

「部素材の代替・使用量削減に資する技術開発・実証事業」
プロジェクト

事業原簿【公開】

担当部	国立研究開発法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構 材料・ナノテクノロジー部
-----	---

—目次—

概 要	3
プロジェクト用語集	10
I. 事業の位置付け・必要性について	I -1
1-1 事業の背景	I -1
1-2 政策上の位置づけ	I -2
1-3 国内外の状況	I -3
1-4 他の事業との関係	I -3
1-5 NEDO が関与することの意義	I -3
1-6 実施の効果（費用対効果）	I -4
II. 研究開発マネジメントについて	II -1
2.1 事業の目標	II -1
2.2 事業の内容	II -1
2.3 事業の計画	II -5
2.4 事業の実施体制とプロジェクト費用	II -5
2.5 研究開発の運営管理	II -6
2.6 研究開発成果の実用化に向けたマネジメント	II -8
2.7 情勢変化への対応	II -9
2.8 中間評価への対応	II -9
2.9 評価に対する事項	II -9
III. 研究開発成果について	III -1
3.1 事業全体の成果物一覧	III -1
3.2 研究開発項目毎の成果（テーマ別）	III -2
IV. 成果の実用化に向けた取組及び見通しについて	IV -1
4.1 研究開発項目別実用化の見通し	IV -1
V. 研究開発項目ごとの事業者報告詳細（テーマ別）	V -1
【1】研究開発項目①-1（テーマ A3）	V -1
【2】研究開発項目①-1（テーマ B1）	V -21
【3】研究開発項目①-2（テーマ A2）	V -74

【4】研究開発項目①-2（テーマ A1）	V-96
【5】研究開発項目②-1（テーマ C1）	V-103
【6】研究開発項目②-2（テーマ C2）	V-103

概要

		最終更新日	2022年10月19日	
プロジェクト名	部素材の代替・使用量削減に資する技術開発・実証事業	プロジェクト番号	P20019	
担当推進部/ PMまたは担当者	材料・ナノテクノロジー部 依田 智 (統括主研) 材料・ナノテクノロジー部 平塚 淳典 (主研) (2020年9月17日～2022年3月31日) 材料・ナノテクノロジー部 原 謙治 (PM) (2020年9月17日～2022年3月31日) 材料・ナノテクノロジー部 大類 和哉 (2020年9月17日～2022年3月31日) 材料・ナノテクノロジー部 吉村 公彦 (2022年1月1日～2022年3月31日)			
0. 事業の概要	<p>【本事業の狙い】</p> <p>本プロジェクトでは、サプライチェーンの強靱化の観点から、レアアースの使用を極力減らす、又は使用しない技術の開発等を行うことを目的としている。</p> <p>小型・高効率モーターには磁性材料としてネオジム磁石が利用されているが、磁石内の渦電流による自己発熱で高温となることから、磁石の性能を維持するため、重希土類元素であるジスプロシウムを添加する必要がある。しかし、ジスプロシウムは地球上に偏在し、かつ資源量が非常に少なく、供給途絶リスクが高いことから、ジスプロシウムの使用を極力減らす、又は使用しない技術が必要としている。</p> <p>また、自動車の電動化の加速などの社会状況の変化を受けて、ネオジムの大量使用時代を見据え、重希土類を使用せず、供給途絶懸念のあるレアアースの使用を極力減らす、又は使用しない高性能新磁石材料を探索するため、機械学習を用いた新しい磁石開発手法を開発するとともに、一度に多数のデータを取得できるハイスループットな材料作製手法を開発し、機械学習との組み合わせによる探索を行う。</p> <p>さらに、複数地域から供給可能であるが、含有量や、不純物が多く、現状ではそのままでの利用が難しいレアアース（低品位レアアース）を利用するため、不純物を高効率で除去し、高品位化するための新しい改質技術を確立するとともに、低品位レアアースの高付加価値化等を目指した機能性材料開発実証を行う。</p> <p>【目標】</p> <p>レアアース等の部素材の使用を極力減らす、又は使用しない技術の開発によって、予期せぬ危機に際して重要物資の供給途絶リスクを削減し、サプライチェーンの強靱化に繋げる技術を確立する。</p>			
1. 事業の位置 付け・必要性について	<p>新型コロナウイルス感染症の世界的な流行によって、人々の健康・経済活動に重要な物資のサプライチェーンの寸断リスクが顕在化した。この経験を踏まえ、予期せぬ危機に際して部素材の供給途絶リスクを解消するためにはサプライチェーンの強靱化に資する技術開発等が必要である。部素材の中でも、レアアースは供給源が限られているが、高性能磁石やモーター等の中核素材であり、家庭や産業用機器・機械向けなど様々な分野で使用されている上、自動車の電動化（HEV、EV、FCV）に伴い、モーター需要の拡大が予想されていることなどから、部素材の中でも特にサプライチェーンの強靱化が必要な分野である。</p> <p>サプライチェーン強靱化の観点から、重希土類を使用しない高性能磁石の開発や供給途絶懸念のあるレアアースの使用を極力減らす、又は使用しない高性能新磁石材料の探索等は最重要課題の一つである。</p> <p>また、軽希土類については、複数地域から供給可能であるが高品位のものは供給源が限定されている。そのため、低品位レアアースの高品位化に資する改質技術や低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術も、サプライチェーン強靱化における最重要課題である。</p> <p>本事業は、我が国産業にとって最重要課題の一つである将来の自動車用モーターに必要な部材を省エネ化に貢献する技術を開発するものであり、我が国のエネルギー・資源問題解決および産業競争力強化に貢献する、NEDO(新エネルギー・産業技術総合開発機構)が取り組むべきプロジェクトとして妥当である。</p>			

2. 研究開発マネジメントについて

事業の目標	<p>レアース等の部素材の使用を極力減らす、又は使用しない技術の開発によって、予期せぬ危機に際して重要物資の供給途絶リスクを削減し、サプライチェーンの強靱化に繋げる技術を確認する。</p> <p>【研究開発項目①】 重希土類を使用しない高性能磁石等の開発 資源的にリスクの高い重希土類（ジプロシウム、テルビウム等）を使用しない、小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証および、レアース量低減、レアースフリーを目指した新しい磁石開発手法の開発を行う。</p> <p>【研究開発項目②】 低品位レアースを利用した機能性材料の開発 含有量や、不純物が多く、現状ではそのままの利用が難しいレアース（低品位レアース）を利用した多用途、代替化、高付加価値化等を目指した機能性材料開発を行う。</p>
-------	---

事業の計画内容	主な実施事項	2020 上半期	2020 下半期	2021 上半期	2021 下半期
	【研究開発項目①-1】 重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発			重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証	
【研究開発項目①-2】 重希土類を使用せず、供給途絶懸念のあるレアースの使用を極力減らす又は使用しない高性能新磁石材料を探索するための新しい磁石開発手法の開発			機械学習を用いた磁石材料探索を効率的に進める手法を開発 ハイスループットな材料作製手法を開発 高鉄濃度希土類化合物微結晶創製技術の開発 高鉄濃度希土類化合物急冷薄帯の組織解析		
【研究開発項目②-1】 低品位レアースの高品位化に資する改質技術の開発			低品位のために使用されていないセリウム化合物から不純物を高効率で除去、利用可能なレベルに高品位化するための、新たな溶媒抽出等技術の開発		
【研究開発項目②-2】 低品位レアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証			酸化セリウムを含有する低品位希土類化合物由来の原料等を用い、構成成分の見直しやナノレベルの適材配置等の調製技術開発		

事業費推移 (単位:百万円)	会計・勘定		2020 年度	2021 年度	総額
	一般会計		340	838	1,178
	特別会計 (電源・需給の別)		—	—	—
	開発成果促進財源		—	—	—
	総 NEDO 負担額		340	838	1,178

実施体制	経産省担当原課	製造産業局 金属課		
	プロジェクトリーダー	プロジェクトリーダー設置無し（テーマごとの開発責任者：体制表参照）		
	プロジェクト マネージャー	NEDO 材料・ナノテクノロジー部 原 謙治		
	委託先	国立研究開発法人 産業技術総合研究所 愛知製鋼株式会社 国立研究開発法人 物質・材料研究機構 国立大学法人東北大学 （共同実施者：公益財団法人豊田理化学研究所） 株式会社東芝 株式会社 I H I 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 ニッキ株式会社		
情勢変化対応	特に無し			
契約期間	2020年9月17日より2022年2月28日（IHI社：2022年3月31日）			
中間評価結果への対応	5年未満のプロジェクトのため中間評価無し			
評価に関する事項	事前評価	2020年度 実施		
	中間評価	5年未満のプロジェクトのため中間評価無し		
	事後評価	2022年度 事後評価実施		
3. 研究開発成果について	研究開発項目① 重希土類を使用しない高性能磁石等の開発 資源的にリスクの高い重希土類（ジスプロシウム、テルビウム等）を使用しない、小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証および、レアアース量低減、レアアースフリーを目指した新しい磁石開発手法の開発。 <u>研究開発項目①-1</u> <u>重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証</u> 【愛知製鋼株式会社】（テーマA3） 【株式会社IHI】（テーマB1） 資源的にリスクの高い重希土類（ジスプロシウム、テルビウム等）を使用しない高性能磁石ならびに、形状自由度が高く組付け性の良い成形方法を開発する。成形した磁石は、高保磁力 Hc 高残留磁束密度 Br を示し、渦電流損の抑制が可能な高電気抵抗を目指す。 更に、開発した磁石を組み込み、車軸に実走行回転の取出しが可能な、小型軽量の車軸駆動用超高速回転モーターシステムを設計・試作し、稼働試験による実証を行うとともに、実用化にむけた課題を抽出する。なお、実証に必要な周辺技術は併せて開発を行う。			
	【愛知製鋼株式会社】（テーマA3）			
	研究開発項目（内容）	研究開発目標	成果	達成度
	[1]重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発	<ul style="list-style-type: none"> ・Br(残留磁束密度) : 8.5kG 以上 ・保磁力 : 18kOe 以上 ・体積(電気)抵抗率 (pv) : 10mΩ 	Br : 8.6kG 保磁力 : 15.6kOe pv : 10mΩcm	○ (保磁力を除いて、概ね達成と評価)
[2]超高速回転モーター駆動システムによる実証	<ul style="list-style-type: none"> ・モーター回転数 : 30,000rpm 以上 ・最大出力 : 50 kW 以上 駆動実証 	最高出力 50 kW 最高回転数 : 34,000rpm 最大効率 93%、最大トルク 1850Nm (減速比 21.8) を達成	○ (超高速回転モーター駆動システムの設計・試作、駆動実証に成功)	

【株式会社 IHI】(テーマB1)

研究開発項目(内容)	研究開発目標	成果	達成度
[1]重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発	<ul style="list-style-type: none"> ・Br(残留磁束密度): 8.5kG 以上 ・保磁力: 18kOe 以上 ・体積(電気)抵抗率(pv): 10mΩ 	Br: 5.8kG 保磁力: 12.1kOe pv: ≒1/58	△ (目標となる積層体の作製方法および特性取得は完了。)
[2]超高速回転モーター駆動システムによる実証	<ul style="list-style-type: none"> ○モーター回転数: 30,000rpm 以上 ○最大出力: 50 kW 以上 駆動実証	最高回転数: 91,000rpmのストレッチ 目標まで達成。回転試験を行い、熱静定まで確認できた。	○

研究開発項目 ①- 2

重希土類を使用せず、供給途絶懸念のあるレアアースの使用を極力減らす、又は使用しない高性能新磁石材料を探索するための新しい磁石開発手法の開発

研究開発項目 ①- 2 - 1

「データ駆動による高鉄濃度準安定系磁石材料の開発」

【国立研究開発法人産業技術総合研究所、国立研究開発法人物質・材料研究機構】(テーマA2)

研究開発項目 ①- 2 - 2

「高鉄濃度希土類磁石化合物における相平衡とプロセス技術開発」

【国立大学法人東北大学、株式会社東芝、公益財団法人豊田理化学研究所】(テーマA1)

研究開発項目	目標	成果	達成度
研究開発項目①- 2 - 1 機械学習を利用したデータ駆動型材料開発	脱重希土類磁石材料開発をモデルケースとしたデータ駆動型の材料開発プラットフォームの要素技術の開発	高鉄濃度 Sm-Fe 系磁石材料をモデル材料として、データ駆動型材料開発の要素技術を開発した。	○
研究開発項目①- 2 - 2 一度に多数のデータを取得できるハイスループットな材料作製手法開発	多組成の粉末を1プロセスで合成できるハイスループット装置の開発	熱プラズマ法による多組成粉末の1プロセス合成に成功した。	○

研究開発項目② 低品位レアアースを利用した機能性材料の開発

研究開発項目②- 1

低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発

【国立研究開発法人産業技術総合研究所、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、ニッキ株式会社】(テーマC1)

低品位のために使用されていないセリウム化合物から不純物を高効率で除去するため、新たな溶媒抽出等技術の開発を行う。環境に配慮して実施可能な高純度化プロセスにするため、排水基準等が厳しい有害物質の使用量が少なく、かつ有機溶剤使用量の大幅低減が可能な技術とする。

	<p>研究開発項目②-2 低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証 【国立研究開発法人産業技術総合研究所】（テーマC2）</p> <p>酸化セリウムを含有する低品位希土類化合物由来の原料等を用い、自動車排ガス浄化用触媒を調製する。酸化セリウムは触媒の熱安定性や活性向上に必須な助触媒成分である。触媒性能は自動車排ガス成分（CO, HC, NOx等）の浄化温度特性等で評価され、浄化温度が低いほど触媒性能が高く、低品位原料を利用した触媒材料への代替のためには、実用触媒と同等の浄化性能を示す必要がある。実用触媒の構成成分の見直しやナノメートルレベルでの適材配置を検証することで、実用触媒並みの浄化性能を備えた触媒材料の開発を行う。</p> <table border="1" data-bbox="400 555 1433 1111"> <thead> <tr> <th>研究開発項目</th> <th>目標</th> <th>成果</th> <th>成果</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>研究開発項目②-1 低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発</td> <td>1) セリウム溶媒抽出における選択性向上：忌避元素残存率0.01%以下 2) 分離プロセスの高効率化：従来型ミキサーセトラー比で装置規模1/2（同等能力運転）</td> <td>エマルションフロー装置を用いた分離プロセスにより、軽レアアース混合溶液から、セリウム純度>99.99%の水溶液を得ることに成功した。また、その際の装置規模は従来型ミキサーセトラーと比較して、1/2以下であった。</td> <td>○</td> </tr> <tr> <td>研究開発項目②-2 低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証</td> <td>1) 触媒の構成成分の見直しと適材配置を提案：実用触媒同等性能／プロピレン浄化率50%の温度300℃以下 2) 低品位原料の触媒部材の利用割合最適化：低品位原料の利用比（重量比）50%以上</td> <td>低品位セリア原料の使用を想定したセリア系触媒と少量のセリアを添加したアルミナ系触媒からなる触媒でプロピレン浄化率50%の温度300℃以下の触媒性能を得た。また、その触媒の低品位セリア原料の使用率は50%であった。</td> <td>○</td> </tr> </tbody> </table> <table border="1" data-bbox="400 1182 1433 1397"> <tr> <td>投稿論文</td> <td>「査読付き」6件</td> </tr> <tr> <td>特許</td> <td>「出願済」5件</td> </tr> <tr> <td>その他の外部発表 (プレス発表等)</td> <td>研究発表・講演：13件 プレス発表等：17件</td> </tr> </table>	研究開発項目	目標	成果	成果	研究開発項目②-1 低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発	1) セリウム溶媒抽出における選択性向上：忌避元素残存率0.01%以下 2) 分離プロセスの高効率化：従来型ミキサーセトラー比で装置規模1/2（同等能力運転）	エマルションフロー装置を用いた分離プロセスにより、軽レアアース混合溶液から、セリウム純度>99.99%の水溶液を得ることに成功した。また、その際の装置規模は従来型ミキサーセトラーと比較して、1/2以下であった。	○	研究開発項目②-2 低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証	1) 触媒の構成成分の見直しと適材配置を提案：実用触媒同等性能／プロピレン浄化率50%の温度300℃以下 2) 低品位原料の触媒部材の利用割合最適化：低品位原料の利用比（重量比）50%以上	低品位セリア原料の使用を想定したセリア系触媒と少量のセリアを添加したアルミナ系触媒からなる触媒でプロピレン浄化率50%の温度300℃以下の触媒性能を得た。また、その触媒の低品位セリア原料の使用率は50%であった。	○	投稿論文	「査読付き」6件	特許	「出願済」5件	その他の外部発表 (プレス発表等)	研究発表・講演：13件 プレス発表等：17件
研究開発項目	目標	成果	成果																
研究開発項目②-1 低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発	1) セリウム溶媒抽出における選択性向上：忌避元素残存率0.01%以下 2) 分離プロセスの高効率化：従来型ミキサーセトラー比で装置規模1/2（同等能力運転）	エマルションフロー装置を用いた分離プロセスにより、軽レアアース混合溶液から、セリウム純度>99.99%の水溶液を得ることに成功した。また、その際の装置規模は従来型ミキサーセトラーと比較して、1/2以下であった。	○																
研究開発項目②-2 低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証	1) 触媒の構成成分の見直しと適材配置を提案：実用触媒同等性能／プロピレン浄化率50%の温度300℃以下 2) 低品位原料の触媒部材の利用割合最適化：低品位原料の利用比（重量比）50%以上	低品位セリア原料の使用を想定したセリア系触媒と少量のセリアを添加したアルミナ系触媒からなる触媒でプロピレン浄化率50%の温度300℃以下の触媒性能を得た。また、その触媒の低品位セリア原料の使用率は50%であった。	○																
投稿論文	「査読付き」6件																		
特許	「出願済」5件																		
その他の外部発表 (プレス発表等)	研究発表・講演：13件 プレス発表等：17件																		
<p>4. 成果の実用化に向けた取組及び見直しについて</p>	<p>研究開発項目① 重希土類を使用しない高性能磁石等の開発 研究開発項目①-1 重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証 【愛知製鋼株式会社】（テーマA3）</p> <p>(1)製品イメージ：Dyフリーの駆動用システム用磁石を用いたモーター部、減速機部、インバータ部が一体となった電動アクスル</p> <p>(2)市場、ユーザの要求</p> <ul style="list-style-type: none"> ■アクスル市場：13.5兆円(9000万台) @2040年 ■ユーザの要求：出力密度が小さい、航続距離が短い 重希土類、銅、電磁鋼板の資源問題 ■市場の反応：本成果をニュースリリースした結果、高効率な電動アクスル製品に大きな反響 <p>(3)競合他社に対する優位性</p> <ul style="list-style-type: none"> ■希土類、銅、電磁鋼板等の省資源化および磁石、ギヤ等のリサイクル性 ⇒低コスト化 <p>(4)実用化に向けた今後の課題と方針</p> <ul style="list-style-type: none"> ■各要素技術やモーターシステムの耐久性評価、車両搭載性評価、さらにインバータとの調整 <p>(5) 実用化・事業化までのシナリオ</p> <ul style="list-style-type: none"> ■本技術をベースに、NEDO グリーンイノベーション（GI）基金助成事業「次世代蓄電池・次世代モーターの開発」に採択、今後、上記課題を解決して、社会実装化に向け事業化を進める 																		

【株式会社 I H I】(テーマB1)

本研究開発から得られた技術成果から、既存の手法である加工磁石においては、モーター性能評価まで本開発で完了しており、モーター試作に必要な手法、具体的には協力関係を通じた国内メーカーでの試作体制を築くことも必要である。既存の手法である加工磁石による試作体制を整備しつつ、限界性能の打破に向けた先進要素技術の探査・技術成立と合わせて、製品に向けた成立性向上に取り組む必要がある。これらの限界性能を打破する先進要素技術や、国内メーカーの協力体制や技術成立性向上の開発をクリアし、製品への適用・事業化に向けた再設計が必要である。再設計・製品化期間は見通しが難しいものの、従来通りで据え置くと5年の期間となる。およそこれらの期間を合計し、10年後の2032年頃の市場を目指し再構築するものとする。

研究開発項目①-2

重希土類を使用せず、供給途絶懸念のあるレアアースの使用を極力減らす、又は使用しない高性能新磁石材料を探索するための新しい磁石開発手法の開発

【国立研究開発法人産業技術総合研究所】(テーマA2)

データ駆動型材料開発技術について、マテリアルズ・インフォマティクスとプロセス・インフォマティクスについては、プログラムを企業に提供できる状況にある。個別企業に対してチューニングを行う事により、提供が可能。ハイスルーブットプロセス技術は、材料探索手法として企業への技術移転が可能となっている。また、新たに開発した装置は、まずは内部での材料開発手法として取り組み、知財を確保した後に、企業への技術移転を図る。準安定系の磁石材料については、高磁化でかつ異方化が可能な材料開発ができればインパクトは大きい、まだ開発途上である。

【国立大学法人東北大学、株式会社東芝、公益財団法人豊田理化学研究所】(テーマA1)

・研究開発成果の産業界における具体的な利用の形態、実用化が想定される製品

本研究開発において得られたSmFe系磁石粉末を樹脂と混合して一体成型することで等方性ボンド磁石として実用化することが可能となる。等方性ボンド磁石に関してはすでに磁石メーカーとの議論を開始しており、量産化を目指して製造技術開発を進めている。また、本等方性ボンド磁石はモーターや発電機に組み込まれて使用されることが想定される。本研究開発の等方性ボンド磁石を使用したモーターの有効性を検証するため、まずは小型モーターにてモーター設計最適化の検討に着手している。一方、本研究開発において得られた磁石粉末は等方性ボンド磁石にとどまらず、異方性ボンド磁石または焼結磁石としての実用化も可能性がある。異方性ボンド磁石実現のためには結晶配向が課題であり、焼結磁石化のためにはこれと合わせてバルク一体化も課題となる。

・実用化に向けた課題と今後の方針

SmFe系等方性ボンド磁石の実用化に向けては、製造技術開発とモーター適用性検証が課題となる。本研究開発において実証した高性能SmFe系等方性ボンド磁石の原料となるTbCu₇型化合物急冷薄帯とそれを用いたボンド磁石を量産規模で製造するための基盤技術開発が必要となる。また、前記SmFe系等方性ボンド磁石を適用したモーターの設計検討により、モーターとしてのメリットを明確にして適用性を検証することが重要である。一方、SmFe系焼結磁石実現に向けては、まずはSmFe系TbCu₇型化合物急冷薄帯をベースにした原理検証を実施する。具体的には、状態図計算から抽出された添加元素によるTbCu₇型結晶安定化と低速冷却プロセスによる大粒径高保磁力化の可能性検証及び焼結法によるフルデンス化の可能性検証などが重要となる。

研究開発項目② 低品位レアアースを利用した機能性材料の開発

研究開発項目②-1

低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発

【国立研究開発法人産業技術総合研究所、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、ニッキ株式会社】(テーマC1)

本事業では、高純度レアアース塩類の専門メーカーであるニッキ株式会社が研究開発に参画しており、目標値設定や分離回収条件等の決定に関与している。また、エマルションフロー装置関連の特許を有している原子力機構からの本事業への参画者らは、2021年4月に株式会社エマルションフローテクノロジーを設立しており、実用的な分離装置開発を行っている。

上記より本事業の中では実際のCMP材の原料に使用可能なセリウムの純度(99.99%以上)を目標

値の一つに設定した。また、従来型分離装置に比べて大幅な装置規模の縮小が可能であるエマルションフロー装置を導入することで、国内精錬を困難にしている原因の一つである設置面積を低減すること（従来比 1/2）を目指した。

本事業においてこれらの目標を達成したことより、終了後は、試験研究を 3 年程度、エマルションフローテクノロジー及び産業技術総合研究所の協力を得ながら実施し、その見通しが立った時点でパイロット試験機を導入、2 年程度の試験操業を行い、実用に値する成果が得られた時点で、実操業のための装置を導入する。

高純度セリア（CeO₂）を原料として使用する CMP 材は、半導体のウエハー、電子ディスプレイ用ガラス基板、眼鏡レンズ等の研磨に用いられているが、スマートフォン、タブレット PC、ノート PC 等に代表される電子機器の、さらなる小型化・高性能化へ向けた半導体デバイスの微細化・多層化に伴い、半導体製造に必要な CMP 材に要求される特性も多様化しており、その必要性は今後増加すると予想される。また、最近の国際状況からも、サプライチェーンの多様化は必須であり、国内精錬を可能にすることで様々な地域のレアース原料を使用可能にすることが重要になっている。よって、低純度原料からの高純度化は実用性の高い技術開発である。

本事業では、CMP 材の原料となるセリウム塩類の販売において国内を代表する企業であるニッキ株式会社と、エマルションフロー装置の研究開発を行うほぼ唯一の企業である株式会社エマルションフローテクノロジーが関与していることから、前記の課題の解決を行うことで、早期の実用化が期待できる。

研究開発項目②-2

低品位レアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証

【国立研究開発法人産業技術総合研究所】（テーマ C2）

本プロジェクトにおいて開発した低品位セリア原料を利用した三元触媒について、高品位セリア原料を利用した触媒と同等性能を有することを実車を用いた触媒性能試験により実証できた。三元触媒は過酷な条件で長期間（10 年以上）使用されるため市場に出荷するためには、高い信頼性と安定性が求められる。したがって、自動車を使用した実機での耐久評価が不可欠であり、2023 年度に耐久性に対する課題を克服する。2024 年度には、触媒メーカーとの協力体制を構築した上で、触媒材料を少量生産し、試作したハニカム触媒部材を自動車メーカー等にサンプル出荷する。市場での評価を元に販売の継続の可否を判断し、市場での評価が高いようであれば触媒メーカーが主体となって、2025 年度下期を目処に触媒材料と触媒部材（ハニカム）の量産化を目指す。

自動車産業は日本の主要産業であり、今後自動車の電動化が進んでもハイブリッド車が中心となり、2050 年においても内燃機関であるエンジン搭載車の販売台数の多数を占めると予想されている。したがって、自動車排ガス浄化触媒（三元触媒）の需要も減らず、新興国の経済発展にともない自動車販売台数が増加するため、三元触媒の世界的な市場規模は今後も拡大すると考えられる。一方、直近のコロナ禍などで三元触媒に必須な酸化セリウムの原料が輸入停止となる等の現実的な供給不安があり、供給停止は自動車産業におけるサプライチェーンに大きく影響する。輸入国の選択肢を増やすことが問題解決の手段の一つであるが、主要輸入国以外ではセリウム原料の純度低いため精製にコストが掛かる等が問題となっている。低品位のセリウム原料を未精製のまま、三元触媒の助触媒であるセリア系材料に適用できれば、サプライチェーン強化できる、低品位セリウム原料使用による性能低下等が予想されるが、触媒調製技術を活用することにより、現行実用触媒と同等性能の三元触媒を開発できる可能性が高く、早期の実用化が期待できる。

