

称号及び氏名 博士（工学） 佐口 明彦

学位授与の日付 2015年3月31日

論文名 「レアアース節減に向けた R-Fe-B 系永久磁石の
効率的プロセス技術の開発」

論文審査委員 主査 東 健司

副査 森 茂生

副査 中平 敦

論文要旨

低炭素化社会の実現に向けて、次世代自動車(HEV、PHEV、HV等)の駆動モーターや車載モーター、また高機能・省エネ機器(携帯電子端末、パーソナルコンピュータ、エアコン、風力発電装置等)のキーデバイスとして、ネオジム磁石の需要増加が見込まれている。ネオジム磁石は、レアアースであるネオジム(以下、Nd)、プラセオジム(以下、Pr)、ジウム(以下、Dy) (Nd-25 wt. % Pr)およびディスプロシム(以下、Dy)等を構成元素としており、その国内での需要は2010年代初頭には10,000 tonに達し、今後、さらにその市場の拡大が見込まれている。一方、ネオジム磁石の主原料であるレアアースの90%以上は中国で産出されており、近年レアアースを戦略物質とする資源政策が強く推進されており、需給不安や価格変動が世界規模の課題となっている。このような状況下、ネオジム磁石の合金原料供給メーカーとして、国内での事業継続およびグリーンサステイナブル社会への貢献を継続するためには、企業収益を安定化させることが必要である。そのために、材料原価を低減し、環境変化に強い経営体質を構築する必要があり、その最も効果的な方法のひとつが、高価なレアアースの原価低減である。具体的な改善方法は、①安価リサイクル技術開発とその活用促進、②資源遍在性が強く、且つ最も高価であるDy使用量の抑制である。本研究の目標は、これらの2つの方法を組み合わせることによりレアアースの材料原価の低減を図り、想定されている最終年度の材料原価削

減を3 億円以上にするこゝである。

はじめに、①における課題について述べる。ネオジム磁石スクラップのリサイクル方法として、湿式精錬(溶媒抽出・分離・電解)と乾式精錬(溶解)が工業的に確立されているが、それぞれ量産上の課題を有している。湿式精錬は清浄なメタルが得られる利点を有するが、製造コストが高い。乾式精錬は、一般論として、雰囲気溶解炉によって安価なリサイクル合金を得ることを特徴とするが、磁石スクラップ中に含まれる炭素や酸素によるリサイクル合金の品位低下および操炉障害により、使用量および出来高量が低い。具体的には、磁石スクラップ中の炭素は、高融点希土類炭化物となってリサイクル合金に残留する。高融点希土類炭化物は、ネオジム磁石の粒界相であるNd-rich相(以下;粒界相)に偏析することで、保磁力を劣化させる。酸素は、溶解時に希土類酸化物を生成させ、歩留低下や坩堝損傷を引き起こす。すなわち、乾式精錬によるリサイクルを効率的に行うためには、炭素、酸素を予め取り除くリサイクル前処理技術が必要となる。

次に、②における課題について述べる。現在、高性能タイプのネオジム磁石では、強磁性相であるNd₂Fe₁₄B主相(以下、主相)のNdの一部をDyで置換、あるいは、Dyを適量拡散させて、結晶磁気異方性を高めることで保磁力を保っている。一方、ネオジム磁石は、(i) 隣接する主相の交換相互作用を粒界相で分断し、且つ、(ii) ネオジム磁石の焼結組織を微細化できれば、Dyを用いなくても、十分な保磁力が得られることが理論的に明らかとなっている。前者は、Al、Cu、Gaなどの元素を添加して、ネオジム合金の粒界相にNd系低融点共晶相を生成させて主相との濡れ性を改善させることが注目されている。後者では、合金磁粉のさらなる微細化が求められる。ネオジム磁石合金の粉碎は、常温、常圧で水素を吸収させ粗粉化させる水素化粉碎と気流粉碎による微粉碎の組み合わせによって行われているが、水素化粉碎については研究事例が少なく、また、微粉碎性との相互関係についても不明確である。

本研究では、乾式精錬によるネオジム磁石リサイクルの前処理技術の開発、および省Dy化に向けた代替元素添加型ネオジム合金の開発およびネオジム磁石製造技術の改善を目指した。前者は、酸化による脱炭とCa還元による脱酸を組み合わせた前処理技術の量産化を検討した。後者については、保磁力を向上させる添加元素であるGaに着目し、ストリップキャストによる合金鑄造方法の最適化を検討した。また、後者については、水素化粉碎条件(圧力、温度)の適正化による粉碎性改善を検討した。これらの結果について、その有効性とコスト効

