



|              |                                                                                                                                                 |
|--------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Title        | Studies on High Performing and Effective Utilization of Related Rare Earths for Nd-Fe-B Permanent Magnets                                       |
| Author(s)    | 李, 徳善                                                                                                                                           |
| Citation     | 大阪大学, 2009, 博士論文                                                                                                                                |
| Version Type |                                                                                                                                                 |
| URL          | <a href="https://hdl.handle.net/11094/49545">https://hdl.handle.net/11094/49545</a>                                                             |
| rights       |                                                                                                                                                 |
| Note         | 著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、<a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">大阪大学の博士論文について</a>をご参照ください。 |

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

|               |                                                                                                                                                  |
|---------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 氏 名           | 李 徳 善                                                                                                                                            |
| 博士の専攻分野の名称    | 博 士 (工 学)                                                                                                                                        |
| 学 位 記 番 号     | 第 2 2 9 1 8 号                                                                                                                                    |
| 学 位 授 与 年 月 日 | 平成 21 年 3 月 24 日                                                                                                                                 |
| 学 位 授 与 の 要 件 | 学位規則第 4 条第 1 項該当<br>工学研究科応用化学専攻                                                                                                                  |
| 学 位 論 文 名     | Studies on High Performing and Effective Utilization of Related Rare Earths for Nd-Fe-B Permanent Magnets<br>(ネオジム系永久磁石の高性能化と関連する希土類の有効利用に関する研究) |
| 論 文 審 査 委 員   | (主査)<br>教 授 町田 憲一<br>(副査)<br>教 授 林 高史 教 授 桑畑 進 教 授 井上 豪<br>教 授 大島 巧 教 授 今中 信人 教 授 宇山 浩<br>教 授 平尾 俊一 教 授 安藤 陽一 教 授 田川 精一<br>教 授 掛下 知行             |

## 論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、先端の産業分野を担う機能性材料として益々需要が増大しているNd-Fe-B系磁石の高性能化とこれに関連する希土類資源、特にDyやTb等の希少元素の有効利用に関する研究を行なったものであり、Nd-Fe-B系統磁石研磨屑のGHz領域での電波吸収材料としての再生と粒界改質によるNd-Fe-B系磁石の高性能化に関して有用な研究成果を見出している。本論文は、緒言、本論四章、および総括から構成されている。

緒言では、本研究全体の背景、目的および意義について述べると共に、具体的に実施した各研究課題と目的についても併せて列挙した。

第一章では、Nd-Fe-B系磁石の研磨屑を酸化不均化または不均化による処理ののち、ボールミル粉碎によりカーボン粉末に均一に分散することで、 $\alpha$ -Fe/Fe<sub>2</sub>B/Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>および $\alpha$ -Fe/Fe<sub>2</sub>B/Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ a-Cナノ複合体粉末を作製し、その電磁波吸収特性を評価した。その結果、これらナノ複合体では、渦電流の発生が効果的に抑制されるために良好な電磁波吸収特性が発現し、磁性材料として十分再利用可能であることが明らかになった。

第二章では、パルク状Nd-Fe-B系統結磁石の表面に、スパッタリング装置を用いてDyやTb金属を均一に被覆すると共に、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B磁石主相と粒界相 (Ndリッチ相と呼ばれる) との拡散速度の違いを利用して、これらの希土類元素を選択的に粒界相に沿って磁石内部に拡散させることで、磁石を構成するNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B相粒子とNdリッチ相との界面に偏在富化させ、その磁気特性を系統的に評価した。その結果、粒界改質した磁石ではNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B相粒子の界面異方性磁界が大幅に増大し、Nd-Fe-B系統結磁石の本来の磁化を低下させることなく保磁力を効果的に向上させることに成功した。

第三章では、還元拡散プロセスを援用した粒界改質法を新たに開発し、金属より安価な希土類化合物を用いて、より効率的に希土類金属を生成してNd-Fe-B系統結磁石の高保磁力化を図る技術を確認した。また、本法と従来の合金にDyやTb重希土類を直接添加する方法との対比から、より少量の重希土類の使用でも、磁化の低下を抑え