5. 基本計画に関する事項	作成時期	2020 年 6 月 実施方針制定（基本計画無し）
	変更履歴	2021 年 2 月：2021 年度版実施方針作成

プロジェクト用語集（研究開発項目① テーマ A）

用語	説明
Br もしくは Jr	残留磁束密度、磁石粉末に磁場をかけて磁化させた後、磁場を取り除いても磁石磁粉内部に残る磁化のこと。
d-HDDR プロセス	dynamic-Hydrogenation(水素化)- Disproportionation（不均化）-Desorption（脱水素化）- Recombination（再結合）と呼ばれる水素処理法で、NdFeB 相に水素を吸収させ、Nd 水素化物、Fe ₂ B 相、Fe 相に分解し、その後水素を脱離させると NdFeB 相に再結合し、約 300nm のナノ結晶となる。水素圧力を制御することで、異方性磁石粉末が得られる。
異方性磁石（粉末）	磁石（粉末）には、磁化されやすい結晶方向（異方性）があり、その結晶方向を揃えることにより一方向のみに高い磁気特性を付与した磁石粉末。
異方性ボンド磁石	異方性磁石粉末を樹脂（エポキシやナイロン等）で結合した磁石。
角形性（比）	減磁曲線上の残留磁束密度 Br の 90%に対応する磁場 Hk と保磁力との比で表す。Hk と保磁力が同じ値ほど理想的な減磁曲線になる。
コンパウンド	磁粉と樹脂等の混練物
電動アクスル駆動モーター あるいは車軸駆動用 超高速回転モーターシステム	駆動用モーター、インバータ、ギヤボックスが一体となった電動駆動システムのこと。
保磁力	磁化された方向とは反対方向の磁場に対する抵抗力。保磁力が高いと耐熱性も高い。

プロジェクト用語集（研究開発項目① テーマB）

Br	残留磁束密度、残留磁化ともいう。磁石または磁性体を着磁後、磁界が0の状態を示す磁束の値。磁石の磁気特性の一つで、特にモーター使用時ではトルクに相関を持つ数値。
Hcj	保磁力。磁化を持つ磁石に、磁化とは逆向きの外部磁界を付与し、磁石のみの示す磁化が0となる外部磁界の値。磁石の安定性と相関があり、特にモーター使用時・同じ種類の磁石を比較する場合は、ステータの発生する高い逆向きの磁界や、モーター周囲の高温環境などへ、磁石の有する大まかな耐久力の指標となる数値。
SmCo	サマリウムコバルト磁石。軽希土類（重希土類ではない）元素のSmと遷移金属元素のCoにより構成される希土類磁石。1960年代に見出されたSmとCoの元素比率1:5を持つ1-5系皮切りに、より高い磁気的な性能を持つ2:17の元素比率の2-17系などがある。現在、Nd磁石につぐ室温の磁気特性を持ち、150℃以上の高温環境下や、高高度や宇宙などの放射線環境下では最も優れた性能を持つ磁石。

渦電流	電動機や発電機などにおいて、磁界の変化により発生する電流。発生部分の材料抵抗が小さいほど、渦電流は大きくなる。渦電流により発生したエネルギーを渦電流損と呼び、損失低減にむけて絶縁処理した薄いケイ素鋼板などを重ね合わせたもの（積層コア）を用いるなど対策が一般的である。電動機・発電機に用いる希土類磁石では、従来、ボンド磁石を用いる例が一般的であり、積層形態にするためには薄型希土類磁石を作製・ハンドリングする難しさがある。
希土類	レアメタルの一種で、スカンジウム、イットリウムおよび15種のランタノイド元素、計17の元素の総称。英語名rare earthからレアースと呼ぶこともある。 （経済産業省 HP、や独立行政法人石油天然ガス・金属鉱物資源機構 WEB 公開資料、 https://www.meti.go.jp/policy/nonferrous_metal/rareearth/rareearth.html や https://mric.jogmec.go.jp/public/kouenkai/2015-8/20150828_04.pdf などより）
重希土類	15種のランタノイドのうち、Gd以降の元素。希土類磁石においてはDy、Tbが重要な代表元素。（独立行政法人石油天然ガス・金属鉱物資源機構 WEB 公開資料、 https://mric.jogmec.go.jp/public/kouenkai/2015-8/20150828_04.pdf などより）
ロールフィーダー	粉末供給装置の一つ。ロール状の（棒状の）部材により、供給される粉末を均一な粉末層とする装置。IHI 粉末圧延機では、圧延機主ロールの直上にロールフィーダーを設けることで、ロール上にロールフィーダーにより均一かつ薄い粉末層を作製し、主ロールにより圧粉体を連続的に作製することが可能。また、ロールフィーダーの条件のみにより粉末層・圧粉体を作る場合はフィーダーロール圧延と呼ぶ。

プロジェクト用語集（研究開発項目② テーマC）

(1) 英字

専門用語、略語	定義・解説
CMI: Critical Materials Institute	米国エネルギー省が設立した希少元素等の重要原料に関する研究機関
CMP: Chemical Mechanical Polishing	化学機械研磨。セリア（CeO ₂ ）を含んだ水性スラリーからなる CMP 材は材料表面の塩基性サイトと化学的に反応することが可能なため、機械的研磨よりも研磨速度を高められる。
DGAA: Diglycolic acid amide	ジグリコール酸アミド抽出剤
REO: Rare Earth Oxides	希土類酸化物。希土類塩は水和水や付着水を含むため、純度や含量などを酸化物換算で表記することがある。
saponification	抽出操作中の pH 変化を小さくするために、予め抽出剤の H を Na など置換しておく操作
TAA: Triamide-amine	トリアミドアミン抽出剤
TPR: Temperature Programmed Reduction	昇温還元法。水素等の希釈還元ガス気流中で一定速度で触媒等を昇温加熱しながら、還元ガスの消費や H ₂ O の生成の温度依存性を評価する手法である。

(2) 日本語

専門用語、略語	定義・解説
イオン液体	常温において液体で存在する塩。イオンのみ(アニオン、カチオン)で構成される、水と有機溶媒の特徴を合わせ持つユニークな液体の塩。
エマルションフロー装置	日本原子力研究開発機構において開発された抽出分離装置。有機相と水相を液滴として噴出させることで、液滴の積層と合一が起きる。液混合部と相分離部が同一装置内にあるため、混合と同時に相分離を行うことが可能となっている。
含浸法	触媒担体粉末に触媒成分の金属塩溶液を含浸させた後、蒸発乾固、焼成あるいは還元により触媒調製を行う方法。
金属分散度	担体上に担持された触媒金属粒子の粒子径を評価する値で、金属粒子表面の金属原子数の割合。金属分散度が大きいほど金属粒子径が小さい。
三元触媒	ガソリンエンジン排ガスを理論空燃比近傍に制御し、炭化水素と一酸化炭素の酸化除去および窒素酸化物の還元除去を同時に行う触媒。
自動車排ガス浄化触媒	自動車のエンジンから排気される有害ガス成分（炭化水素、一酸化炭素、窒素酸化物）を浄化するための触媒。
硝酸性窒素	硝酸イオンの形で存在する窒素。
精錬	原料鉱石から必要とする金属を抽出する操作
表面ポリオール還元法	触媒成分の貴金属塩溶液に多価アルコール（ポリオール）を少量添加し、蒸発乾固の後、不活性ガス中での加熱によりポリオール還元を誘起し、貴金属のナノ粒子を担体表面上に直接貴金属ナノ粒子を析出させる触媒調製方法。
分離係数	元素間の分離のしやすさを示す。1 から離れるほど分離性能が高い。
ベースメタル	金属のうちレアメタルに該当しないものの総称。鉄や銅、亜鉛、鉛、アルミニウムなどのように社会の中で大量に使用され、生産量が多く、様々な材料に使用されてきた金属。
ミキサーセトラ装置	工業的に広く使用されている抽出分離装置。ミキサー部で攪拌により有機相と水相の接触・混合を行い、金属イオンを抽出する。その後、液はセトラ部へ送られ、比重差により相分離する。
レアアース	Sc, Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu からなる 元素群の総称。La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu を軽レアアース、Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Y を重レアアースと呼ぶ。また、Sm, Eu, Gd を中レアアースと呼ぶこともある。

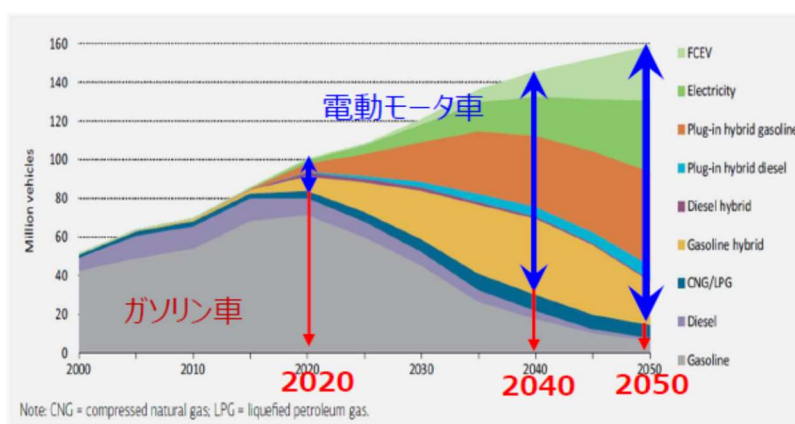
I. 事業の位置付け・必要性について

1.1 事業の背景

新型コロナウイルス感染症の世界的な流行によって、人々の健康・経済活動に重要な物資のサプライチェーンの寸断リスクが顕在化した。予期せぬ危機に際して部素材の供給途絶リスクを解消するためにはサプライチェーンの強靱化に資する技術開発等が必要である。

レアアースは供給源が限られているが、高性能磁石やモーター等の中核素材であり、家庭や産業用機器・機械向けなど様々な分野で使用されている上、自動車の電動化(HEV、EV、FCV)に伴い、モーター需要の拡大が予想されていることなどから、部素材の中でも特にサプライチェーンの強靱化が必要な分野である。

●世界の自動車保有台数予測（百万台）



出典：IEA (2015) Energy Technology Perspectives. All rights reserved.
典拠 IEA「Energy Technology Perspectives. (2015)」より引用、一部 NEDO 改変

図-A 世界の自動車保有台数予測

高効率モーターには、磁性材料としてネオジム磁石が利用されているが、耐熱性付与等の性能向上には、重希土類元素であるジスプロシウムの添加が必要である。しかしジスプロシウムは地球上に偏在し、かつ資源量が非常に少なく、供給途絶リスクが高い。また、今後駆動用モーターを搭載した次世代自動車の生産台数が増加するとネオジムの大量使用時代が来ると言われており、ネオジムの需給が逼迫することも懸念されている。サプライチェーン強靱化の観点から、重希土類を使用しない高性能磁石の開発や供給途絶懸念のあるレアアースを使用しない高性能新磁石材料の探索等は最重要課題の一つである。

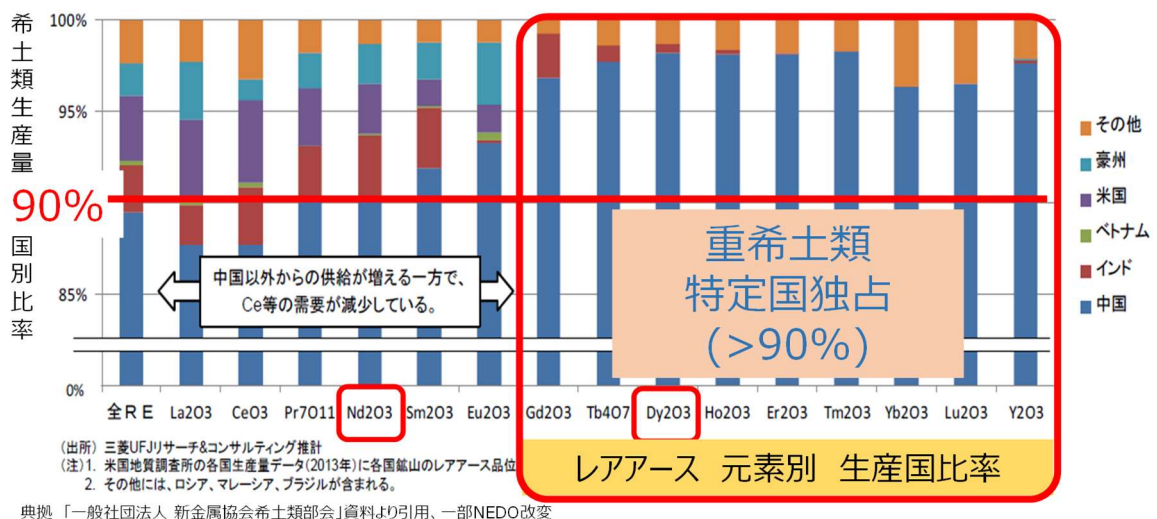


図-B レアース（希土類）生産量 国別比率

また、軽希土類については、複数地域から供給可能であるが高品位のものは供給源が限定されている。そのため、低品位レアースの高品位化に資する改質技術や低品位レアースの触媒等材料への代替利用技術も、サプライチェーン強靱化における最重要課題である。

1.2 政策上の位置づけ

新型コロナウイルス感染拡大により、人々の健康・経済活動に重要な物質のサプライチェーンが途絶、混乱した。重要物質の供給途絶による経済的・社会的影響は甚大であり、供給途絶リスクを回避するため、生産の多元化や使用量削減が喫緊の課題となっており、サプライチェーン強靱化に資する技術開発が求められている。そのため、緊急対策の一環として本事業を位置付けることで、サプライチェーン強靱化の取組が加速することを期待するものである。

表-A 元素戦略・希少元素代替技術 研究開発状況

典拠) JST 研究開発俯瞰報告書(2021年3月)より引用、一部NEDO改変

国・地域	フェーズ	現状	レアースに対する研究開発状況(～2021年3月)
日本	基礎研究	◎	経産省、文科省、JST、NEDOなどにおける各プロジェクトの推進による研究コミュニティが形成されている
	応用研究・開発	◎	開発成果をもとに新物質・新材料の実用化が進みつつある
米国	基礎研究	○	希少鉱物に関する2つの大統領令が発令 活動活発化
	応用研究・開発	○	各省庁が、希少鉱物安定供給ルート確保、敵対国に対する依存度解消に向け対応策を検討中
欧州	基礎研究	○	Critical Economyの観点で、欧州圏内の希少鉱物の埋蔵量、偏在性把握に関する活動が活発化
	応用研究・開発	○	Horizon2020に続き、HorizonEuropeにおいても産業化めざしプロジェクト推進、「希少鉱物に関する行動計画」発表
中国	基礎研究	○	貴金属代替、削減に関する論文急増
	応用研究・開発	○	「国家レアース機能材料イノベーションセンター」の設立許可 資源保有国の強みを有し、今後、研究・開発が活発化

1.3 国内外の状況

中国はレアアース産出国であることなどを背景にネオジム磁石市場において存在感を増しており、平成 27 年の世界シェアの 80%近くを占めている。研究開発力、品質の高さにおいて日本は世界をリードしているが、中国には研究者の数が多く特許も多数出願されるようになり、性能面でも日本製品をキャッチアップしつつある。現状、次世代自動車の駆動用モーターには、性能と品質の高さから日本製のネオジム磁石が 100%使用されているが、韓国や欧州の自動車メーカーでは中国製ネオジム磁石の採用が進み始めている。

また、欧米、特に米国ではレアアースのリサイクル率を高め、リサイクルで全体の資源有効活用を高めるといような、トータルシステム指向の発想による問題解決を図ろうとしている。しかし、リサイクル可能な磁石を含む日本の次世代自動車は使用後に海外で再利用されていることから、リサイクルで供給途絶懸念があるレアアース需要を満たすことは困難である。

そのような中、更なる技術革新を目指してポストネオジム磁石としての新規高性能磁石が世界中で研究されている。未だ有力な磁石は開発できていないが、その開発動向を調べると、レアアースを使用しない(レアアースフリー)磁石から、最近では、資源的にリスクの高い重希土類(ジスプロシウム、テルビウム等)のみを使用しない重希土類フリー磁石に開発の主流が変わってきている。

1.4 他の事業との関係

磁石技術開発に関しては、NEDO 事業「次世代自動車向け高効率モーター用磁性材料技術開発」が行われており、エネルギー損失を40%以上削減するモーターの開発が進められている。

本事業では、重希土を使用せず小型超高速回転モーター駆動システム磁石の開発、重希土類や供給途絶懸念のあるレアアースを使用しない高性能新磁石材料を探索するための新しい磁石開発手法の開発、低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発、低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証を行う。このように「次世代自動車向け高効率モーター用磁性材料技術開発」で実施していない課題に取り組むこととしている。

1.5 NEDO が関与することの意義

本事業の対象であるレアアースは、他の原材料での代替が非常に困難で、技術的難度が非常に高いことから、実現までに長い時間を必要とする可能性が高い。また、供給源が限られているレアアースは、高性能磁石やモーター等の中核素材である。これらは、家庭・産業で広く使用され、自動車電動化に伴い、モーター需要拡大も予想されていることより、供給途絶による経済的・社会的影響は甚大である。サプライチェーン強靱化に資する緊急対策の一環として本事業を位置付けることで、取組が加速することを期待できる。

以上より、国主導の形で、レアアース省資源化技術開発を支援し、早期確立を目指すべき事業であり、NEDOが持つこれまでの知識、実績を活かして推進すべき事業であり、NEDOの関与が必要不可欠である。

1.6 実施の効果(費用対効果)

本プロジェクトは事業期間1年6か月間、事業規模約11.8億円の計画で進めた。次世代自動車用高性能モーターは、エアコンなどの家電製品、ならびに産業用ロボットなどの産業機器に波及拡大するため、国内電力消費量の約半分を占めるモーター全体の効率を上げることができる。新規高性能磁石を用いた高効率モーターへのシフトを考慮すると、2030年に年間890万トンのCO₂排出量削減に貢献できる。また、削減量の大部分を占める産業用モーターに限っても、低損失化により、年間240億kWhの電力使用料削減に寄与し、金額ベースでは年間3,700億円の削減になる。(15円/kWhとして算出)

高効率モーター市場に関しては次世代自動車の2030年における販売台数を288万台とし、その30%に高効率モーターが搭載されるとした場合530億円/年の市場が創出される。また、産業用モーターの2030年の国内出荷額を約2,000億円とし、その30%に高効率モーターが搭載されるとした場合600億円/年の市場が創出される。両方合わせると、約1,100億円/年の高効率モーター市場創出に貢献する。上記実現にあたり、危機に際して供給途絶リスクの高い重希土類のサプライチェーンのリスク解消が達成され、レアアース使用量削減により一部のサプライチェーンの断絶に対しても必要量が確保できる。

以上のCO₂排出削減量、市場効果については、プロジェクト終了時点での動向を踏まえた再試算を行い、それぞれ969万トン、1421億円と、十分な費用対効果を維持していることを確認した。

2030年に於ける、酸化セリウムを含む主な自動車排ガス浄化触媒の国内市場規模は、ガソリン車用触媒(三元触媒)1,542億円と予測されており、排ガス規制が一層強化されていくことを受け、世界規模では、三元触媒では17,063億円が見込まれている。低品位レアアースを利用した新しい触媒材料技術の開発が進めば、日本独自のサプライチェーンの構築とその強靱化が期待され、国内市場の20%(仮置き数値)が低品位レアアース代替利用となれば、上記に加えて300億円の市場が創出される。これら実現にあたり、特定の軽希土類産地に限定されず多様なサプライチェーンを活用できる。

II. 研究開発マネジメントについて

2.1 事業の目標

本プロジェクトは、レアアース等の部素材の使用を極力減らす、又は使用しない技術の開発によって、予期せぬ危機に際して重要物資の供給途絶リスクを削減し、サプライチェーンの強靱化に繋げる技術を確立することを目指すものである。

2.2 事業の内容

研究開発項目ごとの目標は、以下の通りである。

研究開発項目① 重希土類を使用しない高性能磁石等の開発

資源的にリスクの高い重希土類(ジスプロシウム、テルビウム等)を使用しない、小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証および、レアアース量低減、レアアースフリーを目指した新しい磁石開発手法の開発を行う。

研究開発項目①-1

重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証

資源的にリスクの高い重希土類(ジスプロシウム、テルビウム等)を使用しない高性能磁粉ならびに、形状自由度が高く組付け性の良い成形方法を開発する。成形した磁石は、高保磁力Hc高残留磁束密度Brを示し、渦電流損の抑制が可能な高電気抵抗を目指す。更に、開発した磁石を組み込み、車軸に実走行回転の取出しが可能な、小型軽量の車軸駆動用超高速回転モーターシステムを設計・試作し、稼働試験による実証を行うとともに、実用化にむけた課題を抽出する。なお、実証に必要な周辺技術は併せて開発を行う。

【最終目標(2021年度末)】

(1) 高性能磁石の開発

重希土類(ジスプロシウム、テルビウム等)を使用しない高保磁力Hcで高残留磁束密度Brの磁粉を開発し、成形方法を開発する。

①高性能な重希土類フリー磁石粉末の開発

②ローターと磁石の一体化可能な成形技術の開発

③体積抵抗率(電気) $\rho > 10\text{m}\Omega\cdot\text{cm}$ 以上、Hc18kOe以上、Br8.5kG以上の成形磁石の実現

(2) 超高速回転モーター駆動システムによる実証

上記磁石を組み込み、実走行回転数の出力を得る車軸駆動用の小型軽量の超高速回転モーターシステムを設計・試作し、稼働実証を行う。また、長時間稼働実証をもって、磁石の耐稼働環境(耐自己発熱、潤滑剤等)の指標とする。

①車軸駆動用小型軽量超高速モーターシステムの基本設計目安

リッターカーエンジン出力を目安とした、最高出力:50kW以上で、

モーター最高回転数:30,000rpm以上の稼働実証

②磁石およびシステムの実用化に向けた課題抽出

研究開発項目①-2

重希土類を使用せず、供給途絶懸念のあるレアアースの使用を極力減らす、又は使用しない高性能新磁石材料を探索するための新しい磁石開発手法の開発

ネオジム磁石を超える可能性のある磁石材料の多くは準安定な材料であり、その特性は結晶構造や材料組成のみならずプロセスに依存する。

【1】機械学習を用いた磁石材料探索を効率的に進める手法を開発し、【2】一度に多数のデータを取得できるハイスループットな材料作製手法を開発し、機械学習との組み合わせの有効性を明らかにする。さらに、これらの研究から得られる知見を活かして、重希土類を使用せず、供給途絶懸念のあるレアアースの使用を極力減らす、又は使用しない磁石の可能性について探索を行う。具体的には、【1】機械学習を利用したデータ駆動型材料開発を(1)磁気物性は第一原理計算データや実験データを基に、優れた組成を予測するシステムを構築(2)プロセス条件由来の組織に強く依存し理論予測が困難な磁気特性は、実験データを基に機械学習システムを構築して因子を明確化、これらの融合で磁石特性予測ができるシステムを構築する。これらは、従来のネオジム磁石以外の高性能磁石候補に適用する。

【2】準安定な状態を作り出すため冷却速度を考慮し、一度に多組成や複数の結晶構造を持つ粉末を合成できるハイスループットな材料プロセスを開発する。【1】の予測結果を、開発したプロセスで適正化することにより、効率的に探索を進めることを実証する。また、特定レアアース削減により一般に小さくなる保磁力を、材料組織や結晶状態で向上すべくデータ駆動による機械学習により予測して材料探索を行う。以上の試みにより、データ駆動型の材料開発のプラットフォームを構築するための要素技術を開発し、省希土類元素磁石の高特性化を進める。

【最終目標(2021年度末)】

【1】脱重希土類磁石材料開発をモデルケースとしたデータ駆動型の材料開発プラットフォームの要素技術の開発

【2】多組成の粉末を1プロセスで合成できるハイスループット装置の開発

これらの結果として、脱重希土類磁石がネオジム磁石の特性を凌駕するための指針を得る。

研究開発項目②

低品位レアアースを利用した機能性材料の開発

含有量や不純物が多く、現状ではそのままで利用が難しいレアアース(低品位レアアース)を利用した多用途、代替化、高付加価値化等を目指した機能性材料開発を行う。

研究開発項目②-1

低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発

低品位のために使用されていないセリウム化合物から不純物を高効率で除去するため、新たな溶媒抽出等技術の開発を行う。環境に配慮して実施可能な高純度化プロセスにするため、排水基準等が厳しい有害物質の使用量が少なく、かつ有機溶剤使用量の大幅低減が可能な技術とする。

【最終目標(2021年度末)】

複数地域から供給可能でも低品位のためにそのままで利用が難しいセリウム化合物の品位を、CMP用研磨剤等の素材として、当該製品の生産者が求める品位にまで高め、我が国触媒産業等の発展に寄与することを目指す。環境負荷が高い硝酸性窒素等の排水への流出を考慮し、硝酸溶液を使用しない分離法を開発する。最終的には、小型かつ大量処理が可能で、実プロセスに導入可能な分離装置を用いた試験を行い、実用化への課題を明確にする。

また、以下の各項目について要素技術を確立する。

- ①セリウム溶媒抽出における選択性向上：忌避元素残存率0.01%以下
- ②分離プロセスの高効率化：従来型ミキサーセトラ比で装置規模1/2(同等能力運転)

研究開発項目②-2

低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証

酸化セリウムを含有する低品位希土類化合物由来の原料等を用い、自動車排ガス浄化用触媒を調製する。酸化セリウムは触媒の熱安定性や活性向上に必須な助触媒成分である。触媒性能は自動車排ガス成分(CO, HC, NO_x等)の浄化温度特性等で評価され、浄化温度が低いほど触媒性能が高く、低品位原料を利用した触媒材料への代替のためには、実用触媒と同等の浄化性能を示す必要がある。実用触媒の構成成分の見直しやナノメートルレベルでの適材配置を検証することで、実用触媒並みの浄化性能を備えた触媒材料の開発を行う。

【最終目標(2021年度末)】

自動車排ガス浄化用の実用触媒並みの浄化性能を備えた、セリウム化合物の使用率の高い高付加価値な触媒調製技術を、触媒材料並びにハニカム部材化も含めて開発する。

低品位のために利用できない軽希土類化合物について、高品位原料から調製した触媒材料の浄化性能と比較し低下した浄化性能を補うため、触媒組成および構造の最適化等による触媒性能向上を図り、低品位原料を有効利用できる技術開発・実証を実施する。

低品位原料からでも高性能な触媒材料が調製できる、高付加価値な触媒材料技術を開発することで、自動車排ガス浄化触媒の高性能化に不可欠なレアアース(酸化セリウム)の原料代替化を目指し、我が国の技術力の底上げや国際競争力の強化、サプライチェーンの強靱化に貢献する。

また、以下の各項目について要素技術を確立する。

①触媒の構成成分の見直しと適材配置を提案:実用触媒同等性能/プロピレン浄化率50%の温度300℃以下(ストイキ組成のモデルガスによるライトオフ特性評価法に準じる、文献:自動車技術会論文集 Vol.50, No.5, September 2019 p1293等)

②低品位原料の触媒部材の利用割合最適化:低品位原料の利用比(重量比)50%以上

2.3 事業の計画

表-B 研究開発スケジュール

		事業期間	
		2020年度	2021年度
技術推進委員会・成果報告会（開催月）			▼5月 ▼11・12月 ▼2月
研究開発項目① 重希土類を使用しない高性能磁石等の開発			
1) 重希土類フリー小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証	重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証 レアアース量低減、レアアースフリーを目指した新しい磁石開発手法の開発		
2) 重希土類を使用せず、供給途絶懸念のあるレアアースの使用を極力減らす又は使用しない高性能新磁石材料を探索するための新しい磁石開発手法の開発	機械学習を用いた磁石材料探索を効率的に進める手法を開発 ハイスループットな材料作製手法を開発 高鉄濃度希土類化合物微結晶創製技術の開発 高鉄濃度希土類化合物急冷薄帯の組織解析		
研究開発項目② 低品位レアアースを利用した機能性材料の開発			
1) 低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発	低品位のために使用されていないセリウム化合物から不純物を高効率で除去、利用可能なレベルに高品位化するための、新たな溶媒抽出等技術の開発		
2) 低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証	酸化セリウムを含有する低品位希土類化合物由来の原料等を用い、構成成分の見直しやナノレベルの適材配置等の調製技術開発		

