装置にも使われ、最近のハイブリッド自動車には欠かせない材料にもなっている。今思えば、我々が、ほんの僅かな期間であったにせよ、我国における希土類磁石の初期の開発研究に少しだけでも関与出来たことを嬉しく思っている。と同時に「もし続けていれば、もう少し何か出来たかも----」などという無念さが一瞬心をよぎることもある。

最後に一言、今回、希土類磁石開発の秘話などと称して、偉そうにも、くだらないことを書き綴った。今の産総研には我々の成果なんかは足元にも及ばない素晴らしい成果を挙げているグループが沢山ある。間もなく人生の最後を迎える者から言わせて頂ければ、研究所の為政者の方々には、評論家や口先研究者などの派手な宣伝に惑わされずに、研究の本質を真摯に見極め、学術、応用の分野を問わず、優れた成果を挙げている真面目な研究者を、間違っても、潰すようなことをして欲しくないと思っている。真面目な研究者こそ日本の科学技術の宝である。

4、まとめ

以上、1960年後半から1974,5年頃の間に関与したサマリウム・コバルト(Sm-Co)系希土類磁石開発の苦労話を中心にエピソードを交えて紹介した。あまりにも研究費に困っていたと云う記憶が強かったため、恨み節が多くなってしまった感がある。それはそれで我々にとっての実感でもあるが、この研究に携わっていた期間が全く不幸だけであったとは思っていない。貧乏ではあったが、多くの優れた学生さん達とも会え、共に実験の苦労を味わった。卒業後も長くお付き合いするチャンスにもなった。また、全員ではないものの磁性材料研究室の同僚にも、色々な局面で助けて貰ったし、励ましも頂いた。短い一時期であったが、思い出すと今も何か胸に去来するものがある。なお、編集者からは年

表を付けるようにとの要請があったが、正確な時期を示すにはあまりにも記憶が不確かだったので、文章だけで、年表は割愛させて頂いた。

5、参考文献

- 1), E. A. Nesbitt, L. H. Wernick and E. Corenguit, J. Appl. Phys., **30** (1959) 365
- 2), K. Nassau, L. V. Cherry and W. E. Wallace, J. Phys. Chem., **16** (1960) 131
- 3). K. H. J. Buschow and A. S. Van Der Good, Less-Comm. Met., **14** (1968) 323.
- 4). G. Hoffer and J. C. Strnat: IEEE Trans. Mag., **MAG-2** (1966) 482
- 5). R. Lemaire: Cobalt, **32** (1966) 132
- 6). 例えば、時期的には少し後になるがこの頃の記事として、「身近な科学の話題 154-はい科学部です-」(朝日ソノラマ、昭和 54 年 6 月刊) p. 253, 論文の例として、T. Shibata, T. Katayama, and T. Tsushima: J. Appl. Phys., **49** (1978) 2075
- 7). M. Sagawa, S. Fujiwara, N. Togawa, H. Yamamoto and Y. Matsuura, J. Appl. Phys., **55** (1984) 2083

注) ここで、希土類磁石の基礎的事項と関連する学問分野などについて簡単に述べる。

希土類金属 (R) とコバルト (Co) が 1 : 5 の比率で含まれる金属間化合物 (RCu_5) は、 $CaCu_5$ 型六方晶系の結晶で、R 原子が六角柱の 12 個の頂点と、上面と下面の面心に各 1 個が配置されており、この基本の六角柱構造の上面と下面の隙間に Co 原子が各 6 個、上面と下面の中間面に 12 個の Co 原子が入った結晶構造を持つ。これらの金属間化合物は、一部を除き、R が軽希土類の場合は R の磁気モーメントと Co の磁気モーメントが互いに平行になった強磁性、重希土類の場合は互いに反平行となったフェリ磁性体である。また、そのほとんどの金属間化合物の磁化容易方向は六角柱構造の縦軸方向 (C-軸) を向いている。この R が作る六角柱の結晶構造が大きな結晶磁気異方性 (正確には、結晶磁気異方性エネルギーというが、磁性体の磁化の源である磁気モーメントを磁化容易方向から磁化困難方向に回転させる時に要するエネルギーのことを指す) を生む基本になっている。中でも $SmCo_5$ が一番大きな結晶磁気異方性を有している。