つつ効果的に保磁力を増大させることで、高磁化高耐熱性磁石を量産規模で作製できることを明らかにした。

第四章では、Nd-Fe-B系薄膜と希土類金属膜とを交互に積層した[NdFeBx/Lny]n(Ln=Nd, Tb)積層膜磁石を作製し、焼結磁石においてNdリッチ相が生成する温度 (1073 K) 以上で加熱することで十分な保磁力を発現させることで、実用に即した高性能薄膜磁石の開発に成功した。また、粒界組織の観察から層間に導入された希土類金属は加熱により隣接するNd-Fe-B系薄膜層内に拡散し、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B相粒子の周りにNdリッチ相を形成することで膜内に夾雑する $\alpha$ -Feソフト相をも内部に取り込み、Nd-Fe-B系薄膜の保磁力が著しく増大したとの結論を得た。

総括では、以上の研究結果を概括すると共に、Nd-Fe-B系磁石部に関連する希土類資源の有効利用、更には、高い異方性磁界を有するDyまたはTb金属を選択的にNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B相粒子界面に拡散導入して、保磁力化を高める永久磁石の設計および作製手法について、学術的意義と応用の観点から総合的に評価、検討した。

## 論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

本論文は Nd-Fe-B 系磁石の高性能化と関連する希土類資源、特に Dy や Tb 等の希少元素の有効利用に関する研究を行ったものである。主な成果は以下の通りである。

- (1) Nd-Fe-B 系磁石の研磨屑を酸化不均化または不均化による処理ののち、ボールミル粉碎によりカーボン粉末に均一に分散することで、 $\alpha$ -Fe/Fe<sub>2</sub>B/Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> および  $\alpha$ -Fe/Fe<sub>2</sub>B/Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ a-C ナノ複合体粉末を作製し、その電磁波吸収特性を評価した。その結果、ナノ複合体は GHz の領域の電磁波を効率よく吸収することを見出した。これは、作製したナノ複合体が鉄金属組織の微細化と渦電流の発生が効果的に抑制されるためと結論された。
- (2) パルク状 Nd-Fe-B 系統結磁石の表面に、スパッタリング装置を用いて Dy や Tb 金属を均一に被覆すると共に、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 磁石主相と粒界相との拡散速度の違いを利用して、希土類元素を選択的に粒界相に沿って磁石内部に拡散させることで、磁石を構成する Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 相粒子と Nd リッチ相との界面に偏在富化させ、その磁気特性を系統的に評価した。その結果、粒界改質した磁石では磁化と最大エネルギー積を低下させずに保磁力を効果的に向上させることを明らかにし、これは改質することで Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 相粒子の界面異方性磁界の大幅な増大が起因するとの結論を得た。
- (3) 上記のスパッタリング法による希土類金属を被覆に代えて、還元拡散プロセスを援用した粒界改質法を新たに開発し、金属より安価な希土類化合物を用いて、より効率的に希土類金属を生成して Nd-Fe-B 系統結磁石の高保磁力化を図る技術を確認した。また、本法と従来の合金に Dy や Tb 重希土類を直接添加する方法との対比から、より少量の重希土類の使用でも、磁化の低下を抑えつつ効果的に保磁力を増大させることで、高磁化高耐熱性磁石を量産規模で作製できることを明らかにした。
- (4) Nd-Fe-B 系薄膜と希土類金属膜とを交互に積層した[NdFeBx/Lny]n(Ln=Nd, Tb)積層膜磁石を作製し、焼結磁石において Nd リッチ相が生成する温度以上で加熱することで十分な保磁力を発現させることで、実用に即した高性能薄膜磁石の開発に成功した。また、粒界組織の観察から層間に導入された希土類金属は加熱により隣接する Nd-Fe-B 系薄膜層内に拡散し、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B 相粒子の周りに Nd リッチ相を形成することで膜内に夾雑する  $\alpha$ -Fe ソフト相をも内部に取り込み、Nd-Fe-B 系薄膜の保磁力が著しく増大したとの結論を得た。

以上のように、本論文はNd-Fe-B系磁石の高性能化と関連する希土類資源の有効利用を検討したものであり、Nd-Fe-B系磁石の研磨屑の電波吸収材料としての再利用の可能性や、粒界改質型パルクおよび薄膜磁石において Dy 金属等を主相と Nd リッチ相との界面に偏在富化させることで優れた磁気特性を示すことを見出している等、磁性材料の分野における基礎・応用の両面から重要な知見を与えている。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。