2.4 事業の実施体制とプロジェクト費用

■ 実施体制

表-C 実施体制

研究開発テーマ	開発責任者	研究開発項目	事業者	テーマ責任者	NEDO呼称 テーマ名	契約形態
① 重希土類を使用しない高性能磁石等の開発	国立研究開発法人産業技術総合研究所 研究センター長 尾崎 公洋	①-1 重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証	愛知製鋼株式会社	グループ長 度曾 亜紀	A3	委託契約
		①-2 重希土類を使用せず、供給途絶懸念のあるレアアースの使用を極力減らす、又は使用しない高性能新磁石材料を探索するための新しい磁石開発手法の開発				
		①-2-1 データ駆動による高鉄濃度準安定系磁石材料の開発	国立研究開発法人産業技術総合研究所	研究センター長 尾崎 公洋	A2	委託契約
			国立研究開発法人物質・材料研究機構	副拠点長 大久保 志勝		委託契約
		①-2-2 高鉄濃度希土類磁石化合物における相平衡とプロセス技術開発	国立大学法人東北大学	教授 杉本 諭	A1	委託契約
	株式会社東芝	技監 塚田 新哉		委託契約		
	公益財団法人豊田理化学研究所	フェロー 大谷 博司		共同実施		
	株式会社IHI 主査 米山 夏樹	①-1 重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証	株式会社IHI	主査 米山 夏樹	B1	委託契約
② 低品位レアアースを利用した機能性材料の開発	国立研究開発法人産業技術総合研究所 研究チーム長 成田 弘一	②-1 低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発	国立研究開発法人産業技術総合研究所	研究チーム長 成田 弘一	C1	委託契約
			国立研究開発法人日本原子力研究開発機構			委託契約
			ニッキ株式会社			委託契約
		②-2 低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証	国立研究開発法人産業技術総合研究所	主任研究員 三木 健	C2	委託契約

■ プロジェクト費用

表-D プロジェクト費用

(単位:百万円)

研究開発項目	テーマ	事業者名	2020年度	2021年度	小計	合計
①-1	A3	愛知製鋼	100	338	438	543
	B1	IHI	28	77	105	
①-2	A2	産総研 物質・材料研	146	206	352	525
	A1	東北大 東芝	14	159	173	
②-1	C1	産総研 原子力研 ニッキ	25	38	63	63
②-2	C2	産総研	27	20	47	47
合計			339	838	1,178	1,178

2.5 研究開発の運営管理

■ 進捗管理

四半期毎に開発目標と達成度を各テーマ別代表者様と進捗確認実施

■ 第1回 技術推進委員会開催:2021年5月21日

研究の進捗、課題について報告を受け、委員よりアドバイスをいただき、事業者様の業務へ反映

委員長:岡部教授(東京大学)、委員:赤津教授(横浜国立大学)、今中教授(大阪大学)、堺教授(東洋大学)、佐久間教授(東北大学)

C1 テーマ(産総研・原子力研・ニッキ):予算内での開発促進用に追加投入

■ 第2回 技術推進委員会(研究開発現場調査会)開催:2021年11月・12月

全テーマの研究開発現場を技術推進委員及び経産省関連者と訪問実施
研究の進捗、課題について報告を受け、委員よりアドバイスをいただき、事業者様の業務へ反映

B1 テーマ(IHI社):プロセス開発課題取組みのため、研究開発期間1ヶ月延長変更

■成果報告会の開催:2022年2月

2022年2月:成果報告会実施

研究成果報告を目指し、進捗を推進

実用化に向けて各委員よりアドバイスをいただいた

■研究開発の運営管理(変更契約)

技術推進委員会での委員のコメントを受け、以下の変更契約の対応を実施した。

1)研究開発項目①-1 B1 テーマ(事業者:IHI 社)

・1ヶ月の契約期間延長

2)研究開発項目②-1 C1 テーマ

(事業者:産業技術総合研究所、日本原子力研究機構、ニッキ株式会社)

・予算内での開発促進用に追加投入

表-E 技術推進委員指摘事項と変更契約内容

テーマ (事業者)	技術推進委員指摘	対応
B1 (IHI)	粉末圧延による積層構造磁石の限界性能を見極め、仕様到達への技術的理由をきちんと明確にさせていただいて、課題を抽出して頂きたい	粉末圧延型積層構造磁石の特性について、粉末圧延磁石単体としての限界性能をしっかりと見極めるため、3月末まで、1ヶ月延長して実施 ・ホットプレスを利用した焼結技術の検討 ・1-5系の焼結しやすい素材の追加検討 ・外部有識者コメントによる対策の立案と実施 ・プロセス開発とモータ評価の切り分け実施 ・モータ評価は従来加工による薄型積層磁石について、プロセス開発については限界性能を得るべく追加の検討・期間を設ける変更を実施
C1 (産総研)	研究を加速してエマルションフローの実用化に対する課題を見つけ出して早めに対策を講じた開発を進めてください	模擬液等を用いた試験を行い生じた問題点に関して、細管束ノズル等を導入し開発試験を行った

■研究開発の促進

C1 テーマへの予算内で追加投入の内容を表-F に示した。

表-F 追加予算投入内容

件名	投入年度	金額 (百万円)	目的	成果
エマルションフロー装置付属品等の購入	2021	3.7	細管束ノズル、pHメータ付きエマルションフロー装置等を導入し、Ceの更なる高純度化及び実用性向上を図るため	実工程液による試験において生じていた、目詰まり等の問題を解消することができた
新規トリアミドアミン型抽出剤の購入	2021	1.1	セリウム以外のレアアースにも対応できるように、汎用性を向上させるため	レアアースの抽出率と原子番号との関係を明らかにし、査読付き英語論文誌の受理に至った
油分測定計の購入	2021	1.6	新規トリアミドアミン型抽出剤の実用性を調べるために、抽出操作後の水溶液への抽出剤の漏洩濃度を測定するため	トリアミドアミン型抽出剤の水溶液の漏洩濃度は極めて低く、問題ないことが分かった

2.6 研究開発成果の実用化に向けたマネジメント

■実用化について

本プロジェクトにおける「実用化」とは以下としている。

本事業における実用化とは、当該研究開発における試作品、技術等の社会的利用が開始されることをいう。

【研究開発項目①】

磁石開発においては、磁石メーカーにより量産プロセス技術の確立、生産／販売が開始されることをもって実用化とする。手法開発においては、実証試験ならびに第3者へのサンプル提供、企業単独での実施をもって実用化とする。モーター開発においては、商業化、量産の開始、他社との協業体制の確立をもって実用化とする。

【研究開発項目②】

化学機械研磨材開発については自社工場における生産体制を確立することをもって実用化とする。触媒開発においては、現行実用触媒と同等性能および耐久性を実現し第3者への生産技術移転が可能となることをもって実用化とする。

■知的財産権等に関するマネジメントについて

本プロジェクトにおいて、以下のとおり実施した。

- (1) 知的財産権の帰属 知的財産権は、全て委託先・再委託先の発明機関に帰属
- (2) NEDOプロジェクトにおける知財マネジメント基本方針に関する事項 NEDO 知財方針に記載された「知財運営委員会」を整備し、「知財の取扱いに関する合意書」を作成実施
- (3) NEDOプロジェクトにおけるデータマネジメントに係る基本方針 (NEDOデータ方針)に関する事項 NEDOデータ方針に記載された「知財運営委員会」を整備し、「データの取扱いに関する合意書」を作成実施

	非競争域	競争域	
公開	公知情報等	<ul style="list-style-type: none"> ・材料組成・構造 ・装置・モーター構造 ・材料・プロセス開発 ・システム開発 	積極的に権利化
非公開		<ul style="list-style-type: none"> ・部材製造技術・製造条件 ・装置運転条件 	ノウハウとして秘匿

2.7 情勢変化への対応

特に無し

2.8 中間評価結果への対応

5年未満のプロジェクトのため、中間評価は無し

2.9 評価に関する事項

NEDOは、(1)事業の位置づけ・必要性、(2)研究開発マネジメント、(3)研究開発成果、(4)実用化、事業化に向けた見通し及び取組の4つの評価項目について、外部有識者によるプロジェクト評価を実施する。評価の時期は、2022年度に実施する。

Ⅲ. 研究開発成果について

3.1 事業全体(:部素材代替プロジェクト)の成果物一覧

◆成果の普及

2022年9月5日現在

	2020 年度	2021 年度	計(件)
論文	0	6	6
研究発表・講演	4	10	14
新聞・雑誌等への掲載	1	12	13
展示会への出展	1	0	1
TV放映	0	1	1
HP掲載	0	2	2

◆知的財産権の確保に向けた取り組み

	2020 年度	2021 年度	計(件)
特許出願	0	5	5

補足) 契約期間終了後、実施されたものは2021年度に含み集計

3.2 研究開発項目ごとの成果・達成度一覧（テーマ別）

研究開発項目①-1

「重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証」

愛知製鋼株式会社(テーマ A3)

◎ 大きく上回って達成、○達成、△一部達成（事後）、×未達

研究開発項目	目標	成果	達成度	今後の課題と解決方針
[1]重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発	Br:8.5kG以上 保磁力:18kOe以上 体積抵抗率(ρ_v): 10m Ω cm以上	Br: 8.6kG 保磁力: 15.6kOe ρ_v : 10m Ω cm	○ (保磁力を除いて、概ね達成と評価)	保磁力向上に向け ・高保磁力SmFeN微粉末の検討 ・粒度分布最適化を検討
[2]超高速回転モーター駆動システムによる実証	モーター回転数: 30,000rpm以上 最大出力: 50 kW以上 駆動実証	最高出力50 kW 最高回転数: 34,000rpm 最大効率93%、最大トルク1850Nm (減速比21.8) を達成	○ (超高速回転モーター駆動システムの設計・試作、駆動実証に成功)	・小型・軽量化、省資源化を実現し高出力化、高効率化に向けた取組 ・駆動システムの耐久性評価 ・駆動システムの車両搭載性評価

補足) 技術的に Br と保磁力は背反の関係にあり、さらに体積抵抗率の向上や低圧成形でロータとの一体成形を行い磁石粉末の破壊抑制を達成するのは非常に難易度が高い。本事業の開発では保磁力の目標値は未達であるが、体積抵抗率が既存磁石の 100 倍高い値を達成できたことから、超高速回転による渦電流損による発熱が少ないため熱減磁による磁石の保磁力低下を抑制でき超高速回転モーター駆動システム用磁石としての価値は高い。ただし、保磁力は高い方が信頼性の指標は高くなるため、今後も高保磁力 SmFeN 微粉末の検討や粒度分布最適化を検討し高いレベルを目指す。

研究開発項目①-1

「重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証」

株式会社 IHI(テーマ B1)

研究開発項目	目標	成果	達成度	今後の課題と解決方針
[1]重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発	Br:8.5kG以上 保磁力:18kOe以上 体積抵抗率(ρ_v): 10m Ω cm以上 ≒1/71以下	Br: 5.8kG 保磁力: 12.1kOe ρ_v : ≒1/58	△	・ロールを介した薄型磁石の焼結改善に課題。要素技術取得から。 ・目標となる積層体の作製方法および特性取得は完了。 ・今後再設計・試作体制の構築が必要。
[2]超高速回転モーター駆動システムによる実証	モーター回転数: 30,000rpm以上 最大出力: 50 kW以上 駆動実証 (85,000rpm、4.2KW モータ定格試験による)	最高回転数: 91,000rpmのストレッチ目標まで達成。 回転試験を行い、熱静定まで確認できた。	○	-

補足) 希土類磁石の今後の高周波環境下・高速回転モーター利用を検討するなかで、技術的に従来型加工薄型磁石化合物と比較してニアネットな薄型磁石層形成方法はそのプロセス上の組織制御において新たな課題と困難があったと言う観点から、非常に難度が高く、目標値には未達であるが、積層磁石として取り扱う高速電動製品として得られた成果や薄型磁石プロセス特に焼結プロセス上の温度、時間、荷重、雰囲気などの想定される課題を抽出しかつその限界性能を得たという理由で、今後の日本の電動化製品の発展につながる成果である。これはモーター特筆すべき成果であり、また今後の高速回転モーターに利用される磁石やその作製プロセス、組み込み方法、モーター駆動システムとしての知見として価値が高い。

研究開発項目①-2 「重希土類を使用せず、供給途絶懸念のあるレアアースの使用を極力減らす、又は使用しない高性能新磁石材料を探索するための新しい磁石開発手法の開発」

産業技術総合研究所、物質・材料研究機構、東北大学、株式会社東芝

研究開発項目	目標	成果	達成度	今後の課題と解決方針
【1】機械学習を利用したデータ駆動型材料開発	脱重希土類磁石材料開発をモデルケースとしたデータ駆動型の材料開発プラットフォームの要素技術の開発	高鉄濃度Sm-Fe系磁石材料をモデル材料として、データ駆動型材料開発の要素技術を開発した。	○	(課題) モデル材料として開発した材料ならびにDX手法の実用化を目指した取り組み (解決方針) さらなる手法の確立と関連企業への技術移転
【2】一度に多数のデータを取得できるハイスループットな材料作製手法開発	多組成の粉末を1プロセスで合成できるハイスループット装置の開発	熱プラズマ法による多組成粉末の1プロセス合成に成功した。	○	(課題) 本手法による高性能磁石材料の生成 (解決方針) プロセス理論の構築

研究開発項目②-1 「低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発」

研究開発項目②-2 「低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証」

産業技術総合研究所、日本原子力研究開発機構、ニッキ株式会社

研究開発項目	目標	成果	達成度	今後の課題と解決方針
C1低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発	①セリウム溶媒抽出における選択性向上：忌避元素残存率0.01%以下 ②分離プロセスの高効率化：従来型ミキサーセトラー比で装置規模1/2 (同等能力運転)	エマルションフロー装置を用いた分離プロセスにより、軽レアアース混合溶液から、セリウム純度>99.99%の水溶液を得ることに成功した。また、その際の装置規模は従来型ミキサーセトラーと比較して、1/2以下であった。	○	エマルションフロー装置の多段化、分離条件の最適化等を行う。
C2低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証	①触媒の構成成分の見直しと適材配置を提案：実用触媒同等性能/プロピレン浄化率50%の温度300℃以下 ②低品位原料の触媒部材の利用割合最適化：低品位原料の利用比 (重量比) 50%以上	低品位セリア原料の使用を想定したセリア系触媒と少量のセリアを添加したアルミナ系触媒からなる触媒でプロピレン浄化率50%の温度300℃以下の触媒性能を得た。また、その触媒の低品位セリア原料の使用率は50%であった。	○	触媒性能向上と異種金属複合化による貴金属触媒の耐熱性の最適化を行う。

IV. 成果の実用化に向けた取組及び見通しについて

4.1 研究開発項目別実用化の見通し

【1】 研究開発項目①-1

重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証

【愛知製鋼株式会社】(テーマ A3)

(1)製品イメージ: Dy フリーの駆動用システム用磁石を用いたモーター部、減速機部、インバータ部が一体となった電動アクスル

(2)市場、ユーザの要求

■アクスル市場: 13.5 兆円(9000 万台) @2040 年

■ユーザの要求: 出力密度が小さい、航続距離が短い
重希土類、銅、電磁鋼板の資源問題

■市場の反応: 本成果をニュースリリースした結果、高効率な電動アクスル製品に大きな反響

(3)競合他社に対する優位性

■希土類、銅、電磁鋼板等の省資源化および磁石、ギヤ等のリサイクル性 ⇒低コスト化

(4)実用化に向けた今後の課題と方針

■各要素技術やモーターシステムの耐久性評価、車両搭載性評価、さらにインバータとの調整

(5) 実用化・事業化までのシナリオ

■本技術をベースに、NEDO グリーンイノベーション(GI) 基金助成事業「次世代蓄電池・次世代モーターの開発」に採択、今後、上記課題を解決して、社会実装化に向け事業化を進める

【2】 研究開発項目①-1

重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証

【株式会社IHI】(テーマB1)

(1)本研究開発はチャレンジングかつ先進的な開発の結果として、技術成立性に一定の目途は得られたものの、目標を実現できない限界性能があるという結果になった。限界性能の打破に向けてはさらなる先進要素技術の探査・技術成立性向上の開発が必要であり、追加の検討期間が必要と考えられる。およそ5年程度の再構築・検討期間を要すると考える。

(2)本研究開発から得られた技術成果から、既存の手法である加工磁石においては、モーター性能評価まで本開発で完了しており、モーター試作に必要な手法、具体的には協力関係を通じた国内メーカーでの試作体制を築くことも必要である。既存の手法である加工磁石による試作体制を整備しつつ、限界性能の打破に向けた先進要素技術の探査・技術成立と合わせて、製品に向けた成立性向上に取り組む必要がある。

(3)これらの限界性能を打破する先進要素技術や、国内メーカーの協力体制や技術成立性向上の開発をクリアし、製品への適用・事業化に向けた再設計が必要である。再設計・製品化期間は見通しが難しいものの、従来通りで据え置くと5年の期間となる。

(4)およそこれらの期間を合計し、10年後の2032年頃の市場を目指し再構築するものとする。

【3】 研究開発項目①-2

重希土類を使用せず、供給途絶懸念のあるレアアースの使用を極力減らす、又は使用しない高性能新磁石材料を探索するための新しい磁石開発手法の開発

【国立研究開発法人産業技術総合研究所、物質・材料研究開発機構】(テーマ A2)

データ駆動型材料開発技術について、マテリアルズ・インフォマティクスとプロセス・インフォマティクスについては、プログラムを企業に提供できる状況にある。個別企業に対してチューニングを行う事により、提供が可能。ハイスループットプロセス技術は、材料探索手法として企業への技術移転が可能となっている。また、新たに開発した装置は、まずは内部での材料開発手法として取り組み、知財を確保した後に、企業への技術移転を図る。準安定系の磁石材料については、高磁化でかつ異方化が可能な材料開発ができればインパクトは大きいですが、まだ開発途上である。

【4】 研究開発項目①-2

重希土類を使用せず、供給途絶懸念のあるレアアースの使用を極力減らす、又は使用しない高性能新磁石材料を探索するための新しい磁石開発手法の開発

【国立大学法人東北大学、株式会社東芝、公益財団法人豊田理化学研究所】(テーマA1)

・研究開発成果の産業界における具体的利用の形態、実用化が想定される製品

本研究開発において得られたSmFe系磁石粉末を樹脂と混合して一体成型することで等方性ボンド磁石として実用化することが可能となる。等方性ボンド磁石に関してはすでに磁石メーカーとの議論を開始しており、量産化を目指して製造技術開発を進めている。また、本等方性ボンド磁石はモーターや発電機に組み込まれて使用されることが想定される。本研究開発の等方性ボンド磁石を使用したモーターの有効性を検証するため、まずは小型モーターにてモーター設計最適化の検討に着手している。一方、本研究開発において得られた磁石粉末は等方性ボンド磁石にとどまらず、異方性ボンド磁石または焼結磁石としての実用化も可能性がある。異方性ボンド磁石実現のためには結晶配向が課題であり、焼結磁石化のためにはこれと合わせてバルク一体化も課題となる。

・実用化に向けた課題と今後の方針

SmFe系等方性ボンド磁石の実用化に向けては、製造技術開発とモーター適用性検証が課題となる。本研究開発において実証した高性能SmFe系等方性ボンド磁石の原料となるTbCu₇型化合物急冷薄帯とそれを用いたボンド磁石を量産規模で製造するための基盤技術開発が必要となる。また、前記SmFe系等方性ボンド磁石を適用したモーターの設計検討により、モーターとしてのメリットを明確にして適用性を検証することが重要である。一方、SmFe系焼結磁石実現に向けては、まずはSmFe系TbCu₇型化合物急冷薄帯をベースにした原理検証を実施する。具体的には、状態図計算から抽出された添加元素によるTbCu₇型結晶安定化と低速冷却プロセスによる大粒径高保磁力化の可能性検証及び焼結法によるフルデンス化の可能性検証などが重要となる。

【5】 研究開発項目②-1

低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発

【国立研究開発法人産業技術総合研究所、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、ニッキ株式会社】(テーマC1)

本事業では、高純度レアアース塩類の専門メーカーであるニッキ株式会社が研究開発に参画しており、目標値設定や分離回収条件等の決定に関与している。また、エマルションフロー装置関連の特許を有している原子力機構からの本事業への参画者らは、2021年4月に株式会社エマルションフローテクノロジーズを設立しており、実用的な分離装置開発を行っている。

上記より本事業の中では実際のCMP材の原料に使用可能なセリウムの純度(99.99%以上)を目標値の一つに設定した。また、従来型分離装置に比べて大幅な装置規模の縮小が可能であるエ

マルションフロー装置を導入することで、国内精錬を困難にしている原因の一つである設置面積を低減すること(従来比 1/2)を目指した。

本事業においてこれらの目標を達成したことより、終了後は、試験研究を3年程度、エマルションフローテクノロジーズ及び産業技術総合研究所の協力を得ながら実施し、その見通しが立った時点でパイロット試験機を導入、2年程度の試験操業を行い、実用に値する成果が得られた時点で、実操業のための装置を導入する。

高純度セリア(CeO_2)を原料として使用するCMP材は、半導体のウエハー、電子ディスプレイ用ガラス基板、眼鏡レンズ等の研磨に用いられているが、スマートフォン、タブレットPC、ノートPC等に代表される電子機器の、さらなる小型化・高性能化へ向けた半導体デバイスの微細化・多層化に伴い、半導体製造に必要なCMP材に要求される特性も多様化しており、その必要性は今後増加すると予想される。また、最近の国際状況からも、サプライチェーンの多様化は必須であり、国内精錬を可能にすることで様々な地域のレアアース原料を使用可能にすることが重要になっている。よって、低純度原料からの高純度化は実用性の高い技術開発である。

本事業では、CMP材の原料となるセリウム塩類の販売において国内を代表する企業であるニッキ株式会社と、エマルションフロー装置の研究開発を行うほぼ唯一の企業である株式会社エマルションフローテクノロジーズが関与していることから、前記の課題の解決を行うことで、早期の実用化が期待できる。

【6】研究開発項目②-2

低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証

【国立研究開発法人産業技術総合研究所】(テーマC2)

本プロジェクトにおいて開発した低品位セリア原料を利用した三元触媒について、高品位セリア原料を利用した触媒と同等性能を有することを、実車を用いた触媒性能試験により実証できた。三元触媒は過酷な条件で長期間(10年以上)使用されるため市場に出荷するためには、高い信頼性と安定性が求められる。したがって、自動車を使用した実機での耐久評価が不可欠であり、2023年度に耐久性に対する課題を克服する。2024年度には、触媒メーカーとの協力体制を構築した上で、触媒材料を少量生産し、試作したハニカム触媒部材を自動車メーカー等にサンプル出荷する。市場での評価を元に販売の継続の可否を判断し、市場での評価が高いようであれば触媒メーカーが主体となって、2025年度下期を目処に触媒材料と触媒部材(ハニカム)の量産化を目指す。

自動車産業は日本の主要産業であり、今後自動車の電動化が進んでもハイブリッド車が中心となり、2050年においても内燃機関であるエンジン搭載車の販売台数の多数を占めると予想されている。したがって、自動車排ガス浄化触媒(三元触媒)の需要も減らず、新興国の経済発展にともない自動車販売台数が増加するため、三元触媒の世界的な市場規模は今後も拡大すると考えられる。一方、直近のコロナ禍などで三元触媒に必須な酸化セリウムの原料が輸入停止となる等の現実的な供給不安があり、供給停止は自動車産業におけるサプライチェーンに大きく影響する。輸入国の選択肢を増やすことが問題解決の手段の一つであるが、主要輸入国以外ではセリウム原料の純度低いため精製にコストが掛かる等が問題となっている。低品位のセリウム原料を未精製のまま、三元触媒の助触媒であるセリア系材料に適用できれば、サプライチェーン強化できる、低品位セリウム原料使用による性能低下等が予想されるが、触媒調製技術を活用することにより、現行実用触媒と同等性能の三元触媒を開発できる可能性が高く、早期の実用化が期待できる。

V. 研究開発項目ごとの事業者報告詳細(テーマ別)

(1.事業の位置づけ・必要性/2.研究開発マネジメント/3.成果/4.実用化の見通し)

【1】 研究開発項目①-1

重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証

愛知製鋼株式会社(テーマA3)

1. 事業の位置付け・必要性について(愛知製鋼株式会社 テーマ A3)

1.1 事業の背景・目的・位置づけ

新型コロナウイルス感染症の世界的な流行によって、人々の健康・経済活動に重要な物資のサプライチェーンの寸断リスクが顕在化した。この経験を踏まえ、予期せぬ危機に際して部素材の供給途絶リスクを解消するためにはサプライチェーンの強靱化に資する技術開発等が必要である。

レアアース等(希土類資源、NdやSm,Dy等)の部素材においても、資源が偏在し生産拠点の集中度が高いことから予期せぬ危機に際して、重要物資の供給途絶リスクを解消するためには生産の多元化や使用量削減が喫緊の課題となっている。その解決に向けてサプライチェーンの強靱化に資する技術開発等が求められている。

1.2 事業の目的と意義、技術動向

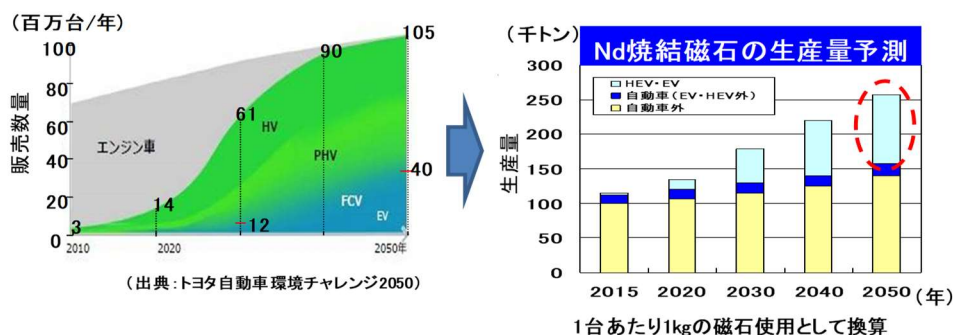


図1.自動車の電動化とNd焼結磁石の生産予想

希土類資源は、高性能磁石やモーター等の中核素材であり、家庭や産業用器機・機械向けなど様々な分野で使用されている。さらに、自動車の電動化(HEV, EV, FCV)に伴い、モーター需要の拡大が予想されている(図1)。その結果、希土類磁石市場が急拡大し希土類資源リスクの浮上が懸念され、サプライチェーンの強靱化が必要である。そのためには、次世代自動車のパワートレインの電動アクスル駆動用モーター(モーター部、ギヤ(減速機部)、インバータが一体化した駆動システム 図2)の高速化およびギヤ

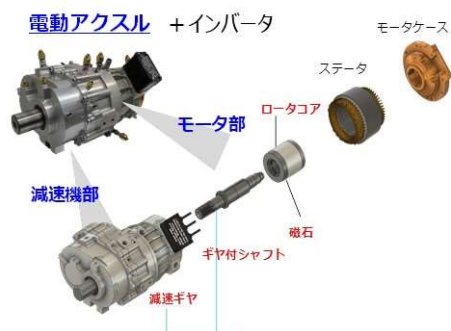


図2.電動アクスル駆動用モーター(車軸駆動用超高速回転モーターシステム)の一例

の高減速化による小型化で、重希土類元素を始めとする使用資源の削減を図る必要がある(Dyフリー、省Nd化、省銅化)。

モーター回転数の高速化は、モーターの小型軽量化および高効率化領域拡大に有効であることはよく知られている(図3)。例えば、エンジンと併用するHEV用の駆動モーターでは、これまでも高速化して小型化を行ってきた。

(トヨタプリウスでの高速化5,800rpm→6,000→13,500→17,000による小型化)