果を検証した。

本論文は5章で構成されるもので、各章の概要は以下の通りである。

第1章では、ネオジム磁石の開発経緯およびエレクトロニクス産業への適用、環境貢献の背景を説明し、ネオジム磁石の将来的なニーズを述べた。そして、近年のレアメタルの需給、価格問題と業界動向、および事業継続における経営課題を明らかにし、本研究の位置付けを明確にした。

第2章では、乾式精錬リサイクルのための前処理技術となる磁石スクラップの脱炭および脱酸方法の検討を行った。磁石スクラップについては、不純物として酸素が5.6 wt. %前後、炭素が1.3 wt. %前後を含有する粉末スクラップ(加工スラッジ、焼結屑粉碎粉末)を用いた。脱炭については、熱力学的な考察から酸化脱炭を適用し、主相酸化を抑制しながら炭素のみを脱炭するための脱炭条件と脱炭メカニズムを明らかにした。脱酸については、チタン脱酸などで実績がある金属Caを用いたハライドフラックスCa還元法を適用し、最適な脱酸条件と再酸化を抑制するCa反応物の洗浄条件を検討した。

その結果、脱炭では減圧雰囲気による酸化により、炭素は0.03 wt. %まで低減され、市販原料と同等レベルとなった。脱酸はハライドフラックスとして無水CaCl₂を用い、また、脱酸反応後に923 Kで43 ksの合金化熱処理を付加した結果、酸素は0.1 wt.%まで低減された。さらに、280 Kの水溫で2段式の攪拌翼を用いたCa洗浄を施すことでCa還元された還元磁粉の再酸化を抑制できることを確認した。

これらのコスト効果として、磁石スクラップの平均成分をFe-27.4 wt. % (Nd+Pr)-3.0 wt. % Dy-1.0 wt. % B-M wt. % (M; 不純物)と仮定し、溶解歩留85 %で、処理量を1日当たり1 tonとした場合、湿式精錬と比較して1.5 億円の材料原価低減が見込まれた。

第3章では、省Dy化に向けて、Gaを微量添加したネオジム磁石合金の合金組織の微構造の調査とネオジム焼結磁石に関する文献との対照を行い、保磁力を向上させる合金組織および鑄造方法の検討を行った。Gaの融点は室温付近であるのでその非結晶相の結晶化温度は低いと考えられる。このような合金を用いたネオジム焼結磁石では、非結晶相が結晶相に先行して融解することで粒界相と主相の界面の濡れ性を向上させて保磁力を改善することができる。そこで、Fe-25.2 wt. % (Nd+Pr)-4.6 wt. % Dy-0.9 wt. % B-0.8 wt. % Co-0.2 wt. % Al-0.1 wt. % Cu-0.1 wt. % Ga合金を用い、その鑄造条件を変化させて凝固速度の異なる2種類のGa

添加ネオジウム磁石合金を作製した。

合金組織の主相粒径と元素分配および相構成を調査した結果、2種類の合金の主相粒径は3 μm と5 μm であり、後者の凝固速度は遅いことが判った。後者の粒界相は、2相（結晶相と非結晶相）で構成され、特に非結晶相においてGaはAlおよびCuと共存しており、Fe-Nd-B-Cu-Ga系と推定された。この結果から、凝固速度を遅くすることで、粒界相にGaを含む非結晶相の生成を促進できることを明らかにした。

Ga添加によるDy削減効果としては、同等の保磁力を有するネオジウム磁石で比較した場合、2.5 %減少が見込まれた。従って、Dy削減量は2.4 tonとなり、2.2 億円の原価低減が可能となり、Ga添加費用を差し引いた実質コストは、2.1 億円と算出された。本研究成果の製品適用率を最低50%と仮定すれば、1.1 億円の材料原価低減が見込まれることを明らかにした。