磁気異方性には、上記のように結晶構造に由来するものと、結晶の形状に由来するものの 2 つがある。アルニコ磁石などは形状磁気異方性を利用した磁石で、 $SmCo_5$ 系希土類磁石の後に開発された強い希土類磁石のほとんどがこの結晶磁気異方性を利用している。大きな結晶磁気異方性を見つけるには、如何にして対称性の低い結晶構造をもつ磁性体を見つけるかが第一の基本である、結晶磁気異方性の起源には、スピン・軌道相互作用や R 元素の電子雲の形や結晶場などが関係しており、結晶学や磁気物理学などの基礎的な学問と強く結び付いている。

強い永久磁石を作るには、大きな結晶磁気異方性と高い飽和磁化、さらに高いキュリー温度を持つ磁性結晶を見つけることが基本である。その結晶体を均質な単磁区微粒子に加工し、酸化しないように、その磁化方向を揃えて高密度に固めれば原理的には強い永久磁

石になる。このように原理は単純だが、技術的には、大きな結晶磁気異方性を保ったまま均質な単磁区微粒子を如何に作るか、磁化方向を如何にして揃えるか（焼結磁石では主磁性結晶相に低融点の第2相を加える必要があり、それら両相の界面を如何に制御し綺麗な単磁区粒子を復活させ、整列させるか、などが重要である）、さらに、如何にして酸化を防ぐか、如何なる添加物を加え、如何なる熱処理をするか、等々、多くの課題がある。これらは金属学、冶金学、熱力学、化学、分析学、界面物理、表面処理、などの多くの学問分野と関連がある。また、結晶格子位置に因る磁気モーメント変化、結晶構造の安定化などの基礎的な課題も多い。

なお、これらの課題の多くは、第2世代の希土類磁石である $\text{Sm}_2(\text{Co}, \text{Fe}, \text{Cu})_{17}$ 系永久磁石[または、 $\text{Sm}(\text{Co}, \text{Fe}, \text{Cu})_7$ 系磁石とも言われる]や第3世代の希土類磁石である $\text{Nd-Fe-B}(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$ 系磁石でも、多少の相違はあるものの、基本的には同じである。 $\text{Sm}_2(\text{Co}, \text{Fe}, \text{Cu})_{17}$ 系磁石でも主結晶相の他に低融点の第2相が必要で、主相の結晶や界面の制御などが重要である。結晶構造や磁気特性の安定化などの為に Ti, Zn などが添加される。 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 系磁石では磁気特性の改善や結晶構造安定化のために $\text{Dy}, \text{Gd}, \text{Co}, \text{Ga}, \text{Mn}$ などが添加されることが多い。 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 系磁石の製造法には、通常の焼結磁石の他に、一旦非晶質物質を作りそれから熱処理を経て等方性の磁石にする方法やボンド磁石化する方法もあるし、HDDR（水素化—不均化—脱水素—再結合）プロセスを利用した製造法もある。その分だけ技術的な課題も増える。また、基礎的な面では、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 系の結晶には格子位置によって磁気モーメントが変化するなどの現象もあり、学術的な興味も持たれている。このように、永久磁石は鉄板などにペタンと付くだけで単純なようであるが、その背後には色々な物理が一杯潜んでいる。

著者略歴

氏名：片山利一（かたやま としかず）工学博士。

当時は、旧電子技術総合研究所磁性材料研究室所属。電総研在職中、連携大学院教授、オランダで在外研究、など。電子技術総合研究所を退職後、東邦大学薬学部教授。東邦大学退職後、産総研重点研究支援協力研究員、(財)新機能素子研究開発協会主幹研究員。日本磁気学会名誉会員。現在、無職。

受賞歴：

昭和 58 年 6 月	日本発明協会全国発明表彰朝日新聞発明賞
昭和 58 年 8 月	電子技術総合研究所所内表彰「研究業績賞」
昭和 63 年 10 月	日本応用磁気学会「論文賞」
平成 13 年 9 月	日本応用磁気学会「業績賞」
平成 17 年 9 月	日本応用磁気学会「論文賞」
平成 18 年 9 月	日本表面科学学会「会誌賞」

受理日：2016年3月30日