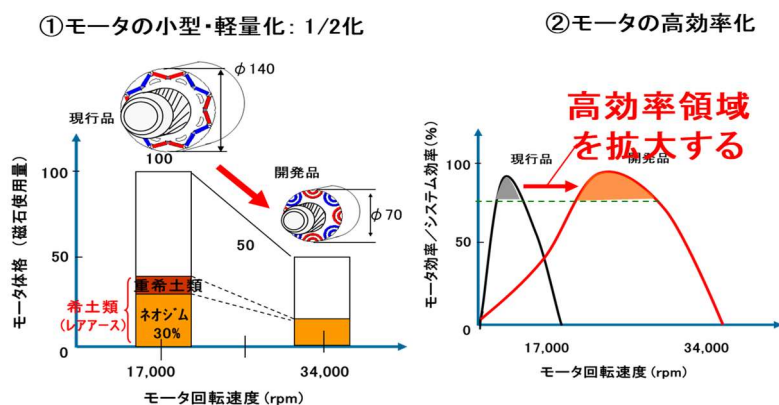


図3.高速回転化による小型化と高効率化

問題は、ここに使用される従来のNdDy焼結磁石や熱間加工磁石などの金属系希土類磁石は、モーターの高速化に伴う渦電流による自己発熱が大きくなり、磁石の安定性の指標である保磁力の低下がおこる。この保磁力の低下を防ぐために、一般にDyなどの重希土類元素を多量に使用して常温での高保磁力化を図り、モーター駆動時の高温下での保磁力の低下を抑制し、かつ磁石を薄板上に切断して絶縁層を介して積層化することで電気抵抗を抑え、自己発熱を抑制する方法がこれまで行われてきた。モーターの高速化に於いて20,000rpmを超える領域では、金属系希土類磁石の高電気抵抗化を図る絶縁層を介した薄板化技術がより多層化するため組付けが困難となり、これまで電動アクスル駆動用モーターの高速化は実現されていない。

そのため、高効率モーター用磁性材料技術研究組合(MagHEM)では、高速化で発生する渦電流による自己発熱を許容できる希土類フリーで180°Cの温度でも高い保磁力を担保する高性能磁石材料の開発を実施し、併せて高性能軟磁性材料の開発を行い、これらの材料特性をベースとして駆動用モーターの設計を行い小型化・高効率化を目指している。

一方、弊社はこれまでd-HDDR法によるNd系異方性磁石粉末の開発、その磁石粉末を用いた異方性ボンド磁石(図4)の開発を行い、多くの小型モーターに適用してきた。異方性ボンド磁石は、樹脂と磁石粉末(粒子径は100 μ m程度)の混合物であるため本質的に体積(電気)抵抗率が金属系の焼結磁石に比べて高く、形状自由度と組付け性が高いためモーターの要求トルクに合わせて必要な磁石形状を調整することで、樹脂によって薄まった磁力を補完することが可能である。そのため、モーターの高速化に伴う渦電流損の発生を抑制することができ、磁石に求められる保磁力も焼結磁石ほど高くなくてもよく、Dyフリー

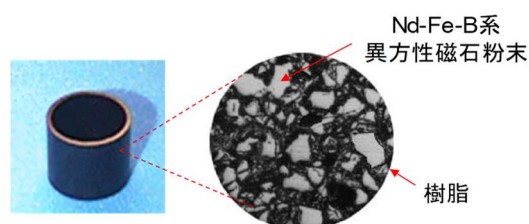


図4.異方性ボンド磁石の一例

である程度の高保磁力化が可能である。

1.3 技術課題

上記の電動アクスル駆動用モーターの高速化による小型化で、重希土類元素を始めとする使用資源の削減を図るためには、具体的には以下の研究課題の開発を通して実現する必要がある。研究課題としては、重希土類を使用しない高性能磁石等の開発。その中でも、研究課題1:「重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証」を行う。

特に、超高速回転モーター×高減速ギヤによる電動アクスル駆動用モーター(以下:車軸駆動用超高速回転モーターシステム)を実現させるには、大きく2つの技術課題の解決が必要である。

一つは、超高速回転領域でモーター効率を最大限に引き出すためにロータ内に埋め込まれる磁石

[1]重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発。

二つ目はその磁石を用いたモーターシステム

[2]超高速回転モーターシステムによる実証を行うためのシステムを含んだモーター設計とその周辺技術開発である。

2. 研究開発マネジメントについて(愛知製鋼株式会社 テーマA3)

2-1. 事業の目標と根拠

本事業として、希土類元素等の部素材の使用を極力減らす、又は使用しない技術開発によって、予期せぬ危機に際して重要物資の供給途絶リスクを削減、サプライチェーンの強靱化に繋げる技術を確立する。その研究課題は、I で述べたように、研究課題 1:「重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証」、その課題の目標とその根拠を以下に記載する。

[1] 重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発

一般に磁石粉末を割らないような低圧力で成形する場合、Brは7kG程度が最大である。しかし、磁石のBrとモーター効率の関係は、本事業の超高速モーター駆動システムと同等の磁気回路システムであるコンプレッサモーター(IPM)を例にしてコンピュータシミュレーションした場合、Brが9kG程度のところでモーター効率は最大となり、焼結磁石のような高いBrでは逆に効率が減少する傾向にある(図5)。

これは、磁石のBrの大きさは、モーターのトルク密度を追及する場合には単純に有効であるが、モーターの効率においては単調に増加するとは限らず、Brが大きくなり過ぎるとモーター磁気回路中の動作磁束密度が高くなることで、ロータ・ステータの損失が増加することによってモーター効率の低下が問題となることを示している。

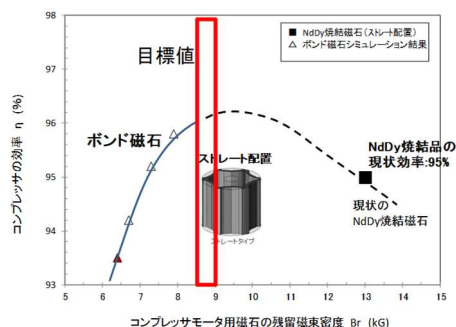


図 5.磁石の Br とモーター効率

この問題を考慮して、本事業の小型超高速モーター駆動システムの実証に必要な高性能磁石の開発の2021年度最終目標としては、モーター効率を最大限にするため、Brで8.5kG以上、保磁力は結晶粒径が同じ程度の重希土類フリー熱間加工磁石(～0.3 μm)と同等の18kOe以上とする。2020年度中間目標値として、Brで8.0kG、保磁力で16kOeを目指す。

渦電流による損失は、体積抵抗率(ρ_v)に反比例する。そのため、抵抗率が高いほど小さくなる。一般にボンド磁石(ρ_v :1～5m Ω cm)の場合、樹脂量を増やせば、抵抗率は増加するが磁力であるBrは減少する。そこで、目標値であるBr値を考慮しつつ、かつロータの超高速回転による渦電流損を従来のNd系焼結磁石(ρ_v :～0.1m Ω cm)と比較して1/100以下に抑制するため、高性能磁石に求められる ρ_v を100倍にあたる10m Ω cm以上とする。

[2] 超高速回転モーター駆動システムによる実証

一般にモーターの指標の一つに、パワーウェイトレシオ(P/W 比)がある。これは、輸送機械の加速性能を表す指標で重要な商品力でもある。通常P/Wは、産業用モーターでは1.0kW/kg以上、HEVモーターは2.0kW/kg以上、航空機モーターは5.0kW/kg以上である(表1)。

そこで、本事業では上記高性能磁石を搭載した車軸駆動用小型超高速モーターシステムの基本設計として、3.0kW/kg以上と設定する。そのため、重量を軽量化(推定重量 16.1kg)するために、2021年度の最終目標値としてモーターの回転数は30,000rpm以上、最大出力は50kW以上に設定する。

表1. 各種モーターのベンチマーク

モーター指標	モーター出力 Power P	モーター重量 Weight W	Power weight ratio (P/W)
モーター種類	[kW]	[kg]	[kW/kg]
一般産業機用	1.0	1.0	1.0
4G-Prius	53.0	22.7	2.3
LEAF	110.0	58.0	1.9
航空機機用	260.0	50.0	5.2
超高速モータ	50.0	16.1	3.1

2-2 事業の計画内容

2.2.1 研究開発の内容

研究課題 1:「重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証」

[1] 重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発

上記目標値を達成するために、超高速回転モーターに使用される高性能ボンド磁石を開発するためには、

- (1)ボンド磁石に使われる磁石粉末の性能向上
- (2)高 Br、高保磁力、高体積抵抗率を有するボンド磁石のための高充填コンパウンド(樹脂と磁石粉末の混合物)の開発・試作
- (3)磁石粉末を破壊せずにロータコア内に成形する形状自由度の高い低圧一体成形技術の向上の課題解決が必要である。

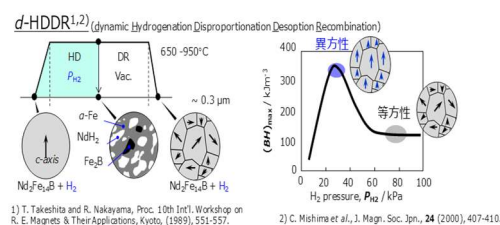


図 6. d-HDDR プロセスの概念図

(1) 性能磁石粉末の開発には、微細結晶を得ることが出来る d-HDDR プロセス技術(図 6)の最適化を行い重希土類フリーネオジウム系異方性磁石粉末の高 Br 化を狙う。特に Br 低下の原因の一つである結晶方位の異なる 2 次粒子(凝集)の形成抑制や保磁力低下の原因である逆磁区発生箇所となる磁石粉末表面の性状改善(結晶粒を Nd リッチ相で被覆や表面クラック等の抑制)を行う(図 7)。そのため磁石原料組成、その後の熱処理および水素粉砕技術を見直すことを行い、高 Br かつ高保磁力を有する磁石粉末を開発する。

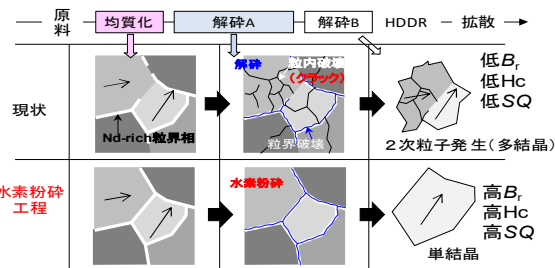


図 7. 高性能磁粉の概念

(2) 重希土類フリーネオジウム系異方性ボンド磁石は、樹脂と(1)で得られた磁石粉末の高充填化を目的に市販の SmFeN 粉末と混合させて高充填コンパウンドを検討する。出来たコンパウンドの磁気特性の最終値は、 $10\text{m}\Omega\text{cm}$ 以上の高体積(電気)抵抗率および 8.5G 以上の Br と 180e 以上の保磁力を達成する。

(3) (2)で出来た高充填コンパウンドの磁石粉末を、成形時の圧力で破壊せずに(磁石粉末が破壊することで破断面からの酸化が起こるなどの問題が起こる)磁場中で、低圧力でロータコアに直接成形するための技術を構築する(図 8)。

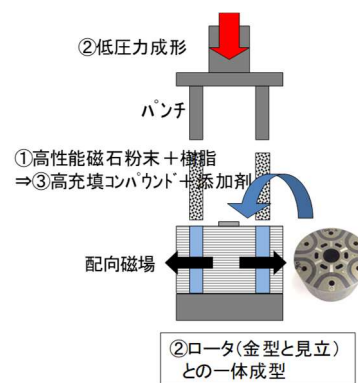


図 8. 一体成形の概念

[2]超高速回転モーターシステムによる実証

小型軽量の車軸駆動用超高速モーターシステムを開発するには、上記で得られたロータ・コアを使用して、

- (4) 超高速モーターシステムの設計・評価および減速機システムの設計・評価さらに高強度ギア・シャフト鋼の開発
- (5) モーターシステムの周辺技術として、駆動モーターを構成するステータ材料である軟磁性圧粉体の開発、ロータ・コア材料に使用される薄板電磁鋼板の部分改質技術の開発を行う。
- (4) 超高速モーターシステムおよび減速機システムの基本設計および試作実証するために、超高速モーターシステムおよび減速機システムの磁場解析シミュレーションおよびギアシミュレーションを実行して、基本設計を行う。その後、設計に基づいて、モーター・ギアの確認試作品を作製して各種の特性評価を行い、シミュレーションによる設計と実際の試作品との相違点を明らかにして、磁石ならびにシステム実用化の為の課題抽出を行う。
- (5) 超高速回転モーター駆動システムによる実証に必要な周辺技術として、ロータ・コアの一

部を部分改質化することで磁気回路を、さらにステータの鉄損を低減し高効率化するため、軟磁性圧粉体の素材開発を行い、高効率なモーターを達成する。

2.2.2 全体スケジュールと予算推移

表3. 全体スケジュールと予算推移

事業項目	2020 度				2021 年度				総額
	第1 四半 期	第2 四半 期	第3 四半 期	第4 四半 期	第1 四半 期	第2 四半 期	第3 四半 期	第4 四半 期	
[1] 重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発 [2] 超高速回転モーター駆動システムによる実証									
予算推移 (百万円)			100		338				438

2.3 研究開発の実施体制

実施体制を図 9 に示す。研究開発責任者は、産業技術総合研究所、磁性粉末冶金研究センター、尾崎センター長の下、愛知製鋼株は研究課題1.「重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証」(テーマ責任者: 度會 亜起) に取組んだ。

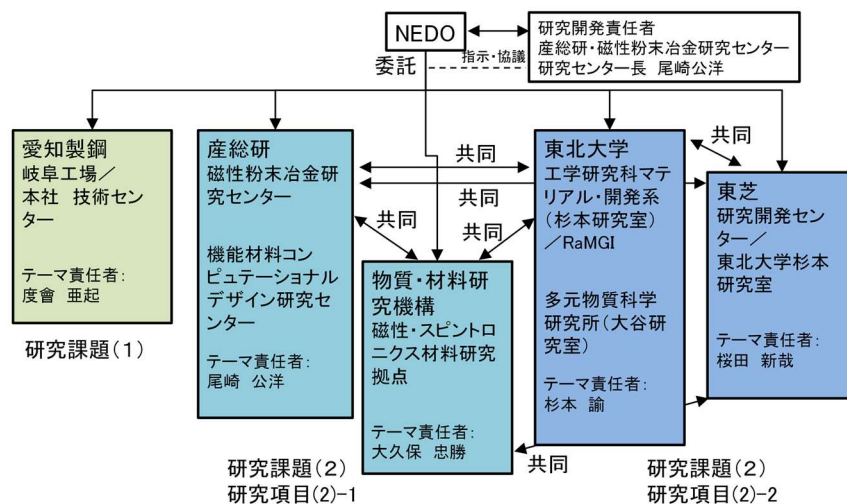


図9. 実施体制

2.4 研究開発の運営管理

2.4.1 (社内)研究開発の進捗状況について

愛知製鋼(株)社内で、1回/月の業務報告会、および開発報告会を開催、各テーマに関して現状の把握と今後の進め方に関して、上位の役職も含めてディスカッションを行い、実施計画に反映している。

2.4.2 (社外)技術推進委員会による研究開発の進捗状況について

難易度の高い課題に取り組んでいることから、1回/年以上の頻度で外部有識者の意見を聞く機会として、技術推進委員会を実施し、その結果を翌年の実施計画へ反映している。

2.5 研究開発成果の実用化に向けたマネジメント

本事業による成果を実用化に繋げるため、以下のステップで検討を行う。

ステップ1：超高速回転モーターシステムを実証して新コンセプト（超高速×高減速の超高速回転モーターシステム）の確認と同時に、実用化に向けた課題を抽出し省資源化の可能性を明らかにする。

ステップ2：材料技術、システム技術やモーター・ギヤ及び周辺技術など、積極的にボンド磁石の製造装置やモーター関係などの特許出願を行い、各要素技術の材料、プロセス、加工条件等知的財産の権利化、さらにモーター・ギヤ設計のノウハウ化を進める。

ステップ3：本事業の成果の一部をニュースリリース、専門雑誌(自動車技術、車載テクノロジー等)、展示会を通して発表することで、新コンセプトへの社会の関心、最終的には車両メーカーの関心を呼びこみ、共同開発へ繋げる戦略を行う。

ステップ 4: その技術をベースに重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システムの耐久性評価、および車載搭載性を検討して、車両メーカーと共同で成果の実用化・事業化に向けて進める。

3. 研究開発成果について(愛知製鋼株式会社 テーマA3)

3.1 成果概要

(1) 本事業で駆動システム用磁石として、Br 値で 8.6kG、保磁力値で 15.6kOe、体積抵抗率 ρV で $10\text{m}\Omega\text{cm}$ の Dy フリーNd 系異方性ボンド磁石が得られた。

上記磁石を用いて、超高速回転モーター×高減速ギヤに基づいて超高速回転モーター駆動システムを試作して、長時間駆動試験を行った結果、

(2) 最高出力 50kW、最高回転数 34,000rpm、最大効率 93%、最大トルク 1850Nm(減速比 21.8) が得られ、小型軽量の車軸駆動用超高速回転モーター、ならびにモーターから車軸に実走行回転数を得る小型軽量駆動システムの設計・試作に成功した。さらに、上記システムによって素材(レアアース、レアメタル等)の高い使用効率の可能性も得られた(図 10)。

今後、本事業による技術を基に、さらに小型・軽量化、省資源化を実現し高出力化、高効率化に向けた取組や社会実装化に向けた取組を行っていく。

使用材料の大幅な省資源化を確認できた

同出力を出すのに使用する素材量 (相対値)			
	主構成材料	一般的電動アクスル	開発品
モータ部	電磁鋼板	100	25
	銅	100	30
	レアアース磁石	100	30 (Dyフリー)
減速部	ギヤ・シャフト (<small>Fe/Ni/Al/樹脂</small>)	100	100

減速比 1 当たりの使用する素材量 (相対値)			
	主構成材料	一般的電動アクスル	開発品
減速部	ギヤ・シャフト (<small>Fe/Ni/Al/樹脂</small>)	100	50

図 10. 今回の高速モーター×高減速ギヤによる省資源化

本事業で生み出された、研究発表・講演、文献、特許等の成果実績を表 4 に示す。

表 4. 成果実績(テーマ A3)

	2020 年度	2021 年度	2022 年度	総計
研究発表・講演	3	2	2	7
論文	0	1		1
特許等	0	4		4
成果普及の努力(プレス発表等)	2	4		6

3.2 研究開発項目ごとの成果

研究課題1:「重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証」。

[1] 重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発

(以下駆動システム用磁石)

(1) ボンド磁石に使われる磁石粉末の性能向上

図 11 は、(異方性)焼結磁石と d-HDDR 異方性磁石粉末の主相である $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ の c 軸(001)の方位分散を示した図である。焼結磁石は異方性が 80% 以上と高い。しかし、d-HDDR 法による異方性磁石粉末で

は、70% 程度と低い。そのため、 J_r (あるいは B_r)の値も焼結磁石と比較すると低い。この理由は、焼結磁石の作製方法と d-HDDR 粉末の作製方法の違いから来る。

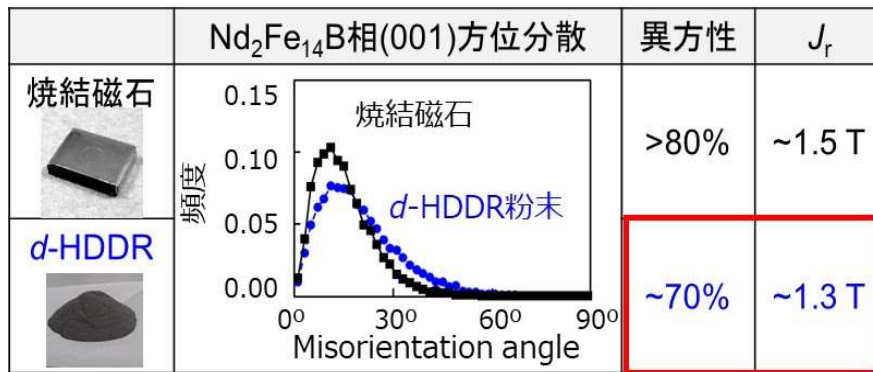


図 11. 焼結磁石と d-HDDR 磁粉の C 軸方位分散性と異方性の比較

焼結磁石の作製方法は、インゴットを室温で

水素粉砕した後に、ジェットミル等で数 μm の単結晶粉末を作製後、磁場中で磁石粉末を配向・成形させ、その後焼結・熱処理を施す方法が一般的である。単結晶の微粉末を磁場中で配向性させるため、高い異方性が得られると考えられる。

一方、d-HDDR 粉末は、インゴットを均質化処理後、室温で水素粉砕して 100 μm 程度の粉末を作製後に、高温で水素の不均化反応および脱水素処理による再結合反応を利用して異方

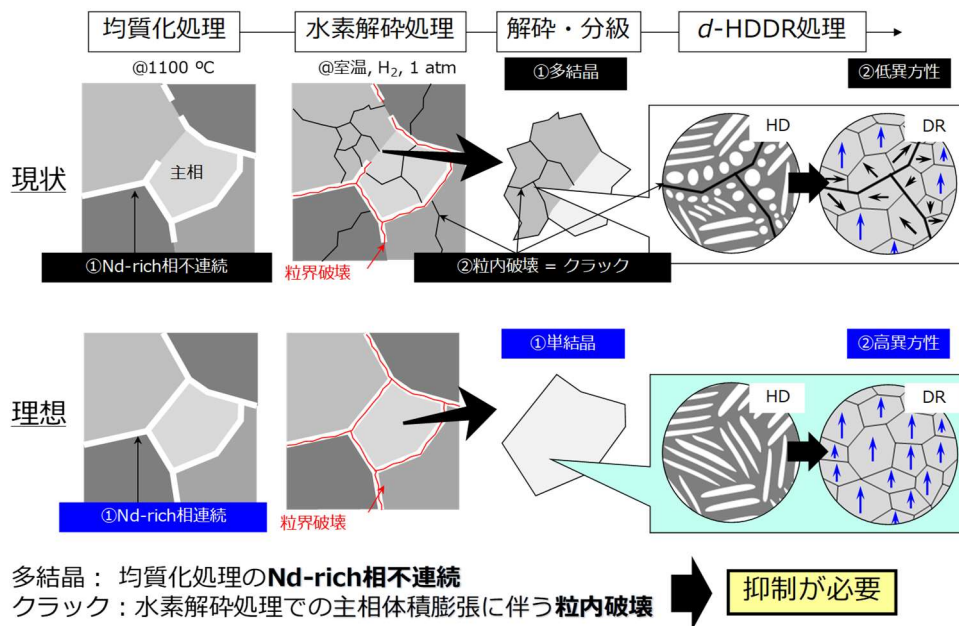


図 12. 現状の水素解砕による粒内破壊と粒界破壊による 2 次粒子化のイメージと理想的な水素解砕イメージ

性磁石粉末を作製する。そのため、水素粉碎時の結晶粒内部および粒界にクラックが発生し粒内・粒界破壊による多結晶化起こる(図 12 現状)。この多結晶化が、異方性が低い原因と考えられるため、焼結磁石同様に $100\ \mu\text{m}$ 程度で単結晶化(図 12 理想)することで高い Br が得られると思われる(微粉末では高い保磁力が得られない)。そこでクラック等を抑制するため、本事業では水素解砕条件を検討した。

実験方法は、重希土類フリーの Nd-Fe-B 系磁石原料(インゴットやストリップキャスト)をメーカーから購入して、当社保有の熱処理炉や外注による均質化处理(1140°C 、アルゴン雰囲気)を施し、その後に当社保有の水素処理炉を使用して、各温度その他の条件で水素解砕処理を施し粒内・粒界破壊の程度を HR-SEM(走査型電子顕微鏡)を用いて調べた。さらに、その磁石粉末を解砕・分級を行い Nd-Fe-B 原料粉末($212\ \mu\text{m}$ 以下)を得た後、同装置で d-HDDR(条件: $\sim 800^\circ\text{C}$ 、水素圧力 30kPa) 処理を行い、得られた磁石粉末の磁気特性を VSM(振動試料型磁力計)で測定した。

均質処理後のインゴットの水素解砕処理を検討した結果、図 13 に示すように水素解砕温度が上がるに従って、粒内破壊密度(クラック量)は、HR-SEM および右上図で見られるように減少することが分かった。特に、 500°C で実施することで粒内破壊密度はほぼゼロに抑制できた(粒界破

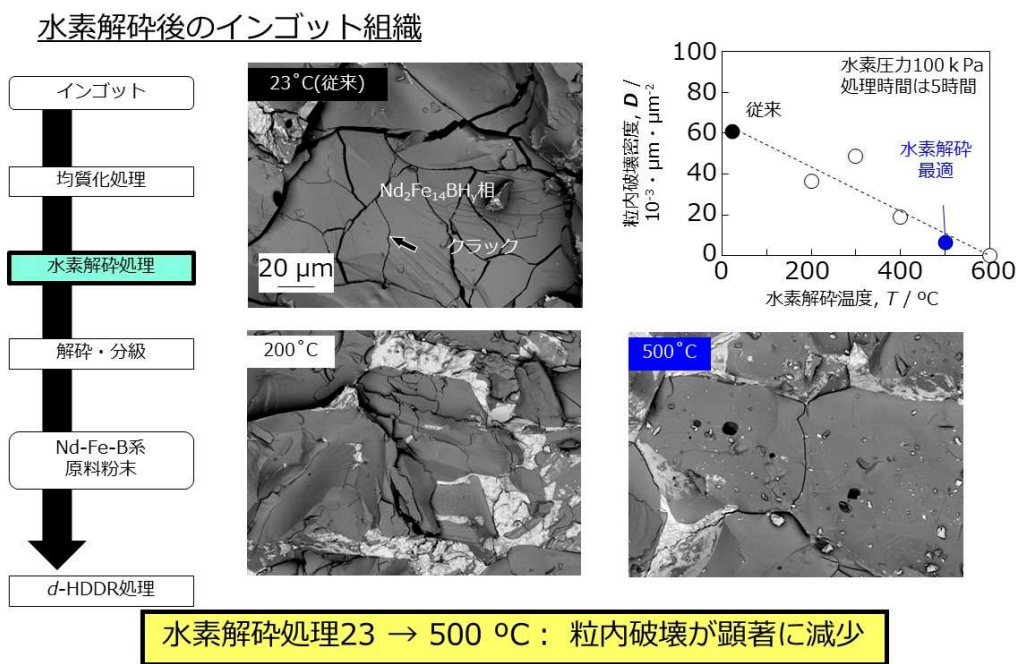


図 13.粒内破壊(クラック量)の水素解砕温度の影響

壊は起こる)。

さらに、上記で得られた試料を次工程である解砕・分級後の磁石粉末の組織を調べた結果を図 14 に示す。室温(23°C)では、磁石粉末の内部に多数のクラックが見られるが、 500°C では見られない。これは、単結晶化(すなわち結晶粒の取出し)出来たことを示している。

次に、上記の各温度で水素解砕した原料粉末に d-HDDR 処理を施した後の磁気特性および水素解砕温度 500°C で行った磁石粉末の減磁曲線(右上図)を図 15 に示す。磁気特性は、水素解砕温度を室温から 500°C 近傍に増加させることで、従来(室温)に比べて異方化度(DOT 磁粉内の各結晶粒子が磁氣的に同じ向き(容易磁化方向)に向いている度合いを示す量 $=J_r$ (磁化

容易軸方向— J_r (磁化困難軸方向) $\} / J_r$ (磁化容易軸方向)、残留磁束密度 J_r (Br)、保磁力の値が向上することが分かった。

以上の結果、高温水素解砕処理を施すことで粒内破壊が抑制され、単結晶化率の向上によって、従来の d-HDDR 異方性磁石粉末に比べて高い磁気特性が得られることが分かった。

