



Title	Nd-Fe-B系磁石合金のHDDRプロセスによる高保磁力発現機構の陽電子消滅法を用いた研究
Author(s)	西内, 武司
Citation	大阪大学, 2010, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/57498
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、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

【100】				
氏 名	にし	うち	たけ	し
	西	内	武	司
博士の専攻分野の名称	博 士（工 学）			
学 位 記 番 号	第 2 3 8 1 8 号			
学 位 授 与 年 月 日	平 成 22 年 3 月 23 日			
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科マテリアル生産科学専攻			
学 位 論 文 名	Nd-Fe-B系磁石合金のHDDRプロセスによる高保磁力発現機構の陽電子消滅法を用いた研究			
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 荒木 秀樹 (副査) 教 授 掛下 知行 教 授 中谷 亮一 准教授 井藤 幹夫 教 授 白井 泰治（京都大学大学院工学研究科）			

論 文 内 容 の 要 旨

本研究は、Nd-Fe-B系磁石合金の水素化-不均化-脱水素-再結合（HDDR）プロセスにおける高保磁力発現機構を理解するため、本プロセスにおける組織形成過程が保磁力に及ぼす影響について系統的な検討を行うとともに、保磁力に影響を与えるNd₂Fe₁₄B相界面近傍組織の研究における陽電子消滅法の有効性を検討したものである。本研究の概要は以下に示すとおりである。

第1章では、本研究の背景ならびに目的と意義を述べた。

第2章では、HDDRプロセスの概略とこれまでの研究状況について概要を述べた。

第3章では、Nd-Fe-B系磁石合金のHDDRプロセスにおける脱水素-再結合（DR）処理に伴う組織形成過程と保磁力の関係について詳細に調査し、特定のDR処理時間から短時間の間に高い保磁力（H_{cj}）が発現すること、ならびにH_{cj}の変化と水素減少速度など組織変化に起因する解析結果がよく対応することを示し、再結合Nd₂Fe₁₄B相の形成後に、Nd₂Fe₁₄B相の界面にNdリッチ相が形成されて高保磁力が発現することを明らかにした。

第4章では、水素化-不均化（HD）処理時間やGaの微量添加がDR処理に伴う組織変化と保磁力に及ぼす影響について調査し、HD処理時間やGaの添加によってDR処理前の組織が大きく変わり、これがHDDR処理後の結晶粒径など保磁力を支配する要因となる組織に影響を与えている可能性があることを明らかにした。

第5章では、DR処理時間を変えて作製した一連のサンプルに対して、陽電子寿命測定の実用を検討し、陽電子寿命の変化が保磁力の変化と非常によく対応を示すとともに、陽電子が保磁力発現に寄与するNdリッチ相の生成を極めて敏感に検出できることを明らかにした。さらに陽電子寿命スペクトルの二成分解析により、主相（Nd₂Fe₁₄B相）およびNdリッチ相における陽電子寿命値を求めた。これらの結果から、陽電子消滅法がNd-Fe-B系磁石の保磁力発現機構解明に有効な、主相界面の計測手段となり得ることを明らかにした。

第6章では、DR処理時間を変えて作製した一連のサンプルに対して、同時計数ドブラー幅拡がり測定（CDB測定）の実用を検討し、陽電子寿命測定と同様、CDBスペクトルがDR処理に伴って大きく変化することを確認した。また、Nd-Fe-B系磁石のNdリッチ相組成を評価する手法として、陽電子寿命測定とCDB測定の実験データを組み合わせた解析手法を提案し、その有効性を示した。

第7章では、HD処理に伴う組織形成過程を調査し、方位メモリに重要な役割を果たしていると考えられるB（ほう素）の挙動がHD処理に伴うNdH_x相の組織形態変化に影響を与えている可能性を示すとともに、Gaの微量添加に

よりこの組織変化が促進されること、陽電子寿命の変化がこれらの組織変化を反映していることを明らかにした。
第8章では、第1章から第7章までの結果を総括した。

論文審査の結果の要旨

Nd-Fe-B 系磁石は、その高い磁気特性により、ハイブリッド自動車（HEV）や電気自動車（EV）の駆動モータへの適用が進んでいる。これら自動車用途の磁石では、耐熱性が要求されることから高保磁力の磁石が使用され、現在は Nd の一部を Dy や Tb などの重希土類元素で置換する方法が採用されている。しかし、Dy や Tb の使用は残留磁束密度の低下を招くことに加え、これらの元素が希少かつ特定地域に偏在していることから資源調達リスクが顕在化しつつある。このような背景から、重希土類元素に依存しない高耐熱磁石の開発と、その指針獲得を目的とした Nd-Fe-B 系磁石の保磁力発現機構の解明が求められている。