第4章では、第3章と同じく、省Dy化に向けて、ネオジウム磁石製造における磁粉微細化による保磁力向上を目的に、水素化粉碎条件の適正化を行った。従来の知見より磁粉粒径1 μm の減少は0.25 wt. %のDy削減に相当することがわかっている。そこで、Dy削減の数値目標を0.025 wt. %とし、磁粉粒径を従来粒径より0.1 μm 以上微細化できる水素化粉碎条件の適正化を検討した。まず、ネオジウム磁石合金として、Nd含有量および凝固速度を変化させた4種類の合金を铸造した。これらの合金組織を詳細に観察した結果、合金組織は合金のNd含有量と凝固速度が増大するほど微細化し、微粉碎性を向上させることがわかった。また、同一の合金組織で比較した場合、水素圧力および雰囲気温度の低下に伴い、合金中に導入される微細クラックが増加し、温度303 K、水素圧151 kPaにおいて磁粉粒径3.1 μm が得られた。この粒径は、従来の値と比して、0.1 μm の微細化に相当する。即ち、想定されている最終年度の販売製品のDy含有量は平均で3 wt. %であるため、約0.5 tonのDyが削減できると算出された。以上の結果より、0.5 億円の材料原価低減が見込まれることを明らかにした。

第5章では、本研究で得られた主要な成果と今後の展開についてまとめた。コスト削減として、乾式精錬リサイクルの前処理技術と省Dy技術を確立した。そのコスト効果は、第2章では、原料コスト削減額として1.5 億円、第3章では、1.1 億円、第4章では、0.5 億円となり、合計で3.1 億円となった。これは、想定されている最終年度の材料原価削減の3 億円の相当し、目標達成の目途が得られた。

本研究は、ネオジウム磁石用合金の製造コスト改善に寄与すると共に、社会貢献としてグリー

ンサステイナブル社会の構築へ繋がる成果として期待される。

審査結果の要旨

低炭素化社会の実現に向けて、ネオジム磁石の需要増加が見込まれているが、その主原料であるレアアースの主産国である中国では、近年レアアースを戦略物質とする資源政策が強く推進されており、需給不安や価格変動が世界規模の課題となっている。国内での事業継続およびグリーンサステイナブル社会への貢献を継続する最も効果的な方法のひとつが、高価なレアアースの原価低減である。具体的には、①安価リサイクル技術開発とその活用促進、②資源遍在性が強く、且つ最も高価である Dy 使用量の抑制である。本研究の目標は、これらの2つの方法を組み合わせることによりレアアースの材料原価の低減を図り、想定されている最終年度の材料原価削減を3億円以上にするこゝである。研究結果として、以下に述べるような成果を得ている。

- ① 乾式精錬リサイクルのための前処理技術となる磁石スクラップの脱炭および脱酸方法の最適化プロセスを検討した結果、炭素は0.03 wt. %まで、酸素は0.1 wt. %まで低減できた。さらに、280 Kの水溫で2段式の攪拌翼を用いたCa洗淨を施すことでCa還元磁粉の再酸化を抑制できることを確認した。これらの効果として、磁石スクラップの平均成分をFe-27.4 wt. % (Nd+Pr)-3.0 wt. % Dy-1.0 wt. % B-M wt. % (M; 不純物)と仮定し、溶解歩留85%で、処理量を1日当り1 tonとした場合、従来の湿式精錬と比較して1.5億円の材料原価低減が見込まれることを明らかにした。
- ② Gaを微量添加したネオジム磁石合金、Fe-25.2 wt. % (Nd+Pr)-4.6 wt. % Dy-0.9 wt. % B-0.8 wt. % Co-0.2 wt. % Al-0.1 wt. % Cu-0.1 wt. % Gaを対象に、保磁力を向上させる合金組織および鑄造方法を検討した結果、凝固速度を遅くすることで、粒界相にGaを含む非結晶相の生成を促進できることを明らかにした。Ga添加によるDy削減効果としては、同等の保磁力を有するネオジム磁石で比較した場合、2.5%減少が見込まれ、製品適用率を最低50%と仮定すれば、1.1億円の材料原価低減が見込まれることを明らかにした。
- ③ 省Dy化に向けて、ネオジム磁石製造における磁粉微細化による保磁力向上を目的に、水素化粉碎条件の適正化を検討した結果、温度303 K、水素圧151 kPaにおいて磁粉粒径3.1 μm が得られた。この粒径は、従来の値と比して、0.1 μm の微細化に相当しており、0.5億円の材料原価低減が見込まれることを明らかにした。
- ④ 本研究で得られた成果は、想定されている最終年度の材料原価削減の目標値に相当し、目標達成の目途が得られている。

本研究成果は、学術的のみならず工業的にも大いに期待できる有益な知見を含んでおり、材料開発および製造技術の一層の高度化に貢献するところ大である。さらに、申請

者が自立して研究を行うに十分な能力と学識を有することを証したものである。学位論文審査委員会は、本論文の審査ならびに最終試験の結果から、博士（工学）の学位を授与することを適当と認める。