さらに、上記の処理工程を取り入れた量産型水素処理炉で試作した結果、同様に磁気特性の向上が確認でき、(2)、(3)に向けてロータとの一体成形に必要な磁石粉末の試作を行った。

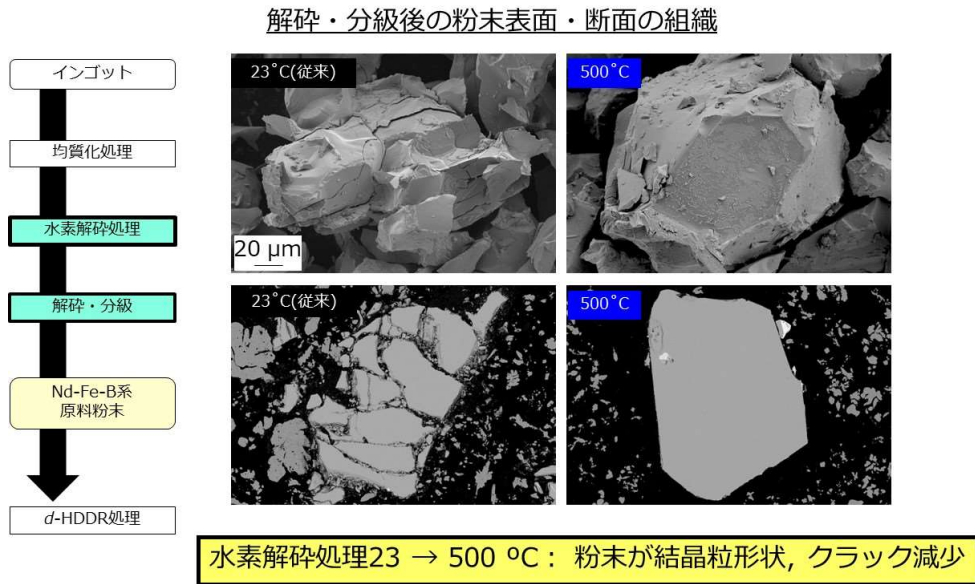


図 14. 室温および 500°C で水素解砕処理後の磁石粉末の表面・断面の組織観察結果

(2)高 Br、高保磁力、高体積抵抗率を有するボンド磁石のための高充填コンパウンド(樹脂と磁石粉末の混合物)の開発・試作

成形自由度が高く、ロータとの一体成形が可能な高速モーターに使用する駆動システム用磁石の作製に重要なことは、後ほど(3)で述べるが、磁石粉末を破壊しないように低圧力でかつ磁気

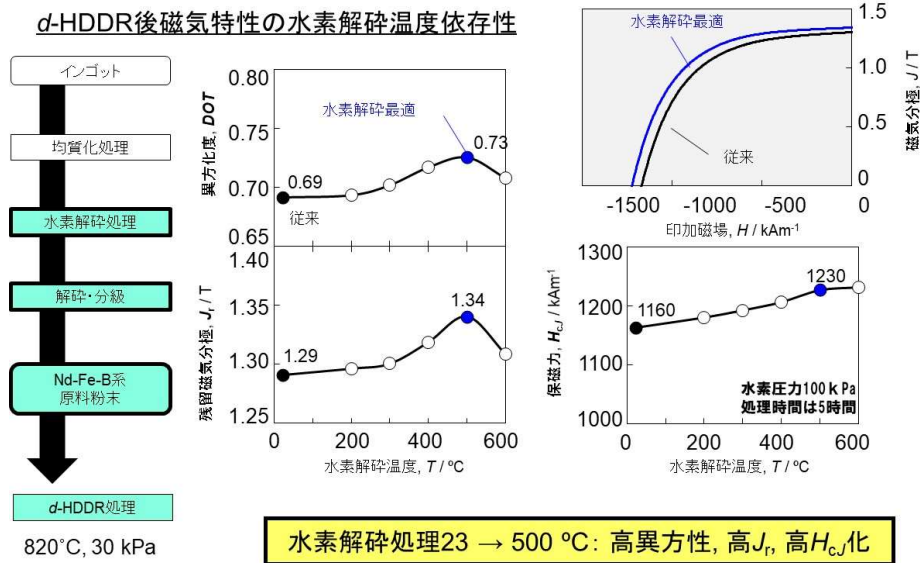


図 15 d-HDDR 処理後の磁気特性におよぼす水素解砕温度の影響

特性を向上させるために高密度の成形体を得ることである。そのためにコンパウンドに求められる技術は、磁石粉末の高充填化である。すなわち、(1)で得られた磁石粉末(平均粒径 $\sim 100 \mu\text{m}$)を使用して、樹脂と混合して高充填コンパウンドを作製する技術である。

高充填の方法として、粒子径の大きな粒子と小さい粒子を混合充填することで、大きな粒子間の隙間に小さい粒子が入りこみ空間率が減少し密に充填されることが知られている。そこで、高い磁気特性を有する駆動システム用磁石を作製するため、(1)で得られた磁石粉末と SmFeN 微粉末(平均粒径 $\sim 3 \mu\text{m}$)を使用して、両者を最適混合して高充填なコンパウンド作製の検討を行った。

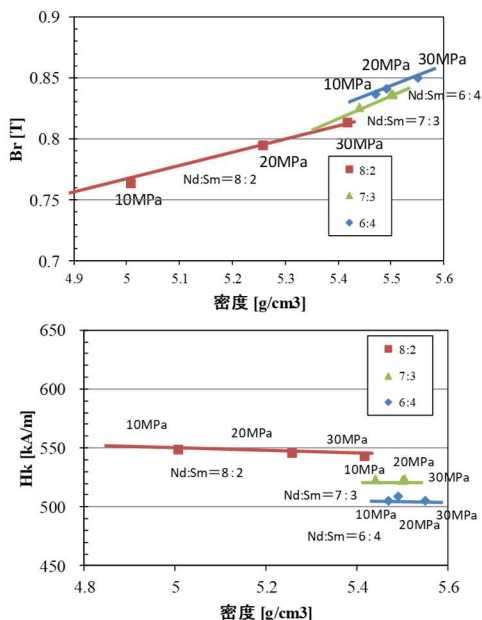
(1)で得られた磁石粉末と SmFeN 微粉末を購入(保磁力値 $\sim 12\text{kOe}(955\text{kA/m})$ 程度)し、Nd:Sm 比を 6:4、7:3、8:2 の割合でミキサーを使用して混合した後、樹脂を一定量混合してコンパウンドを作製した。

図 16(左上および下図)に混合量を検討した結果を示した。SmFeN の混合割合が多いほど高密度で高 Br になるが、一方で磁石の角形性(Hk: 耐久性や(BH) $_{\text{max}}$ (最大エネルギー積)の指標)は NdFeB の比率が多い方が有利である。そこで Nd:Sm 比としては、(3)の低圧力での成形を考慮して 7:3 に選定した。

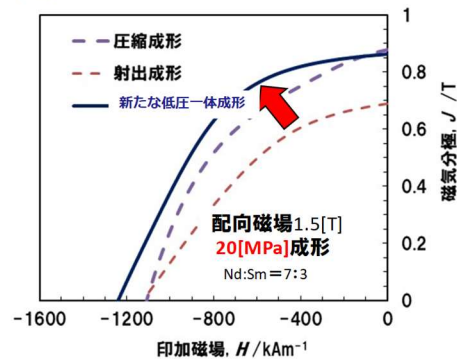
このコンパウンドを基に、さらに樹脂種類、配向磁場の大きさや印加タイミングを最適化した結果、図 16(右上図)の代表的な低圧成形による減磁曲線が示すように、Br 値で 8.6kG、保磁力値で 15.6kOe(1231kA/m)、体積抵抗率で $10\text{m}\Omega\text{cm}$ を有する駆動システム用磁石に成功した。

ただ、保磁力値は SmFeN 微粉末の保磁力の影響で目標値に比べるとまだ低く、今後さらに高保磁力 SmFeN 微粉末の使用や粒度分布の最適化などを検討して 18kOe を目指す。

(1)SmFeN微粉末の混合量の検討



(2)代表的な低圧成形による減磁曲線



- Br: 0.86T (8.6kG) Hk: 560kA/m (7.0kOe)
- iHc: 1241kA/m (15.6kOe)
- (BH) $_{\text{max}}$: 137.6kJ/m 3 (17.3MGOe)

SmFeN量を調整することで
低い成形圧力で密度を上げることが
可能 Nd:Sm = 7 : 3を選定

図 16. 高充填コンパウンドの検討結果

(3)磁石粉末を破壊せずにロータコア内に成形する形状自由度の高い低圧一体成形技術の向上
 一般に(異方性)ボンド磁石の成形は、圧縮成形法と射出成形法がある(図 17)。圧縮成形法は、熱硬化性の樹脂(エポキシ系)を用いて、高い圧力(200MPa 以上)で成形するため相対密度は高くなるため、高い磁力(Br)を得ることが可能である。ただし、ロータ等の部品との一体成形することは難しいためコストが高くなり、しかも磁石粉末の破壊にともなって角形性の劣化や破断面からの酸化が起りやすくなることから(図 17 右上)、そのまま駆動システム用磁石の成形に適用することは難しい。

一方、射出成形法は熱可塑性樹脂(ナイロン等)を用いる。圧縮成形に比べて、樹脂量が多いため(磁石粉末の充填量が低い)低い圧力で成形が可能であるが、磁力は低くなる。ただし、部品との一体成形は可能であるため低コストで成形できるが(図 17 右下)、磁力を向上させることが難しく、そのまま駆動システム用磁石に適用することは難しい。

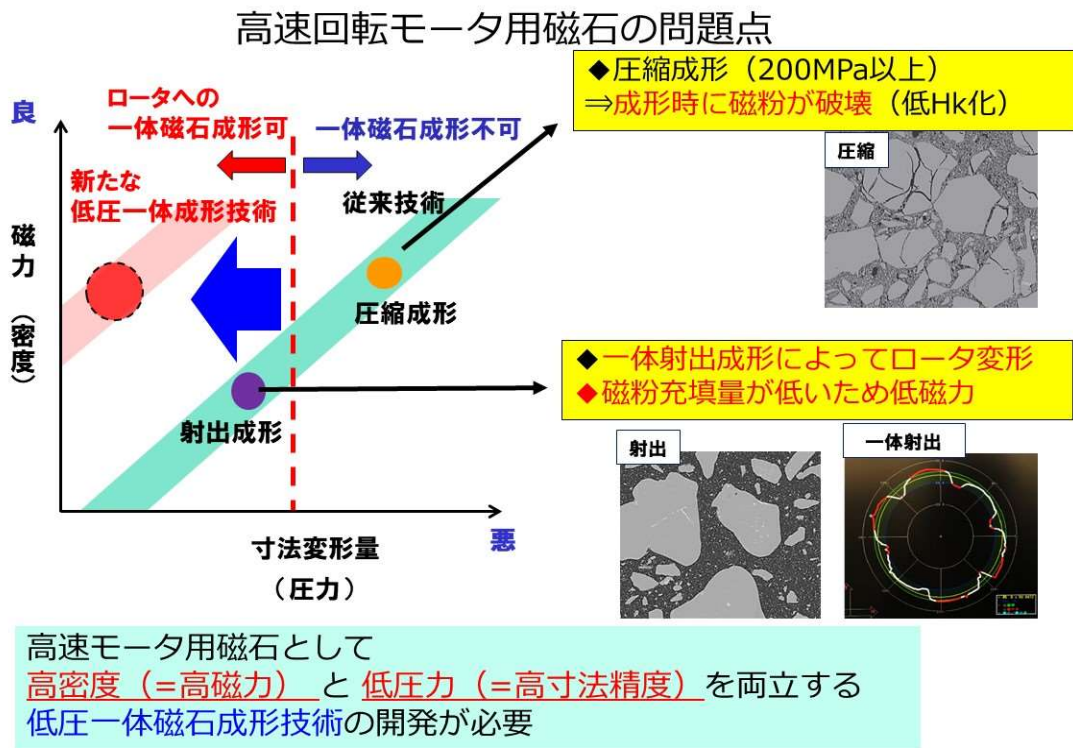


図 17. ロータと一体成形する上での問題点

そこで、当社は圧縮成形法を見直して、今回の駆動システム用磁石に適用するため、高密度(高磁力)と低圧力(低いロータ変形度)を両立する低圧一体成形技術の開発を行った。

その結果、ロータとの一体低圧成形は、(2)で得られた高充填コンパウンドを、電磁鋼板で作製されたロータを金型に見立てて、低圧力で成形することで磁石粉末の成形時の割れを防止でき、かつ射出成形に比べて密度を高くすることが可能であること、さらに高い磁気特性が得られることが分かった。

さらに成形自由度を高めた一体低压成形法を開発するために、一体成形装置を導入(図 18 に一体成形技術の概念を示す)して取組んだ。

最初に単純形状用金型等を用いて低压成形、その後複雑形状用の磁石成形用プレス金型等を用いて成形テストを行った。その結果、図 19(①)に示すように金型となる電磁鋼板の種類として高張力電磁鋼板を使用することで、15MPa の低い成形圧力で一体成形出来ることが分かった。さらに、その時のボンド磁石の縦方向の密度分布は、一体成形可能な射出成形による成形体と比べて均一であることも分かった(図 19②)。さらに、成形前後にロータの変形を真円度計で測定した結果、ロータ変形も起こっていないことが分かった(右上図)。以上の結果を基に、複雑金型を使用して一体成形磁石ロータを完成させた(右下図の写真は単純形状用のロータを示している)。さらに、そのボンド磁石の断面を観察した結果、成形時に磁粉の破壊(割れ)が起こっていないことが確認できた。以上、(1)、(2)、(3)の取組の結果、重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石が得られた。

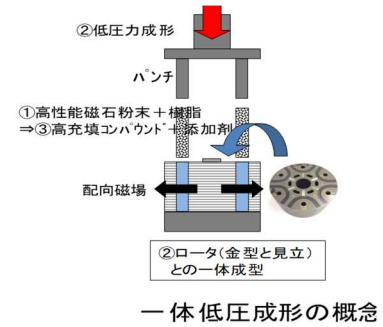


図 18. 一体低压成形の概念

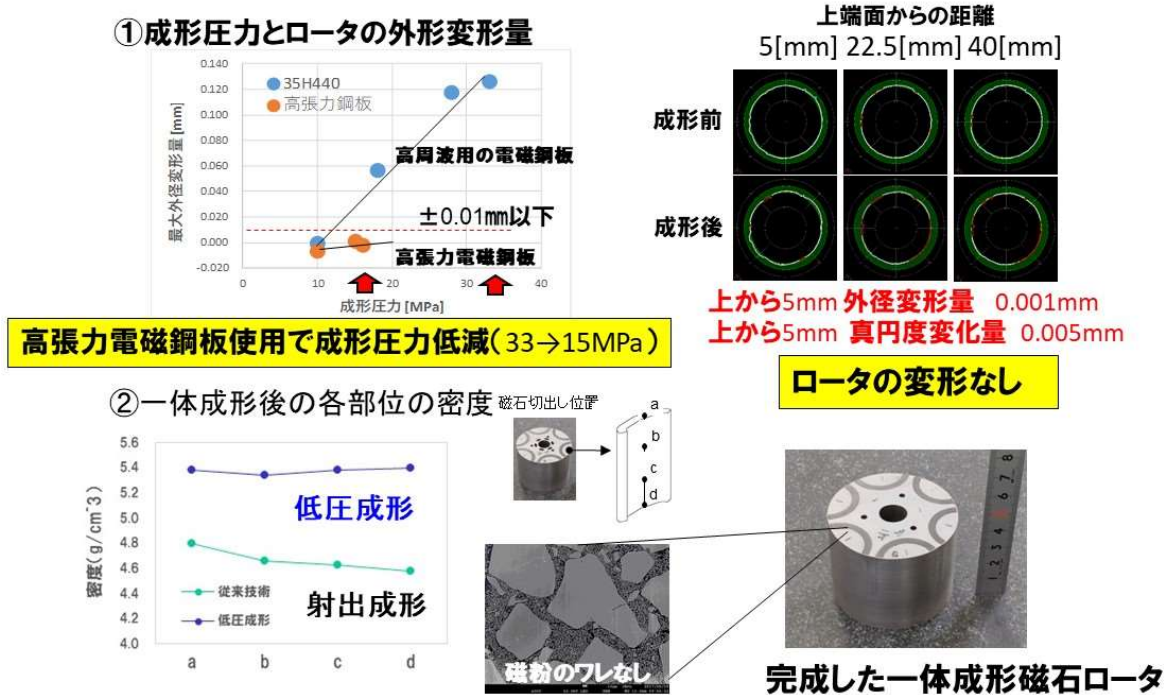


図 19. 開発したロータとの低压一体成形技術

[2]超高速回転モーターシステムによる実証

小型・軽量の車軸駆動用超高速モーターシステムを開発するにあたって、高速回転化による、鉄損、磁石渦損、銅損、すべり摩擦等による温度上昇、さらに遠心力の増大や振動や音(ノイズ)の低減、高減速化による減速比の増大、温度上昇や振動・音(ノイズ)などの課題解決が必要である(図 20)。

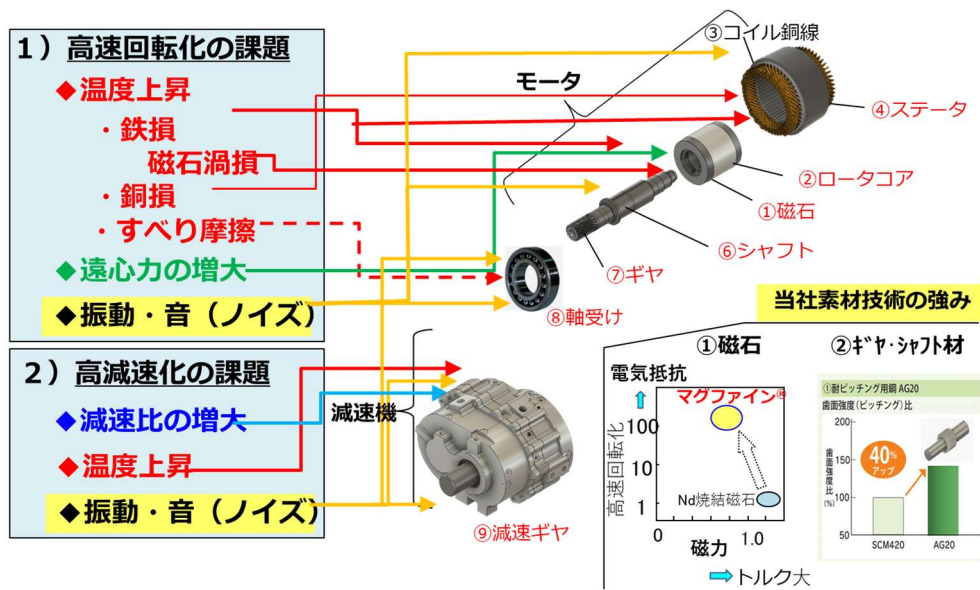


図 20. 小型・軽量の車軸駆動用超高速モーターシステムの課題

そのために、[1]で得られた駆動システム用磁石を用いて、超高速回転モーター駆動システムを実証するため、

(4)超高速モーターシステムの設計・評価および減速機システムの設計・評価さらに高強度ギヤ・シャフト鋼の開発

(5)モーターシステムの周辺技術として、駆動モーターを構成するステータ材料である軟磁性圧粉体の開発、ロータコア材料に使用される薄板電磁鋼板の部分改質技術の開発が必要である。

(4)超高速モーターシステムの設計・評価および減速機システムの設計・評価さらに高強度ギヤ・シャフト鋼の開発

モーターおよびギヤの解析のために、最初に磁場解析シミュレーションを用いてモーターの磁場解析を行った。さらに、ギヤシミュレーション(歯車設計支援ソフト)を導入して、ギヤ形状の解析やギヤの最適設計を行い、それをベースにモーターおよびギヤの試作を行った。さらに、上記モーターおよびギヤの性能評価のため、エンジンベンチのダイナモおよびモーターに接続できるギヤ性能評価装置(図 21 に装置の概念を示す)を導入して、高減速ギヤの性能を単体で評価できるようにした。



図 21. ギヤ性能評価装置概念

試作に使用するギヤの高強度化には、歯面強度（ピッチング）が要求される歯車や高速回転など歯面温度が上昇しやすい歯車に使用される耐ピッチング高強度歯車用鋼 AG20 に浸炭および S.P.（ショットピーニング）をほどこした歯車用鋼を使用した（図 22）。

さらに、上記のモーター、ギヤが一体化したモーターシステムを試作し（図 23）、外注メーカーで評価した（図 24）。

その結果、高速回転化×高減速化によって、体積・重量で 40% 小型化に成功した。

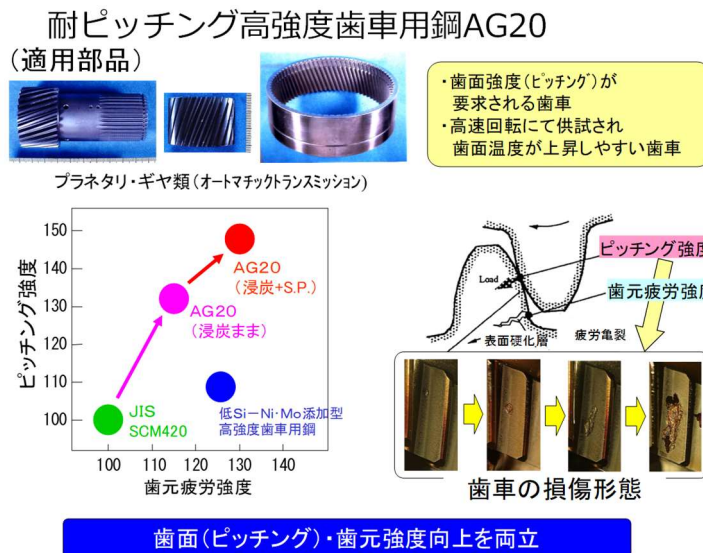


図 22. 高強度ギヤ鋼と表面処理技術

一般の同クラス電動アクスルとの比較イメージ



図 23. 本事業で試作したモーターシステム設計

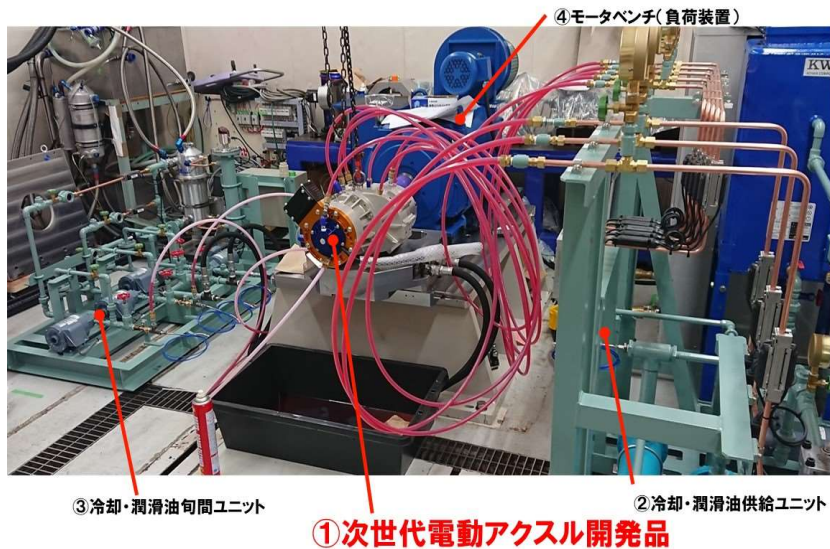


図 24. 試作したモーターシステムの評価

世界初、34,000rpm×高減速(21.8)で実用車軸トルクを実証

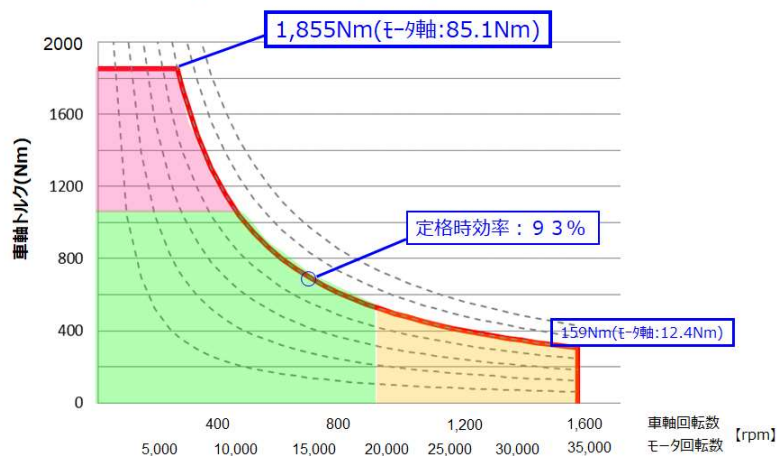


図 25. 試作したモーターシステムの評価結果(回転速度—トルク曲線 N-T 曲線)

図 25 にモーターシステムの実証試験で得られた特性結果を横軸モーター回転数、縦軸車軸トルク及び効率の図 (N-T 曲線) として示した。その結果 34,000rpm の高速回転モーターシステムの開発に成功し、最大効率は 93%、最大トルクは (減速比 21.8) 1850Nm の数値が得られた。

(5) モーターシステムの周辺技術として、駆動モーターを構成するステータ材料である軟磁性圧粉体の開発、ロータコア材料に使用される薄板電磁鋼板の部分改質技術の開発

ロータコア材料に使用される薄板電磁鋼板の部分改質技術で磁気回路が改善し磁束の漏れ防止になりモーターの小型化、高効率化に寄与する。そのため、改質向け電磁鋼板の打抜き金型等や電磁鋼板修正金型等を導入して、部分改質の検討を行った(図 26)。

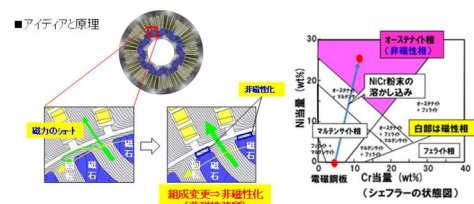


図 26. ロータコア部分改質の原理

その結果、通常の電磁鋼板の使用に比べて、改質した電磁鋼板を使用することで磁力を 36% アップすることに成功した。

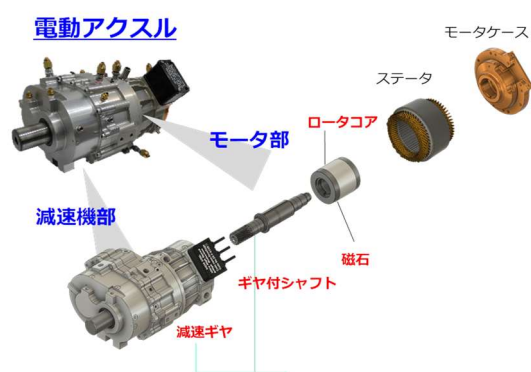
今後さらに技術向上によって社会実装化を目指していく。

4. 成果の実用化に向けた取組及び見通しについて(愛知製鋼株式会社 テーマA3)

4.1 成果の実用化に向けた取組及び見通しについて

(1) 本事業の具体的な利用の形態・様式

事業で得られた車軸駆動用超高速回転モーターシステムの実用化として具体的には、本磁石を用いたモーター部、減速機部(ギヤ)、インバータ部が一体となった、電動アクスル(図 27)さらに各部品を想定している。



(2) 市場・ユーザの要求

現在、電動アクスル市場(2040年市場は13.5兆円(9000万台)と予想)は、技術開発が活発に行われており、脱炭素化に向けて乗用車のEV化が急速に進展している。