高保磁力化の手段として、300nm 程度の微細結晶粒を有する異方性磁石が得られる、水素化-不均化-脱水素-再結合 (HDDR) プロセスに着目した。現在のところ、本プロセスで得られる Nd-Fe-B 系磁石は、結晶粒径から期待される保磁力が得られていないが、組織を適性化することで、重希土類に依存しない高保磁力 Nd-Fe-B 系磁石が作製できることが期待される。しかし、HDDR プロセスに伴う組織変化と保磁力の関係についての系統的な研究報告はほとんどなく、高保磁力を得るための組織制御の指針が明確化されていない。そこで、本論文は、Nd-Fe-B 系磁石合金の HDDR プロセスにおける組織形成過程が保磁力に及ぼす影響について、系統的な検討を行なった。本論文で得られた成果の要約は以下の通りである。

(1) 水素化-不均化 (HD) 処理を 840℃×240 分行なった合金における脱水素-再結合 (DR) 処理に伴う組織形成過程と保磁力の関係を詳細に調査した。その結果、特定範囲の DR 処理時間内で短時間に保磁力 H_{cj} が発現すること、 H_{cj} の変化と水素減少速度などがよく対応することを示した。これら一連のサンプル評価結果から、保磁力の発現は再結合 Nd₂Fe₁₄B 相の形成後に、残留した NdH₂ が脱水素して、Nd₂Fe₁₄B 相の界面に Nd リッチ相が形成されることによるものであることを明らかにした。また、長時間の DR 処理では異常粒成長により H_{cj} が低下することを示した。

(2) HD 処理時間や Ga の微量添加が DR 処理に伴う組織変化に及ぼす影響について調査した。その結果、HD 処理時間の違いによって保磁力の DR 処理時間依存性が大きく変わること、HD 処理後の微細な繊維状の NdH₂ 相の存在が結晶粒粗大化を招いて高保磁力化を阻害する可能性があること、Ga の微量添加によりこの繊維状 NdH₂ 相を含む領域が低減することを明らかにした。

(3) HDDR プロセスの DR 処理時間を変えて作製した一連のサンプルに対して、陽電子寿命測定の実用を検討した。その結果、陽電子寿命の変化が保磁力の変化と非常によく対応を示すことを明らかにするとともに、高保磁力が得られているサンプルにおいて陽電子の一部が Nd リッチ相で消滅すること、ならびに陽電子が保磁力発現に寄与する Nd リッチ相の生成を極めて敏感に検出できることを明らかにした。また、長時間処理における陽電子寿命の低下が、異常粒成長によって、界面に到達できずに主相内部で消滅する陽電子の割合が増加することによるものであることを示した。さらに二成分解析により、主相および Nd リッチ相での陽電子寿命がそれぞれ 155～160ps、200～240ps であることを示すとともに、保磁力が発現する直前の再結合 Nd₂Fe₁₄B 相の界面における陽電子寿命が主相内部のそれとほぼ同じであることを見出した。これらの結果から、陽電子消滅法が Nd-Fe-B 系磁石の保磁力発現機構解明に有効な、主相界面の計測手段となり得ることを明らかにした。

(4) HDDR プロセスの DR 処理時間を変えて作製した一連のサンプルに対して、同時計数ドップラー幅広がり測定 (CDB 測定) の適用を検討した。その結果、陽電子寿命測定と同様、CDB スペクトルが DR 処理に伴って大きく変化することを確認した。また、Nd-Fe-B 系磁石の界面近傍の Nd リッチ相を評価する手法として、陽電子寿命測定と CDB 測定のデータを組み合わせた解析手法を提案し、その有用性について本研究で得られたデータをもとに考察した結果、本解析手法により Nd-Fe-B 系磁石の保磁力に影響を与える Nd リッチ相組成に関する情報を顕在化できる可能性があることを示した。

(5) HDDR プロセスの HD 処理に伴う組織形成過程において、方位メモリに重要な役割を果たしていると考えられる B (ほう素) の挙動や、保磁力向上に有効な Ga の微量添加が組織形成過程に及ぼす影響について調査した。その結果、B の挙動が NdH₂ 相の繊維状から粒状への組織形態の変化に影響を与えている可能性を示すとともに、Ga の微量添加によりこの形態の変化が促進されていること、ならびに、陽電子寿命の変化がこれらの組織変化を反映していることを明らかにした。

以上のように、本論文では、Nd-Fe-B 系磁石合金の HDDR プロセスにおいて形成される組織と保磁力の関係、および、焼結磁石も含めた Nd-Fe-B 系磁石の保磁力発現機構解明に重要な Nd リッチ相の解析に陽電子消滅法が有効であることを明らかにしている。これらの知見は、重希土類レス高保磁力磁石の材料設計指針を与えており、工業的にも学術的にも極めて重要であり、材料工学の発展に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。