しかしながら、上市されている電動アクスルは、損失が大きい、出力密度が小さい、体格が大きい等で航続距離が短い、モーターシステムの平均効率も低い、さらに重希土類元素や、銅、電磁鋼板など資源に向けたサプライチェーンのリスクも大きい問題点があり、省資源化を考慮した高効率な次世代電動アクスルが求められている。

今回の事業で得られた新コンセプトの成果一部をニュースリリースにして発表したところ、小型、軽量、省資源型、高効率電動アクスルの製品に大きな反響があり、本技術は高効率および省資源化に答える基本的な技術と思われる。

(3) 競合他社に対する優位性

重希土類フリーの駆動システム用磁石を用いて超高速回転モーター×高減速化による小型・軽量、高効率による重希土類元素や、銅、電磁鋼板などの省資源化が可能である点。ボンド磁石のため、リサイクル性にも優れている点。

(4) 実用化に向けた今後の課題と方針

本事業による技術を実用化して行く上での技術課題としては、各要素技術やモーターシステムの耐久性評価、車両搭載性評価が残っている。さらにインバータとの調整もある。これらを、早急に解決して、事業化を進める必要がある。

(5) 実用化までのシナリオ

本技術をベースに、NEDOグリーンイノベーション(GI)基金助成事業「次世代蓄電池・次世代モーターの開発」に公募した結果、採択された。そこで、本事業で得られた技術をさらに高性能化および課題を解決するため、EV技術を有するエンジニアリング会社や車両メーカー等とモーターシステムの車両搭載性や耐久性評価も含めて共同開発を行ってシステム構築を行い、基本技術や実機による評価試験を進めることで、社会実装化に向け事業化を進める。

添付資料(愛知製鋼株式会社 テーマA3)

●特許論文等リスト

【特許】リスト

番号	出願者	出願番号	国内外 国 PCT	出願日	状態	名 称	発明者
1	愛知製鋼 株式会社	2021-208062	国内	2021/12/22	出願	圧縮ボンド磁石の製造 装置およびその製造方 法	藤巻 匡 柘植 勇輝
2	愛知製鋼 株式会社	2021-201323	国内	2021/12/22	出願	磁性部材の製造方法	濱田 典彦
3	愛知製鋼 株式会社	2021-156023	国内	2021/9/24	出願	高強度鋼板、コアシー ト及びロータコア	濱田 典彦
4	愛知製鋼 株式会社	PCT/JP2021/36012	国内	2021/9/29	出願	回転子および電動機	柘植 勇輝 藤巻 匡

(Patent Cooperation Treaty: 特許協力条約)

【論文】リスト

番号	発表者	所属	タイトル	発表誌名、ページ番号	査 読	発表年月
1	Takashi Horikawa, Masao Yamazaki, M asashi Matsuura and Satoshi Sugimoto	東北 大学	Recent Progress for the Dev elopment of High Performanc e Bonded Magnets using Rar e Earth - Fe Compounds	Science and Technol ogy of Advances Ma terial 729	有	2021年度

【外部発表】リスト

(a) 学会発表・講演

番号	発表者	所属	タイトル	会議名	発表年月
1	愛知製鋼 株式会社	EVモーター開発G	超高速モーターシステムの設 計・評価および減速機システ ムの 設計・評価	日本金属学会 若手研究グルー プ 第2回次世代高性能磁性材料研究会	2021.2
2	愛知製鋼 株式会社	EVモーター開発G	Nd-Fe-B系d-HDDR粉末 のDR処理過程前後における組 織・結晶方位関係の 比較観察	日本金属学会2021年春季(第168回) 講演大会	2021.3

3	愛知製鋼株式会社	EVモーター開発G	高温水素解砕処理による高異方性Nd-Fe-B系d-HDDR粉末の開発	日本金属学会2021年春季(第168回)講演大会	2021.3
4	愛知製鋼株式会社	EVモーター開発G	High anisotropic Nd-Fe-B powders prepared by d-HDDR using high temperature hydrogen decrepitation	The 26th International Workshop on Rare-Earth and Future Permanent Magnets and their Applications	2021.6
5	愛知製鋼株式会社	EVモーター開発G	HDDR異方性ボンド磁石と電動アクスルの開発	NIMS磁石パートナーシップ研究会 第7回磁石研究発表	2022.1
6	愛知製鋼株式会社	EVモーター開発G	省資源型 EV 用電動アクスルの開発 ~素材技術をベースに高回転・高減速による電動化社会への貢献	第42回モーターシンポジウム講演	2022.7
7	愛知製鋼株式会社	EVモーター開発G	Nd系異方性ボンド磁石を使用した電動アクスルの開発	令和4年電気学会 基礎・材料・共通部門大会	2022.9.13

(b)新聞・雑誌等への掲載

番号	所属	タイトル	掲載誌名	発表年月
1	愛知製鋼株式会社	超高速モーターシステムの設計・評価および減速機システムの設計・評価	第13回オートモーティブワールド(展示会)	2021.1
2	愛知製鋼株式会社	Dyフリー高性能Nd-Fe-B系異方性ボンド磁石の開発と電動アクスル応用への展望	雑誌 自動車技術	2021.10
3	愛知製鋼株式会社	磁石粉末の性能向上	ニュースリリース	2021.2
4	愛知製鋼株式会社	素材開発が切り拓く省資源・小型軽量次世代電動アクスル	雑誌 特殊鋼	2022.1
5	愛知製鋼株式会社	EV向け電動アクスルの開発と小型軽量化	雑誌 車載テクノロジー	2022.2
6	愛知製鋼株式会社	世界初、34,000回転・高減速な電動アクスルの実証に成功	ニュースリリース	2022.2

【2】 研究開発項目①-1

重希土類を使用しない小型超高速回転モーター駆動システム用磁石の開発と動作実証 株式会社 IHI(テーマB1)

1. 事業の位置付け・必要性について(株式会社 IHI テーマ B1)

1.1 事業の背景・目的・位置づけ

新型コロナウイルス感染症の世界的な流行によって、サプライチェーンの寸断リスクが顕在化し、サプライチェーンの強靱化に資する技術開発等が必要である。レアアース(希土類)等の部素材においても資源が偏在し生産拠点の集中度が高いことから、予期せぬ危機に際して重要物資の供給途絶リスクを解消するためには、生産の多元化や使用量削減が喫緊の課題となっている。その解決に向けてサプライチェーンの強靱化に資する技術開発等が求められている。

レアアースは、高性能磁石やモーター等の中核素材であり、家庭や産業用機器・機械向けなど様々な分野で使用されている上、自動車の電動化(HEV、EV、FCV)に伴い、モーター需要の拡大が予想されていることなどから、部素材の中でも特にサプライチェーンの強靱化が必要な分野である。本プロジェクトでは、サプライチェーンの強靱化の観点から、レアアースの使用を極力減らす、又は使用しない技術の開発等を行う。また、本プロジェクトでは、IHI がもつロールを介したプロセスを検討し、新たな薄型磁石の創製プロセスを目的とする。

このような観点での本プロジェクトに似た国内外の取り組み例は少なく、例えば、平成31年に近畿経済産業局から報告のあった、「究極の高均一性・高磁気特性・高生産性 Nd-Fe-B 焼結磁石の製造装置開発」が挙げられる。Nd 磁石系で厚みを 0.75mm まで薄くするなど磁石自由度を向上させ、また、重希土類の使用量を削減可能としている。

本プロジェクトは、重希土類を使用しないSm系を念頭に、今後のモーター高速化に向けさらなる磁石の薄型化目指し、また最終的に数量の製造に強みを持つと想定されるロールプロセスに切り口を求めた、新たな薄型磁石創製プロセス開発である。

2. 研究開発マネジメントについて(テーマ B1:株式会社 IHI)

2.1 事業の目標

2020年度:(中間目標)

- ① SmCo粉末による薄型磁石層の試作と課題抽出
- ② 積層磁石の試作と課題抽出
- ③ 複合構造磁石の組み込みモーターの選定、及び組み込み方案決定

2021 年度:(最終目標)

- ①粉末圧延機改良と薄型磁石層の異方化プロセスの構築
- ②複合構造磁石の試作実証
Br:0.85T(8.5kG)以上、保磁力:1.44MA/m(18kOe)以上、体積抵抗率(電気) $\rho < 10\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ 以上(ボンド磁石 $10\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ /焼結磁石 $0.14\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$ から、ジュール損比=1/71 以下)
- ③目標サンプルサイズ:最大 $\Phi 40\text{mm}$ の積層リング磁石(分割数は4分割以上)
- ④車両用モーターでの高速回転試験と課題抽出と明確化。

ただし、粉末圧延型の積層構造磁石はモーター搭載せず、加工成型と粉末圧延薄型磁石層の機械特性や磁石組織等が同等であることを示すことで、主に高速回転時の構造的な適合

性や想定外の損失などが生じないか、加工成型による薄型磁石層を積層したリング磁石を搭載し高速回転モーター試験を行い検証する。さらに粉末圧延型の積層構造磁石は考え得るすべての影響因子について感度評価を行い、薄型磁石層の限界性能を見極める。

●最終目標・中間目標および戦略的な設定の裏付け

中間目標の 2021Fy は3か月と短期間であるため全体の課題抽出に徹した。項目 2.1 内容で示す中で、最終目標(2022Fy)について主に述べる。

最終目標数値である $Br0.85$ および、 $1.44MA/m$ 、体積抵抗率(電気) $\rho > 10m\Omega \cdot cm$ 以上(ボンド磁石 $10m\Omega \cdot cm$ /焼結磁石 $0.14m\Omega \cdot cm$ から、ジュール損比=1/71 以下)は、電気的な抵抗および磁気的な性能メリットで最も性能の高い既存 Nd ボンド磁石(射出成型用・圧縮成形用を問わず)の最高性能と同様の数値となっている。Sm系では Nd 系とは磁気的な飽和磁束などが異なるため、そのままでは性能は得られないものの、開発が成功した場合はモーター設計で使用される磁気的な数値を変えることなく、使用が可能であり波及効果大きい。

本開発では項目 1 で述べた事業の位置づけ・必要性に基づき、また、開発成功時の波及効果の高さを維持するストレッチな目標として高い目標値として設定する。

2.2 研究開発の内容

Sm 系磁石粉を対象に、ロールを介したニアネットな薄型磁石層の形成と、配向・緻密化を成し遂げる。また、これら薄型磁石層と絶縁層を積層し、高磁気特性と高抵抗性をバランスよく持つ積層磁石を開発する。また、組付け性を良くするために、射出成型等によるロータへの組込みを併用した複合構造磁石とする。

これにより、圧延プロセス等を利用した Sm 系薄型磁石層と絶縁層による積層磁石と、射出成型等によるボンド磁石や樹脂で磁石を組込んだロータにより、超高速回転試験を実施し、課題抽出を行う。

[2020 年度]

①. 薄型磁石層形成方法

SmCo 磁石粉の粉末圧延による緻密化と異方化によって残留磁束密度(Br)を向上させる。また、粉末圧延による磁石の薄型化で、機械加工による磁気特性劣化を最小限に抑え、かつ薄型磁石層内の渦電流発生を抑える。

①-1. 粉末層の成型

株式会社 IHI が保有する粉末圧延機の主ロールやロールフィーダーは、現状、強磁性材で構成されている。磁界にさらされるロールフィーダー周辺の部材を部分的に非磁性材に置き換え、市販磁石粉末もしくは原料粉末からの作製により SmCo 磁石粉を用意し、粉末圧延機のロールフィーダー部分での粉末層作製厚みを実験から把握する(目標とする粉末層と粉末圧延機の回転数やギャップ等との関係を取得)。

①-2. 粉末層の異方化装置検討と粉末層異方化・緻密化

外部磁界による粉末層の異方化方法についてロールフィーダーを用いた試験で課題を抽出する。電磁場解析により求めた粉末層の異方化に必要な励磁条件を基に、異方化装置・治具の構成を検討する。①-1 から得られた粉末層を緻密化し磁気特性を測定し、目標に到達するための課題を抽出する。

なお、上記①-1と①-2で試作した粉末層は、株式会社IHI所有の磁気特性評価装置で計測可能な7mm角の試験片に加工する。2021年度に搭載するモーターに組込む磁石片サイズではないため、磁気特性評価後は廃棄する。また、条件出し検討に用いる非磁性のロールフィーダーも、ロールフィーダー形状や配置に対する課題を抽出したのち、2021年度①-2の粉末圧延機の改良時に最終仕様のものに取り替え廃棄する。廃棄にあたっては、産業廃棄物処理法等に基づいてマニフェストを添付し、廃却時には写真等の証拠を残して廃却する。

<目標①>SmCo粉末による薄型磁石層の試作と課題抽出

②. 積層プロセスの確立

絶縁層を介した積層構造とすることで磁石の体積率を向上させ高いBrを維持させつつ、磁石で発生する渦電流による発熱・損失を抑え、超高速回転モーターの実現に資する高抵抗磁石とする。

②-1. 接着剤や接合方法の検討と強度評価

接着剤の選定を行い、薄型磁石層への塗布・接合状態を強度試験などにより検討する。また接着以外の接合方法(熱間プレスなど)について要素試験により条件抽出を行う。

②-2. 市販磁石積層化と特性評価

粉末圧延機を用いた社内試作の粉末層の開発(①-1、①-2)と並行して積層プロセス方法の検討を進めるために、市販の薄型磁石を用い、積層プロセスの検討を行う。試作した積層磁石の電気・磁気特性を評価し、積層プロセスに対する課題を抽出する。

②-3. 積層磁石の特性評価機器試作と特性評価

高周波磁界での積層磁石の鉄損評価にむけた機器の仕様を検討する。さらに、検討した仕様に基づいて簡易な構成で鉄損計測を行い、取得した信号強度から計測時の課題を抽出する。

なお、上記②-1～②-3で用いる市販薄型磁石や社内試作薄型磁石による積層磁石試作品は、電気・磁気特性評価後に接着・接合状態を評価する強度試験(破壊試験)を行い廃棄する。廃棄にあたっては、産業廃棄物処理法等に基づいてマニフェストを添付し、廃却時には写真等の証拠を残して廃却する。

<目標②>積層磁石の試作と課題抽出

③. 高速回転モーターの試作

積層磁石のモーターロータへの組み込み方法、及び超高速回転試験による複合構造磁石の成立性を検証するために超高速モーターを試作する。

③-1. 組み込みモーター選択と組み込み方法検討

超高速回転試験による複合構造磁石の成立性を検証するために、過去に株式会社IHIで市販の焼結磁石(SmCo)を用いて試作・評価を行った超高速モーターを比較対象とし、積層磁石をモーターロータに組み込むための電磁場解析及び構造検討を行い、超高速モーターと複合構造磁石の形状を決定する。

また、積層磁石をロータへ組み込む際の候補である射出成型に関しては、ロータや磁石形状を基に射出成型条件の検討を進め、射出成型金型の概念設計を行う。

<目標③>複合構造磁石の組み込みモーターの選定、及び組み込み方案決定

[2021 年度]

①. 薄型磁石層形成方法

①-1. 粉末層の成型

2020 年度①-1 の検討において抽出した条件・装置に基づいて、簡易的な装置構成で異方化した粉末層を試作する。

①-2. 粉末層の異方化装置検討と粉末圧延機の改良、および粉末層異方化・緻密化

異方化するための治具・装置を構築し、粉末圧延機の改良を行う。異方化された粉末層の試作と緻密化、接着、及び焼結などによって得られた粉末層及び薄型磁石層の特性を取得し、磁気特性を向上させる。ここで得られた粉末層や薄型磁石層を、後述する積層プロセス(②-1～②-4)へ供給し、積層プロセスに耐えうる層が形成できているか検証する。

なお、上記①-2 で試作する粉末層の異方化装置は、2021 年度④-1 で実施予定の「複合構造磁石組み込みモーターの回転評価と実用に向けた課題抽出」後、一年以内に廃棄する。本事業ではバッチ処理による積層磁石作製を行うが、本検討成果は、将来の連続処理プロセスや低コスト化検討に資するものであることを付記する。廃棄にあたっては、産業廃棄物処理法等に基づいてマニフェストを添付し、廃却時には写真等の証拠を残して廃却する。

<目標①>粉末圧延機改良と薄型磁石層の異方化プロセスの構築

②. 積層プロセスの確立

②-1. 接着剤や接合方法の検討と強度評価

2020 年度②-1 の結果をもとに、接合方法や条件を決定する。

②-2. 市販磁石積層化と特性評価

2020 年度②-2 の結果をもとに、積層プロセス案を固め、市販磁石による積層磁石を試作する。

②-3. 積層磁石の特性評価機器試作と特性評価

薄型磁石層の厚みを指標として、積層磁石の鉄損を取得する特性評価機器を構築する。これを用いて薄型磁石の厚みと鉄損/磁気特性の相関を明らかにし、厚みを決定する。

②-4. 積層リング磁石試作

薄型磁石層を②-2 で決定したプロセスに従い積層磁石(分割数・形状はロータの詳細設計による)とし、性能をまとめる。モーターへの組み込み・動作検証を可能とする。

なお、社内試作薄型磁石による積層磁石試作品の一部は、電気・磁気特性評価後に接着・接合状態を評価する強度試験(破壊試験)を行い廃棄する。電気・磁気特性が目標を満たすものについては破壊試験を行わずに、後述する④-1 に記載の超高速回転試験用の積層磁石として用いる。廃棄にあたっては、産業廃棄物処理法等に基づいてマニフェストを添付し、廃却時には写真等の証拠を残して廃却する。

<目標②>複合構造磁石の試作実証

Br:0.85T(8.5kG)以上、保磁力:1.44MA/m(18kOe)以上、体積抵抗率(電気)
 $\rho < 10\text{m}\Omega\cdot\text{cm}$ 以上(ボンド磁石 $10\text{m}\Omega\cdot\text{cm}$ /焼結磁石 $0.14\text{m}\Omega\cdot\text{cm}$ から、
ジュール損比=1/71 以下)

③. 高速回転モーターの試作

③-2. 回転評価機器調達と複合構造磁石組み込みモーターの試作

2020年度③-1で実施した超高速回転試験による複合構造磁石の成立性を検証するための超高速モーターの試作検討結果をもとに、超高速モーターの詳細設計及び試作を行う。なお、ロータへの積層磁石組込み検討に用いる射出成型用型は、ロータ外径や磁石充填範囲がかわると都度、型が必要になり流用しないため、本事業終了後は廃棄する。廃棄にあたっては、産業廃棄物処理法等に基づいてマニフェストを添付し、廃却時には写真等の証拠を残して廃却する。

④. 高速回転モーターの動作実証と複合構造磁石成立性の課題抽出

磁石の性能実証にあたっては、高速回転が可能なスピントスターと、高速回転モーターとを併用し高速回転試験を行うことで、出力、損失、強度などの性能を評価し、実用化に向けた課題を明確にする。

④-1. 複合構造磁石組み込みモーターの回転評価と実用に向けた課題抽出

2021年度③-2で試作した超高速モーターを対象に、駆動装置(インバータ)による超高速回転試験※を実施し、過去に市販の焼結磁石(SmCo)を用いて株式会社IHIで試作・評価を行った超高速モーターとの特性比較から、実用に向けた課題抽出を行う。

なお、上記④-1で試作する高速回転モーターと評価磁石等は、回転評価と実用に向けた課題抽出後、一年以内に廃棄する。本事業で試作する高速回転モーターは、実用化に向けた評価を行うべく定格仕様を越えた過負荷試験も行うため廃棄対象としている。また、超高速回転試験に限定し製品仕様を完全に満たすものではないため、製品適用にあたっては本事業の成果を活かし新たに開発を行っていく。廃棄にあたっては、産業廃棄物処理法等に基づいてマニフェストを添付し、廃却時には写真等の証拠を残して廃却する。

※100,000rpm級の高速回転が可能なスピントスター、及び定格85,000rpm、4.2kWを用いてストレッチ最大回転数93,000rpm、5.3kW級の試験を、複数ポイント設定し、高速回転試験を実施(回転数、出力は一例であり、モーターの選択による)することで、実用化に向けた複合構造磁石と磁石組込み方法に関する課題が明確化される。

実施計画

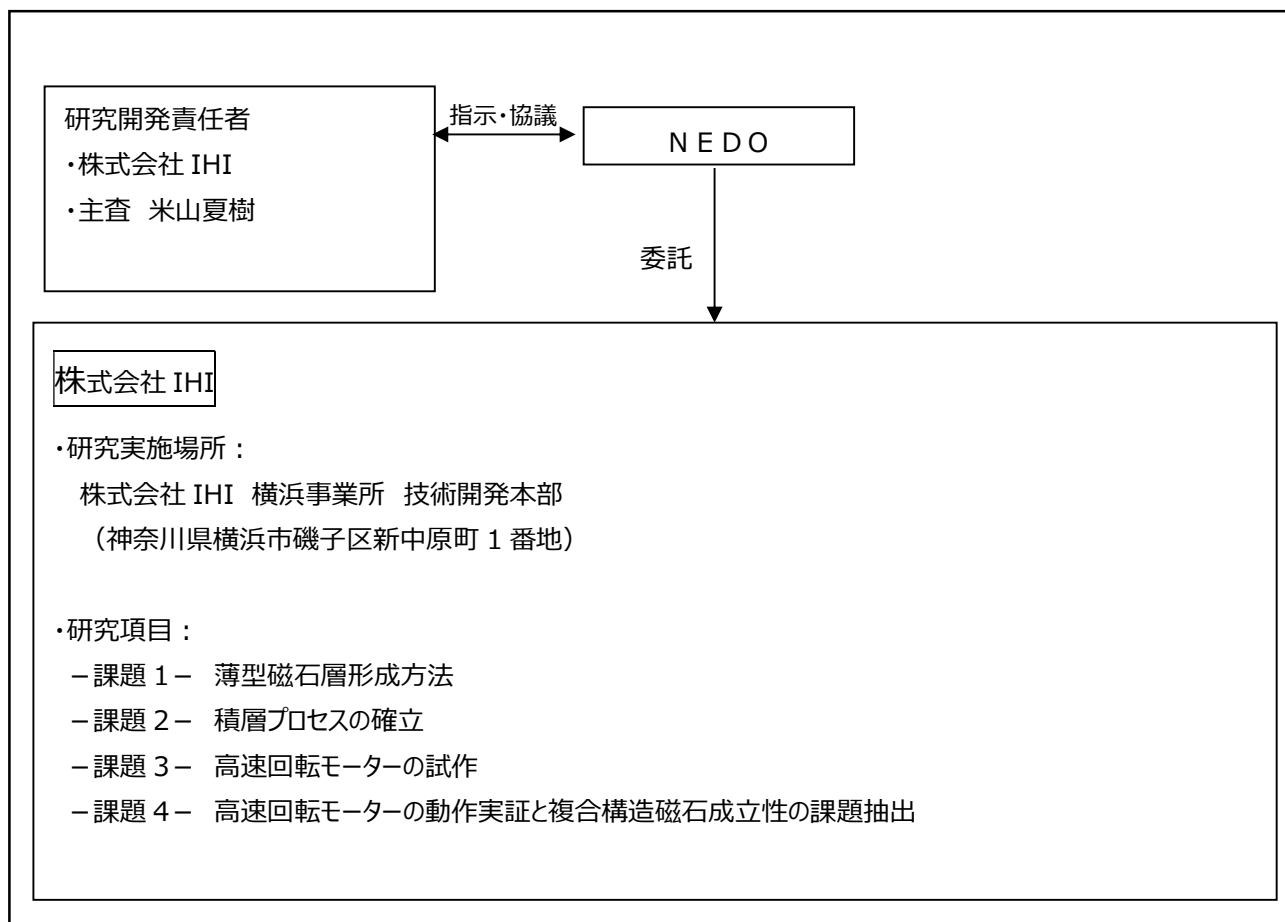
開発項目	2020年度				2021年度			
	第1 四半期	第2 四半期	第3 四半期	第4 四半期	第1 四半期	第2 四半期	第3 四半期	第4 四半期
①. 薄型磁石層形成方法								
①-1. 粉末層の成型			→	→				→
①-2. 粉末層の異方化装置検討と粉末層異方化・緻密化			→	→				→
②. 積層プロセスの確立								
②-1. 接着剤や接合方法の検討と強度評価			→	→				→
②-2. 市販磁石積層化と特性評価			→	→				→
②-3. 積層磁石の特性評価機器試作と特性評価			→	→				→
②-4. 積層リング磁石試作								→
③. 高速回転モーターの試作								
③-1. 組み込みモーター選択と組み込み方法検討			→	→				
③-2. 回転評価機器調達と複合構造磁石組み込みモーターの試作								→
④. 高速回転モーターの動作実証と複合構造磁石成立性の課題抽出								
④-1. 複合構造磁石組み込みモーターの回転評価と実用に向けた課題抽出								→
※技術評価委員会の開催			→	→	→	→	→	→

費用

(単位：百万円)

研究開発項目	2020年度	2021年度	合計
項目①、薄型磁石層形成方法	18.5	33.6	52.1
項目②、積層プロセスの確立	7.6	24.9	32.5
項目③、高速回転モーターの試作	1.9	16.4	18.3
項目④、高速回転モーターの動作実証と複合構造磁石成立性の課題抽出	-	2.0	2.0
合計	28.0	77.0	105.0

2.3 研究開発の実施体制



3. 研究開発成果について(テーマ B1:株式会社 IHI)

3.1 要約

Sm 系磁石粉を対象に、圧延技術を用いたロールを介したニアネットな薄型磁石層の形成と、これら薄型磁石層と絶縁層を積層し、高磁気特性と高抵抗性をバランスよく持つ積層磁石の開発を行った。さらに射出成型によるロータへの組込みプロセスも併用した複合構造磁石を開発し、その磁石の超高速回転試験を実施し、また課題抽出を行った。

① 薄型磁石層形成方法

ボンドライク磁石については「フィーダーロール圧延+磁場プレス+本圧延」の条件でボンド磁石 Br : 0.58~0.64 T、 Hc_j : 1.9~2.00 MA/mの磁気特性を得ることができた。焼結磁石については「フィーダーロール圧延+磁場プレス+高荷重焼結(通常焼結、ホットプレス利用)」による磁気特性向上を行った。それらの磁気特性については Br と Hc_j に関するトレードオフの関係を取得し、限界性能を把握した。

② 積層プロセスの確立

- 1) 接着積層と射出成型を併用した積層構造磁石を作製し、接着剤、積層方法、加工方法の選定、表面粗さ、片持ち梁クリープ変形、耐熱性の評価を実施した。その結果、平均接着層膜厚は $40\ \mu\text{m}$ 、磁石体積率は最大 92%となった。
- 2) 加工公差や耐熱性評価の結果をベースに射出成型と焼き嵌めによるアーマーリング (Ti-6Al-4V) を実装したモーターロータを試作した。

③ 高速回転モーターの試作

加工成型による薄型磁石層と絶縁層による積層構造磁石を搭載したモーターを製作した。ロータについては、スピントスターで 100krpm まで運転した。運転中の振動（回転 1 次成分）や、スピントスター前後の不釣り合いに明確な変化は見られず、この積層磁石が 100krpm の高速回転に耐えうる複合構造積層磁石であることを示すことができた。

④ 高速回転モーターの動作実証と複合構造磁石成立性の課題抽出

磁石積層化によるモーター特性の評価を実施した。3D 簡易モデル磁場解析による損失評価の結果では、磁石の分割なしの場合のロータと比較して、磁石の積層化によって渦電流損失が 97.7%低減した。さらに試作した高速回転モーターによる熱静定試験を実施した結果、目標 85krpm に対して実績 91krpm で安定して高速回転できることを確認した。モーター損失を計測した結果、解析予測と実測の差異は 10%以内であり、想定外の損失は発生していないことも確認できた。

3.2 技術開発項目毎の成果概要

本技術開発の実施内容概略を以下に示す。

- Sm 系磁石粉を対象に、ロールを介したニアネットな薄型磁石層の形成と、磁気／結晶配向・緻密化を目指す。また、これら薄型磁石層と絶縁層を積層し、高磁気特性と高抵抗性をバランスよく持つ積層磁石を開発する。また、組付け性を良くするために、射出成型によるロータへの組込みプロセスも併用した複合構造磁石とする。
- 圧延プロセス等を利用した Sm 系薄型磁石層と絶縁層による積層磁石と、射出成型等によるボンド磁石や樹脂で磁石を組込んだロータにより、超高速回転試験を実施し、課題抽出を行う。

本技術開発における技術的な特徴、及び目指す方向性を以下にまとめる。

- 粉末圧延機を用いて異方化した Sm 系薄型磁石層の製造プロセス
 - ✓ Sm 系磁石粉の粉末圧延による緻密化と異方化によって残留磁束密度 (Br) を向上させる。また、粉末圧延による磁石の薄型化で、機械加工による磁気特性劣化を最小限に抑え、かつ薄型磁石層内の渦電流発生を抑える。これらにより、モーター体格を同出力に対して小さく、材料コストを抑えながら省スペース化が可能となる。さらには同じ体格で高出力化 (高出力密度化) が可能となり、重希土類フリー・高性能モーターの実現に資する磁石となる。
- Sm 系薄型磁石層と絶縁層で構成した積層磁石
 - ✓ 絶縁層を介した積層構造とすることで磁石の体積率向上から高い残留磁束密度 (Br) を維持させ、磁石で発生する渦電流による発熱・損失を抑え、超高速回転モーターの実現

に資する高電気抵抗磁石となる。

- 樹脂接着による高速回転モーターロータへの一体化成型
 - ✓ ボンド磁石成型プロセスを応用した一体化成型などを行う事で、ロータへの組込み性が向上し、超高速回転モーターの実現に資する磁石となる。
- 100krpm を越える超高速回転モーターに実装可能な複合構造磁石
 - ✓ 上述を複合させることで、高磁気特性 ($B_r = 0.85T$ を大きく上回る性能が期待できる) と高電気抵抗特性の両者をバランス良く持つ超高速回転モーター用複合構造磁石を目指す。その磁石の性能実証にあたっては、100krpm 級の高速回転が可能なスピントスターと、高速回転が求められる車両用モーター (例えば、電動コンプレッサー用途) とを併用し高速回転試験を行う。そして、出力、損失、強度などの性能評価、実用に向けた課題抽出を行う。なお、本研究開発の成果は、自動車の高速回転モーター用途や航空機電動化用途への波及が可能な技術である。

3.3 実施開発成果

本プロジェクトの目標とそれに対応する成果について表1.2-1に示す。加工成型薄型磁石においては、残留磁束密度、保持力、モーター試験において目標を上回り青の太字で示した。一方、粉末圧延薄型積層磁石については目標未達となりそれぞれの限界性能を示した。

表 1.2-1 NEDO 仕様、加工成型磁石、粉末圧延積層磁石の比較

	NEDO 仕様	加工成型薄型積層磁石	粉末圧延薄型積層磁石
残留磁束密度 (T)	0.85 以上	0.98@占積率 92%	参考値 ¹⁾ : 0.58@占積率 92% (最大 0.76@占積率 92%)
保持力 (MA/m)	1.44 以上	1.59	参考値 ²⁾ : 0.98 (最大 1.53)
ジュール損比	1/71	1/70 (実験外挿値) 1/43 (解析値)	1/58 (実測値)
スピンスター試験	100krpm 級で 実施	100krpm で実施	—
モーター試験	85krpm 4.2kW モーター で定格試験	91rpm で定格試験を行 い熱静定できていることを 確認	—

1) 図 A-1-2-6 に記載の 1-5 系 SmCo 緻密度と残留磁束密度との関係から内挿式を使って求めた。

2) 図 A-1-2-6 に記載の 1-5 系 SmCo 緻密度と保持力との関係から内挿式を使って求めた。

3.4 各項目成果詳細

A 薄型磁石層形成方法

成果ハイライト

- 2-17系 SmCo 磁粉と1-5系 SmCo 磁粉の検討を行い、各課題抽出をおこなった。
- 2-17系 SmCo 磁粉については、状態図における Sm 安定領域が狭いことからプロセスウインドウが狭くなり、熱処理中の Sm 飛散による組成ズレが発生した。結果として残留磁束密度は Br0.6～0.8T となり目標値到達への可能性はあるものの、保持力については目標値を大幅に下回る結果となった。
- 1-5系 SmCo 磁粉については種々実験条件を適正化することにより Br と Hcj の関係はトレードオフの関係にあることを見出した。磁気特性の主要因としては磁粉の粒径、そして熱処理中の雰囲気重要であることがわかった。Br 最大値は 0.83T、Hcj 最大値は Hcj:1.53 MA/m となった。バランスをとれた磁気特性値は推定値として Br:0.63 T、Hcj:0.98 MA/m となった。
- 「圧延プロセスでの異方化」については、ロール周辺への安定磁界の機構と磁界導出に向けた予備試験の様子を通して比較試験と電磁場解析によりコンセプト成立性に道筋をつけた。粉末粒径に依存し、5 μ m までの「圧延プロセスでの異方化」を行う場合は、粉末への着磁で対応することができた。5 μ m 以下の粒径については、より大きな均一磁場発生可能な着磁器の検討をすること、そして均一磁場が発生する着磁器を設置するために、IHI 所有圧延機の大幅な改造が必要だと分かった。すなわち、圧延プロセスで磁気異方化させる場合は、既存設備の改造ではなく新規圧延機と磁気異方化装置をセットで新規設計が必要となる課題を抽出した。
- 磁場プレスの作動シーケンス最適化と圧延ロールを介したニアネットな薄型磁石層の形成に関しては、ボンドライク薄型磁石作製を通して、「粉末調整→フィーダーロール圧延→磁場プレス→圧延」までの基本プロセスの立案とその課題について抽出を行った。その結果、「フィーダーロール圧延+磁場プレス+本圧延」のプロセスで、ボンド磁石の磁気特性 Br: 0.58～0.64 T、Hcj: 1.9～2.00 MA/m の両者が同時に成立する条件を得ることができた。

A-1 粉末層の成型

最初に本プロジェクトで行った薄型磁石層の形成方法を図 A-1-1 に示す。上段は通常の焼結バルク磁石製造プロセス、下段は本プロジェクトで取り組んだ圧延ロールを介したニアネットな薄型磁石層の形成方法である。ここでは Sm 系磁石粉を用い基本プロセスの立案とその課題について抽出を行った。

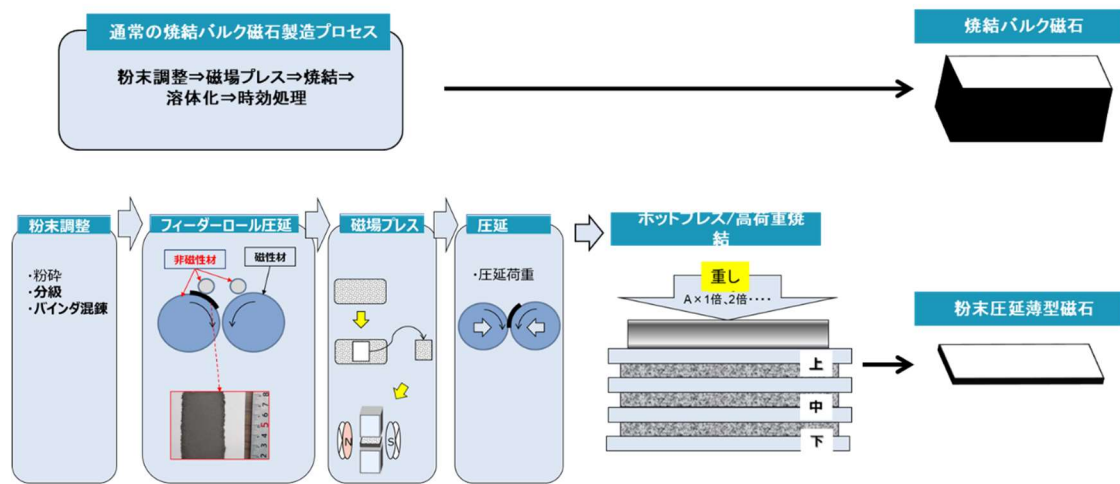


図 A-1-1 磁石粉末プロセス概要

SmCo 系の磁粉には、Br は比較的高い(約 1.1 T)が、熱処理プロセスの範囲が非常に狭いことでプロセス条件適正化が困難な 2-17 系 SmCo 磁粉と、Br は前者として比較的低い(約 0.95 T)であるが熱処理プロセスの範囲が比較的広い 1-5 系 SmCo 磁粉がある。本研究では両者磁粉を用いてそれぞれの課題抽出をおこなった。表 A-1-1 に 2-17 系 SmCo 磁粉と 1-5 系 SmCo 磁粉のメリット、デメリットを示す。

表 A-1-1 2-17 系と 1-5 系 SmCo 磁粉を粉末圧延薄型磁石とするメリット、デメリット

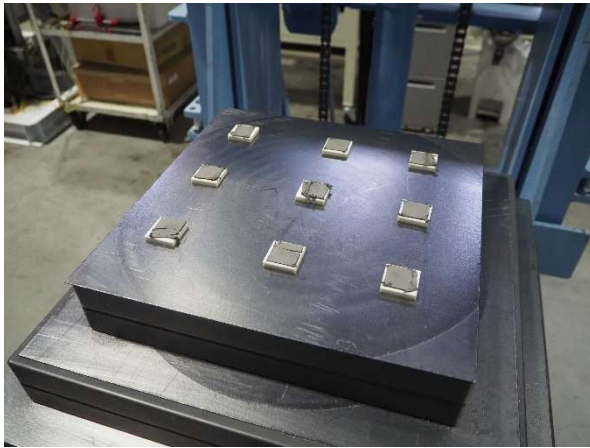
	メリット	デメリット
2-17 系 SmCo 磁粉	Br の値が高い (1.1 T) 。占積率を考慮してもプロジェクト目標到達可能。	熱処理条件のプロセスウインドウが狭い。プロセス工程数は 4、全プロセス時間大。 (焼結⇒溶体化処理⇒急冷⇒時効) 「溶体化処理⇒急冷により試験片が破損する恐れがある。
1-5 系 SmCo 磁粉	熱処理条件のプロセスウインドウが比較的広い。プロセス工程数は 3、全プロセス時間が短い。全プロセスは「焼結⇒溶体化処理⇒急冷」。さらに「溶体化処理⇒急冷により試験片が破損する恐れがない。	Br の値が低い (0.95 T) 。占積率を考慮するとプロジェクト目標到達には不確定要素あり。

A-1-1 2-17 系 SmCo 系磁粉の検討

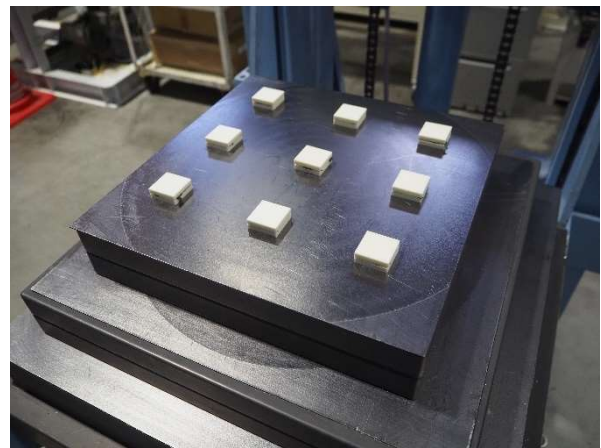
試験片は焼き付き防止用多孔質セラミック板で粉末圧延薄型磁石試験片を挟みながら3枚セットし、熱処理中の熱変形防止のための錘400g(上限)を最上層に配置した。このようなセットアップにてラボスケール雰囲気炉を用いて「焼結⇒溶体化処理⇒急冷」を行った。焼結、溶体化、急冷、時効における温度と時間、さらには昇温速度、冷却温度の条件適正化を行った。図A-1-1-2に熱処理前後の試験片の外観を示す。Smは蒸気圧が高いことから、高温熱処理中のSm蒸発の抑制に配慮して行う必要がある。ここでは問題解決のため熱処理中の使用ガスについてはSm飛散防止の実績があるアルゴンガスを用い、その流量の適正化を行った。さらには水素ガスを添加導入し、水素還元で残留酸素の除去も含めて条件の適正化を行った。Br特性向上については、特に緻密度を向上することに配慮して実験条件を探索した。具体的には熱変形防止と緻密度向上のため最上段の錘の重量を増加させた。しかし、結果としては、錘による荷重は限りがあること、面圧が不均一、また焼結時の粉流動性との関係から焼結後の試験片の密度が不均一になる状態が発生し、Brが低下した。この問題を解消するため、ラボスケール用雰囲気熱処理炉に使用可能な荷重重量よりも大きな荷重で、かつ均一に加えることが可能なホットプレスの適用検討を追加で行った。図A-1-1-3にホットプレスによる高荷重焼結の様子を示す。



図 A-1-1-2 2-17 系 SmCo 系磁粉の熱処理前後外観写真(左は熱処理前、右は熱処理後)



(a)



(b)



(c)



(d)

図 A-1-1-3 ホットプレスによる高荷重焼結の様子

(a)粉末層のセットアップ、(b)セラミック治具による保護

(c)横から見た治具と試料、(d)ホットプレス内でのセットの様子

ホットプレスを用いて「焼結」、その後ラボスケール用雰囲気炉を用いて溶体化・時効処理を行い緻密度の向上を通して Br 向上を目指した。ただし不活性雰囲気中のガスフロー、ホットプレス中は不活性雰囲気中で閉じた状態で行った。その結果、ホットプレスの場合、粉末圧延薄型磁石試験片に含有する揮発性バインダーにより、試料セットアップ近傍に飛散し、孔質セラミック板と試料とを結合反応させる問題が生じた。また、追加の熱処理は長時間に及ぶため Sm 飛散による試験片表面層を中心に Sm 組成ズレが発生したため、その組成ズレを確認するための SEM-EDS 分析を行った。

表 A-1-1-1 は前述の問題を中心に考慮し、ホットプレスの実験条件をさらに最適化しておこなった際の組成分析の結果である。2-17 系 SmCo の Sm 量と比較して Sm 量をかなり添加したものの、適正保持力が発現する適正な Sm 量領域である図 A-1-1-4 の赤■の適正な組成領域にはいることはなかった。次に焼結緻密化してえられた A サンプルおよび C サンプルの比較を SEM 微細組織での分析とともに比較した。サンプル A を図 A-1-1-5 に、サンプル C を図 A-1-1-6 に示す。Sm 量の飛散量は、サンプル A では平均して 5wt% 程度と考えられるが、Sm 量を 5wt% 増加させたサンプル C においても平均 19.4wt% となり、2-17 系の焼結温度・雰囲気内で Sm 量を保つことができないことが分かった。その結果残留磁束密度は Br0.6~0.8T となり目標値へは未達となった。すなわち残留磁束密度については到達する可能性はあるものの、保持力に

については目標値を大幅に下回る状態となった。2-17系 SmCo としては表面積が大きい 0.5mm厚磁石では、通常バルク材と比較して表面積が大きいため、熱処理中に多くの Sm が蒸発したことが課題と考えられた。

これらの検討結果を受け、2-17系 SmCo と結晶構造が同じであり、磁気特性と機械的特性がほぼ同等である 1-5系 SmCo 系磁粉での検討を行うこととした。1-5系 SmCo 系磁粉を選択した理由は、時効処理が必要ないことから熱処理時間を短縮することで Sm の飛散懸念が低下することと、本プロジェクト開始前の研究開発での実績を活用できたためである。

表 A-1-1-1 2-17系 SmCo 粉と Sm 添加粉の焼結前後の Sm 量(wt%)比較

	焼結前			焼結後
	Sm	Co	Bal.	Sm
A サンプル 2-17系 SmCo	24.5	50.5	25.0	19.5
B サンプル 2-17系 SmCo+Sm 添加 (バッチ 1)	29.6	50.1	20.1	— (焼結不良)
C サンプル 2-17系 SmCo+Sm 添加 (バッチ 2)	29.4	55.5	15.1	19.4

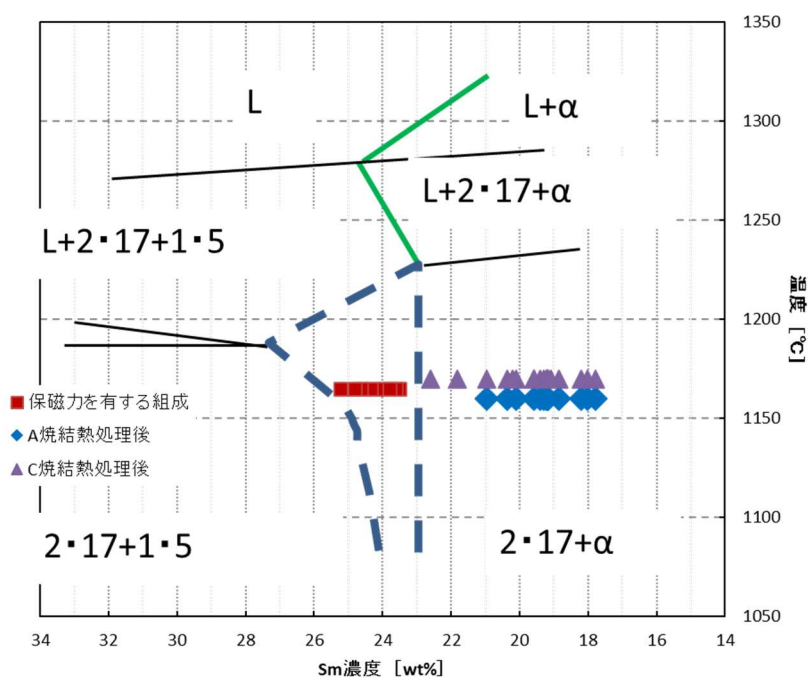
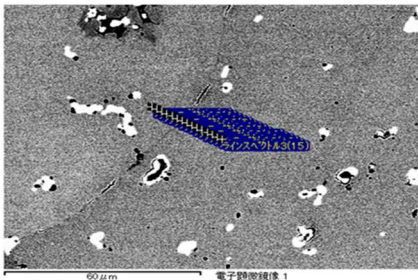
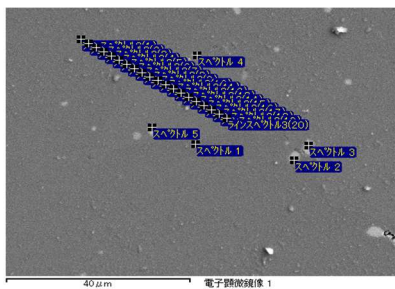


図 A-1-1-4 Sm-Co 状態図 青の点線内が 2-17SmCo 適正溶体化領域



wt%	Fe	Co	Cu	Zr	Sm	トータル
ラインス°ケトル 3(1)	16.39	50.16	9.7	1.94	21.81	100
ラインス°ケトル 3(2)	16.91	49.96	10.54	2.23	20.36	100
ラインス°ケトル 3(3)	16.67	51.63	9.18	2.43	20.09	100
ラインス°ケトル 3(4)	15.04	54.02	10.97	2.18	17.79	100
ラインス°ケトル 3(5)	15	52.62	9.73	3.45	19.2	100
ラインス°ケトル 3(6)	15.04	53.27	9.69	2.82	19.17	100
ラインス°ケトル 3(7)	16.01	52.68	10.08	3.21	18.02	100
ラインス°ケトル 3(8)	17.99	53.23	8.87	1.71	18.2	100
ラインス°ケトル 3(9)	19.79	50.35	9.18	1.28	19.41	100
ラインス°ケトル 3(10)	17.96	53.13	9.8	2.11	17	100
ラインス°ケトル 3(11)	16.29	50.67	10.48	3.71	18.86	100
ラインス°ケトル 3(12)	16.96	50.03	8.87	3.17	20.97	100
ラインス°ケトル 3(13)	18.16	50.87	9.13	2.61	19.23	100
ラインス°ケトル 3(14)	17.88	50.31	9.53	2.99	19.3	100
ラインス°ケトル 3(15)	18.3	51.79	7.32	3.01	19.59	100
平均	17.1	51.3	9.6	2.5	19.5	100.0

図 A-1-1-5 A サンプルの微細組織と分析点(左)および各点の分析結果(wt%) (右)

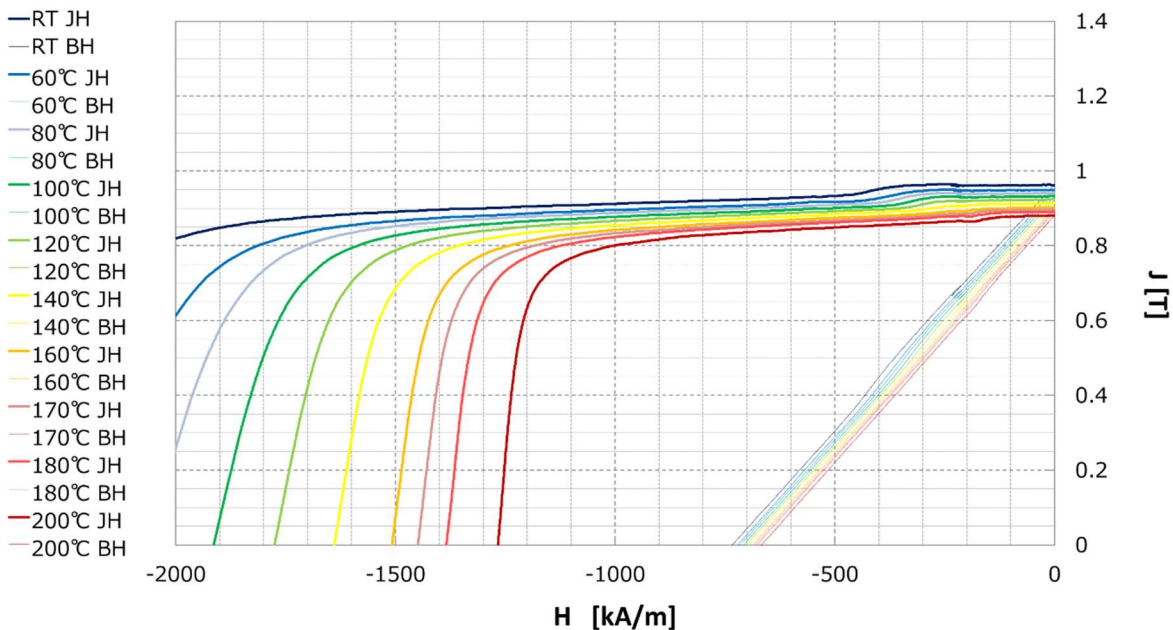


wt%	Fe	Co	Cu	Zr	Sm	トータル
ラインス°ケトル 3(1)	16.39	50.16	9.7	1.94	21.81	100
ラインス°ケトル 3(2)	16.91	49.96	10.54	2.23	20.36	100
ラインス°ケトル 3(3)	16.67	51.63	9.18	2.43	20.09	100
ラインス°ケトル 3(4)	15.04	54.02	10.97	2.18	17.79	100
ラインス°ケトル 3(5)	15	52.62	9.73	3.45	19.2	100
ラインス°ケトル 3(6)	15.04	53.27	9.69	2.82	19.17	100
ラインス°ケトル 3(7)	16.01	52.68	10.08	3.21	18.02	100
ラインス°ケトル 3(8)	17.99	53.23	8.87	1.71	18.2	100
ラインス°ケトル 3(9)	19.79	50.35	9.18	1.28	19.41	100
ラインス°ケトル 3(10)	17.96	53.13	9.8	2.11	17	100
ラインス°ケトル 3(11)	16.29	50.67	10.48	3.71	18.86	100
ラインス°ケトル 3(12)	16.96	50.03	8.87	3.17	20.97	100
ラインス°ケトル 3(13)	18.16	50.87	9.13	2.61	19.23	100
ラインス°ケトル 3(14)	17.88	50.31	9.53	2.99	19.3	100
ラインス°ケトル 3(15)	18.3	51.79	7.32	3.01	19.59	100
ラインス°ケトル 3(16)	19.19	49.4	8.86	3.32	19.22	100
ラインス°ケトル 3(17)	17.78	49.45	10.68	1.88	20.21	100
ラインス°ケトル 3(18)	16.83	54.23	7.71	2.08	19.16	100
ラインス°ケトル 3(19)	15.94	49.24	9.68	2.55	22.59	100
ラインス°ケトル 3(20)	17.36	48.69	12.99	1.88	19.08	100
平均	17.1	51.3	9.6	2.5	19.5	100.0

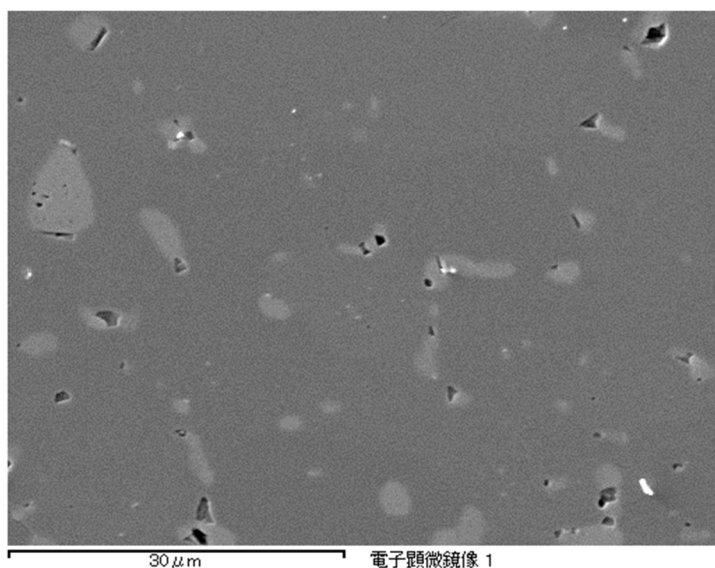
図 A-1-1-6 C サンプルの微細組織と分析点(左)および 各点の分析結果(wt%)
ただしスペクトル 1、2、3、4、5 は除く(右)

A-1-2 1-5 系 SmCo 磁粉の検討

1-5 系 SmCo は「焼結⇒溶体化処理⇒急冷」のみとなり、前項の 2-17 系 SmCo と比較して全ての熱処理時間が短く、熱処理中の Sm 蒸発による組成ズレの可能性が低い。そのため 1-5 系 SmCo は 2-17 系 SmCo と比較して最適な熱処理条件の探索が容易である。そこで 1-5 系 SmCo 磁粉についても前項同様に検討を行った。最初に 1-5 系 SmCo 磁粉受け入れバルク材での磁気特性を確認した。その結果、磁気特性は室温で B_r 0.955 T、 H_{cJ} 2.434 MA/m であった。図 A-1-2-1 は室温から 200℃まで B-H 曲線、J-H 曲線を測定結果となり、室温から 200℃まで正常な磁気特性であることを確認した。また内部の組織は図 A-1-2-2 に示すような組織となり、磁気特性を低下するような欠陥に起因する空隙、介在物等の不純物は顕著には存在しないことを確認した。



図A-1-2-1 1-5系SmCo磁石バルク材減磁曲線



図A-1-2-2 1-5系SmCo磁石バルク材SEM組織写真

これらを用いて、図 A-1-2-3 に示す 1-5 系 SmCo プロセス検討フローチャートに基づき条件の適正化を図った。図 A-1-2-3 の左側はラボスケール雰囲気炉、右側はホットプレスによる検討である。試験片の緻密化を向上させるため通常焼結炉からホットプレスへの移行を円滑に行うため、各プロセスにおける Sm の組成ズレを各プロセス中で把握し、Sm 添加量を最適化した。

ミキサーによる粉砕および 150 メッシュによる分級、さらにジェットミルを通して粒径を微細かつ均一なものを用意した。図 A-1-2-4 にミキサーおよびジェットミル工程および工程前後の粒度の違いや、粉末形状などについて種々検討した結果の要旨についてまとめた。

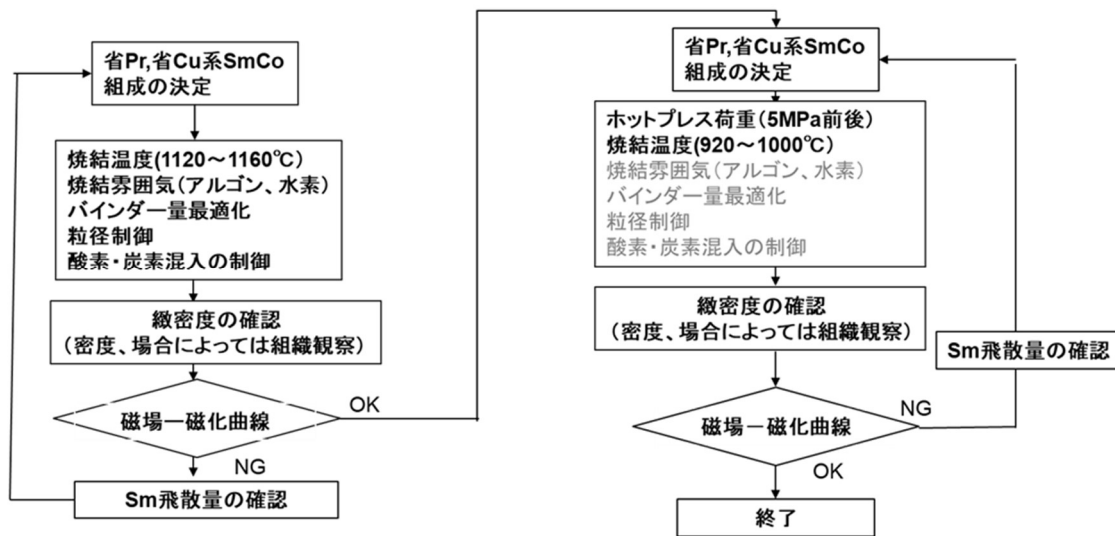
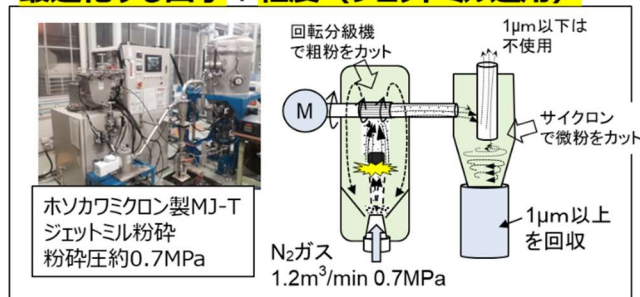


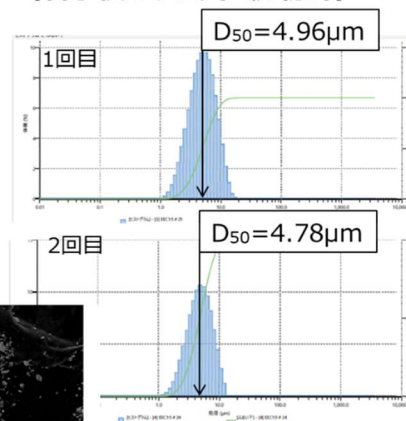
図 A-1-2-3 1-5 系 SmCo プロセス検討フローチャート。左はラボスケール雰囲気炉、右はホットプレス

第 1 ステップ

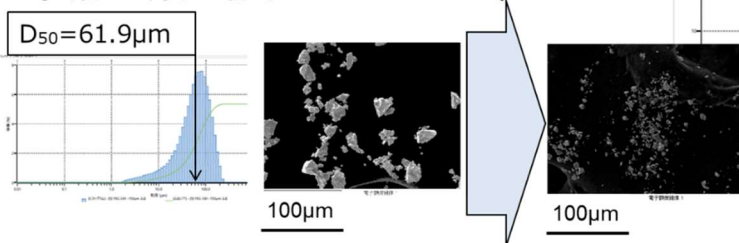
最適化する因子：粒度（ジェットミル適用）



第 1 サイクル (着手後：ジェットミル粉砕)



第 0 サイクル (当初：ミキサー粉砕)



ジェットミルを使用して磁石原料を粉砕D₅₀で5μm目標の粉砕した。
ジェットミル分級機の条件を最適化することで再現性よく粉砕できることを確認した。

図 A-1-2-4 ジェットミルの機構および粒度の変化、粉末形状の比較

社外評価委員から圧延時の雰囲気改善し更なる磁気特性向上を目指すとの指導を受け図 A-1-2-5 に示す粉末圧延機を窒素で置換する試験を行った。試験から 15 分で 90ppm まで置換することができることを確かめた。これらの結果を用いて、粉末を扱う場合、酸素濃度 1000ppm を限界環境雰囲気条件として、酸素から遮断して粉末および粉末層を取り扱うこととした。粉末圧延による粉末層作製および磁場プレスによる磁気異方化について、これまでに述べてきた 2-17 系と同様の条件により実施した。

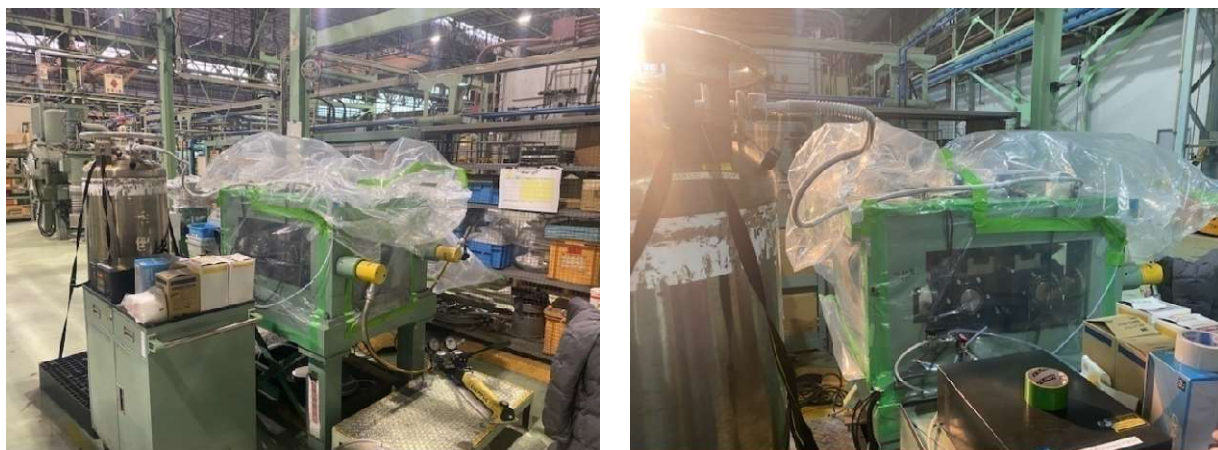


図 A-1-2-5 雰囲気中宇の粉末圧延の様子(液体窒素ガスの放出ガスによる置換)

表 A-1-2-1 に 1-5 系の焼結後の組成と粉碎前の粉末の組成を示す。当初、焼結後の酸素含有量は 6.70at%であった。図 A-1-2-5 にある雰囲気中の粉末圧延処理(液体窒素ガスの放出ガスによる置換)、そして焼結炉から冷却する際の作業を窒素雰囲気中のグローブバックで行う対策等を組み合わせ、条件を適正化した。それらにより、酸素含有量は対策前 3.63%と比較して対策後 1.92at%となり、約 52%となった。同様に炭素含有量は対策前 6.70at%と比較して対策後 0.62at%となり、約 17%となった。

表 A-1-2-1 1-5 系 SmCo 薄型磁石の焼結による組成の分析結果(at%)

at%	Sm	C	O	Bal.
ブロック (購入材料)	17.91%	0.06%	3.17%	78.87%
微粉碎・焼結材	17.73%	0.71%	6.91%	74.65%
【対策無】IHI 鋳造材の 微粉碎・焼結材	17.21	6.70%	3.63%	72.45%
【対策有】IHI 鋳造材の 微粉碎・焼結材	18.86%	0.62%	1.92%	78.59%

上記で最も良い不活性雰囲気の下、焼結温度を 1120~1160°Cの中でそれぞれ最適化した際の磁気特性を図 A-1-2-6 に示す。焼結後の試験片厚み(緻密度)と左側縦軸 Br の関係について

ではオレンジ色の丸●、焼結後の試験片厚み(緻密度)と右側縦軸 Hcj の関係については水色の丸●で示した。なお本試験片作製開始時の磁粉の投入量は 2g と一定量とした。したがって焼結後の薄板の厚みが小さければ緻密度が高く、逆にその薄板の厚みが大きければ緻密度が小さいことになる。上記焼結温度を勘案してその他の種々の実験条件を適正化することにより、Br と Hcj の関係はトレードオフの関係にあることがわかった。すなわち Br 最大値のときは Br: 0.83T、Hcj: 0.564MA/m となった。逆に Hcj が最大値を取るときは Br: 0.41 T、Hcj:1.53 MA/m となった。1 次式の最小二乗法を用いて Br と Hcj のバランスがとれた磁気特性を求めたところ、Br:0.63 T、Hcj:0.98 MA/m となった。

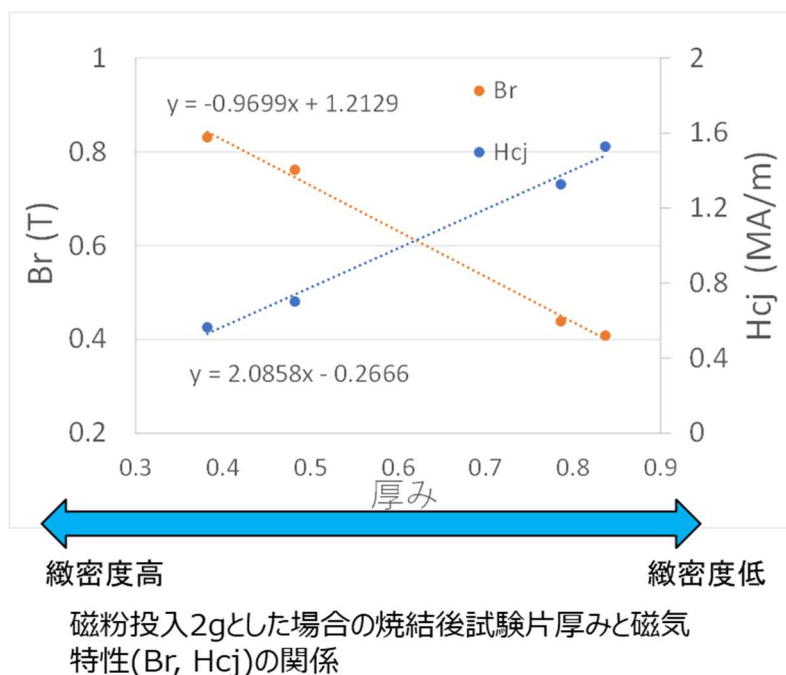


図 A-1-2-6 1-5 系 SmCo 緻密度と残留磁束密度、保持力の関係

A-2 粉末層の異方化装置検討と粉末圧延機の改良、および粉末層異方化・緻密化

磁気異方化の検討:「圧延機プロセスでの磁気異方化」と「磁場プレスによる磁気異方化」の検討

最初に図 A-2-1 に示す電磁場解析をもとに圧延プロセスでの磁気異方化の検討をおこなった。その結果をもとに粉末圧延薄型ボンドライク磁石試作による要素試験を通して図 A-2-2 に示す圧延機ロール上における磁場(磁界)条件を検討した。次に粉末圧延薄型ボンドライク磁石を用いて「圧延プロセスでの磁気異方化」と「磁場プレスによる磁気異方化」を実験検討するため、図 A-2-3 に示す通りロール周辺への安定磁界の機構と磁界導出に向けた予備試験を通して比較試験を行った。その結果、Br、飽和磁化などの磁気特性の観点からは両者はほぼ同等でありコンセプト成立性については道筋をつけることができた。しかし、「圧延プロセスでの磁気異方化」については板厚 0.5mm 薄型試験片観察の結果の表面磁束密度の均一性が「磁場プレスによる磁気異方化」と比較して劣る懸念が発生したたこと、さらには磁気特性の向上に必要な熱処理プロセスの条件適正化を迅速に行うため、「磁場プレスによる磁気異方化」をプロセスとして採用した。これらのプロセスは粉末粒径に依存し、5 μm までの「圧延機プロセスでの異方化」を行う場合は、粉末への着磁で対応することができたが、5 μm 以下の粒径などについては、より大きな均一磁場発生のため着磁器の検討すること、そして均一磁場発生する着磁器を設置するためには IHI 所

有の圧延機についても大幅な改造が必要となることが分かった。圧延プロセスでの磁気異方化する場合、既存設備の改造ではなく新規圧延機と磁気異方化装置をセットで新規設計が必要となるという課題を抽出した。

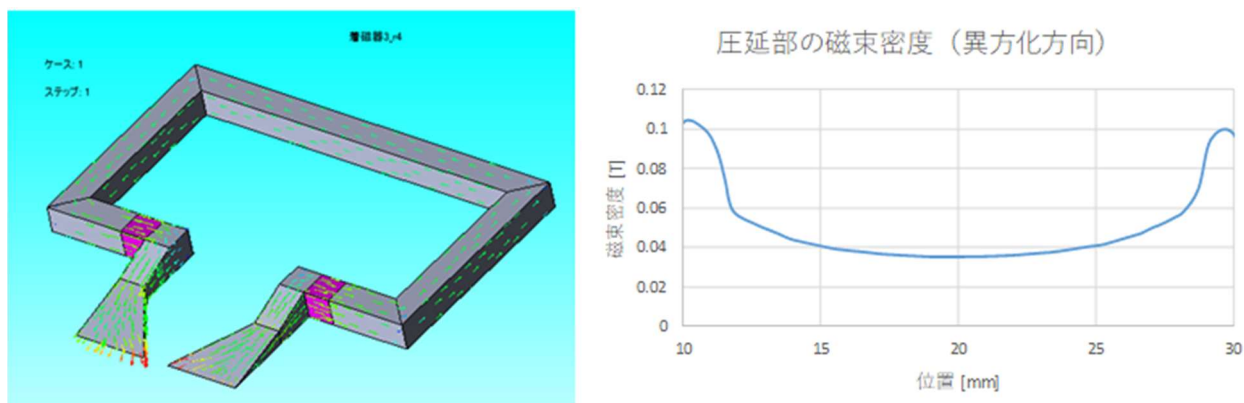


図 A-2-1 電磁場解析による磁場配向用の鉄心と磁極の最適配置シミュレーション

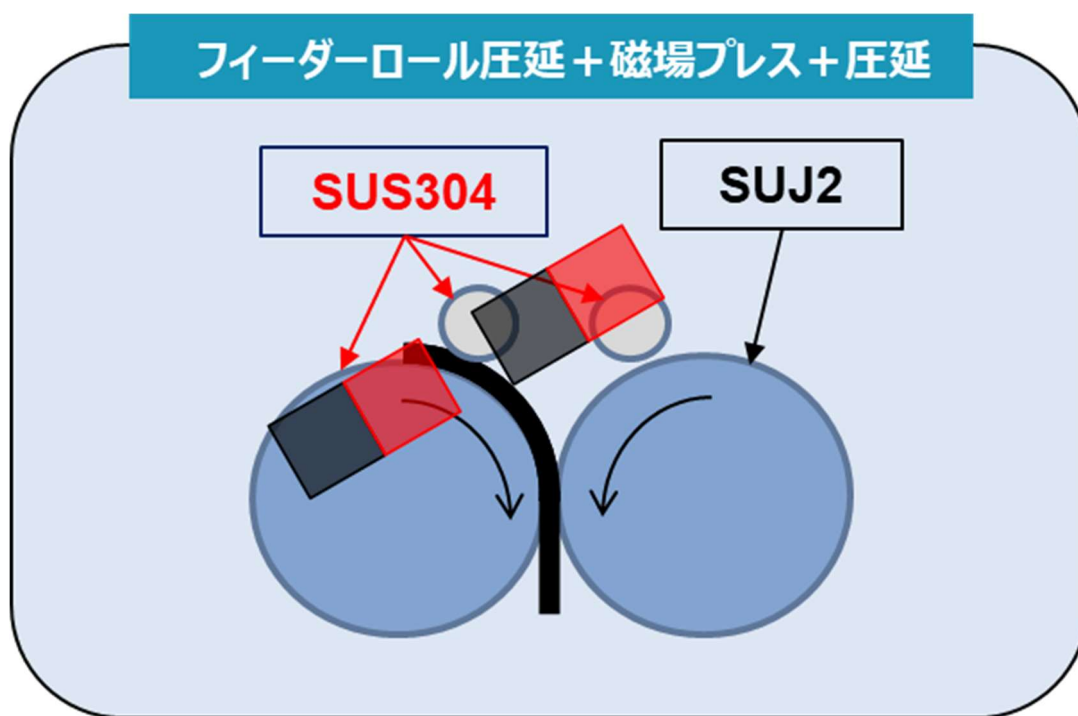
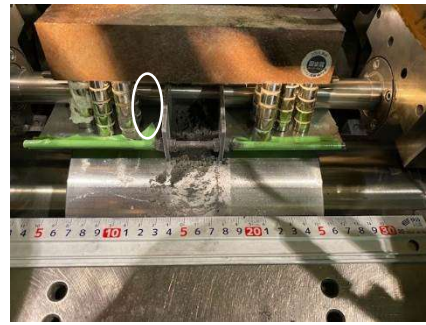


図 A-2-2 圧延機上の磁気異方化



(a)ロールに挟むフロントヨーク



(b)バックヨークをつけることで磁石配置と磁界を安定化。粉末圧延する様子。シロ丸はギャップ



(c)ギャップ 15 mm



(d)ギャップ 5 mm (端部に粉付着)

図 A-2-3 ロール周辺への安定磁界の機構と磁界導出に向けた予備試験の様子

次に磁場プレスの作動シーケンス最適化をおこなった。圧延ロールを介したニアネットな薄型磁石層の形成に関しては、ボンドライク薄型磁石を通して「粉末調整→フィーダーロール圧延→磁場プレス→圧延」までの基本プロセスの立案とその課題について抽出を行った。最初にボンドライク磁石を用いて、型抜きし、磁場プレス内で異方化する工程を粉末層の異方化工程に向けて検討した。図 A-2-4 に粉末層の磁場配向の検討を示す。着磁の磁場配向タイミングとプレスタイミングの制御シーケンスを最適化することで圧延による緻密化の検討をおこなった。磁粉がなるべく無負荷の状態で配向するようにして、磁気異方化が容易になるよう磁場プレスの作動シーケンスを最適化した。その結果「フィーダーロール圧延+磁場プレス+本圧延」の条件でボンド磁石 $B_r: 0.58 \sim 0.64$ T、 $H_{c_j}: 1.9 \sim 2.00$ MA/mの磁気特性を得ることができた。(図 A-2-4)

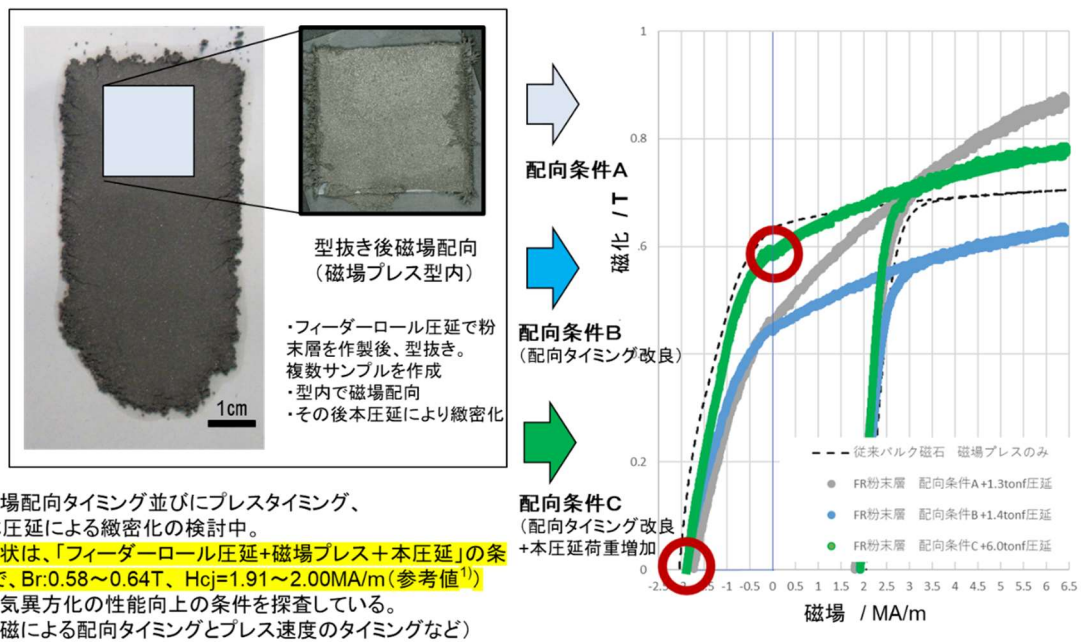


図 A-2-4 SmCo 系磁粉末層のボンドライク磁石を用いた磁場プレスによる磁気異方化の検討

B 薄型磁石の積層、およびモーターへの組み込み、高速回転モーターでの試験・評価

B-1 積層プロセスの確立

成果ハイライト

- ・塗布接着剤をデンカ製 HardLock G-55-03 を選定し 100°C/100 時間の熱時効試験において、絶縁性能の低下は認められなかった。
- ・焼き嵌め模擬熱処理前後のインピーダンス測定結果より、焼き嵌め熱処理では電気的な特性の低下は生じていないことが示唆された。
- ・接着剤のクリープ変形試験を行った。HARDLOC G-55-03 は 150°C、太陽金網株式会社製 Duralco NM25 は 260°C、24 時間の暴露で変形が生じなかった。
- ・モーター試験に採用した A 案の積層方法について、磁石体積率(占積率)は約 91~92%であった。積層体の高さと同磁石総厚さの差分から平均接着層厚さを算出したところ 0.04~0.05mm となった。
- ・積層磁石とロータの射出成型については樹脂の一部未充填部が生じたものの本積層磁石を用いてロータ組み込みに成功した。

B-1-1 接着剤の検討と強度評価

本項では市販磁石を用いて、積層接着プロセスに必要な接着剤の選定、および積層プロセスの検討を行った。接着剤の選定では接着剤の接着強度および、絶縁性に注目し評価を行った。また、焼き嵌めの熱履歴が接着剤の性能に与える影響を評価した。さらに積層方法の異なる積層磁石を 2 パターン作製し、そのうち 1 パターンにおいて射出成型を実施して、積層プロセスが実現可能なことを確認した。以降、各項目について述べる。

B-1-1-1 接着剤の選定（絶縁性評価）

積層体の接着剤は、種々の工程においても機能が損なわれないことが求められる。想定する機能として、接着剤の絶縁性能と強度があり、本項では絶縁性評価について調査した。接着剤の塗布方法の異なる積層磁石、および焼き嵌めを模擬した短時間の加熱を与えた磁石のインピーダンス測定を行った。接着剤の塗布方法が絶縁性に与える影響を比較する試験では、塗布接着剤を HardLock G-55-03 を用い、塗布方法はスプレー塗りと刷毛塗りを比較し、狙い膜厚を変化させた試験片のインピーダンスを測定した。焼き嵌めを模擬した試験では、接着剤に HardLock G-55-03、狙い膜厚 50um とし、図 B-1-1-1-1 のような熱履歴を与えた試験片の熱処理前後の絶縁特性を比較した。

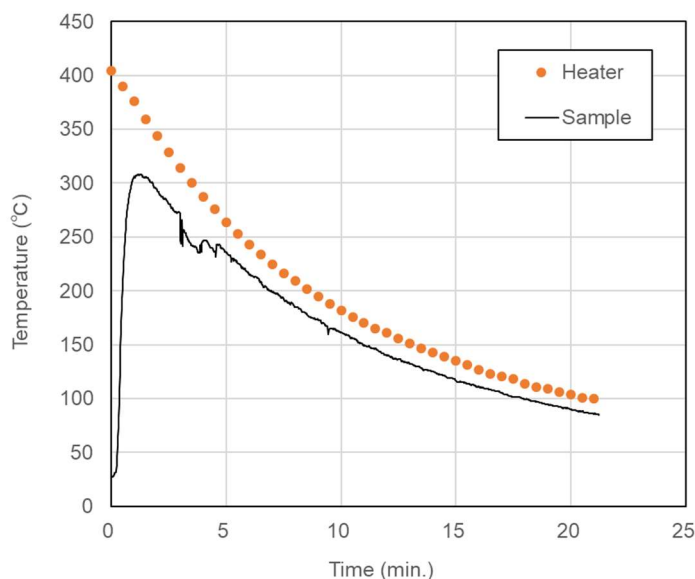


図 B-1-1-1-1 焼き嵌め模擬試験における温度ログ

図 B-1-1-1-2 に HARDLOC G-55-03 の施工方法を替えて積層した磁石の絶縁抵抗を示す。刷毛塗りでは施工膜厚を減じた場合も絶縁抵抗が大きく減少しないことに対し、スプレー塗りでは大きく減少し、絶縁が担保できなくなった。これは、スプレー塗りでは溶剤による接着剤の希釈を行ったことから、溶剤の揮発によって絶縁皮膜の実効膜厚が減少したことが考えられた。また、刷毛塗りの絶縁皮膜に対して 100°C/100 時間の熱時効を与えたが、絶縁性能の低下は認められなかった。

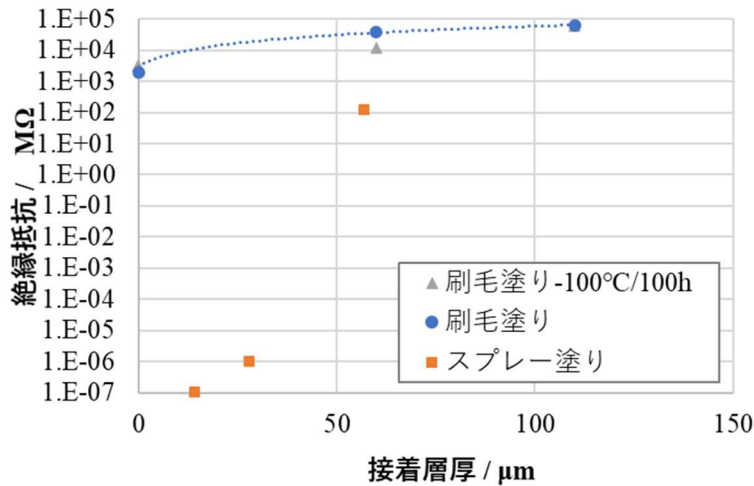


図 B-1-1-1-2 膜厚と絶縁抵抗の関係

図 B-1-1-1-3 に焼き詰め模擬熱処理前後のインピーダンス測定結果を示す。容量成分の傾きは熱処理前後で一致していたことから、焼き詰め熱処理では電気的な特性の低下は生じていないことが示唆された。

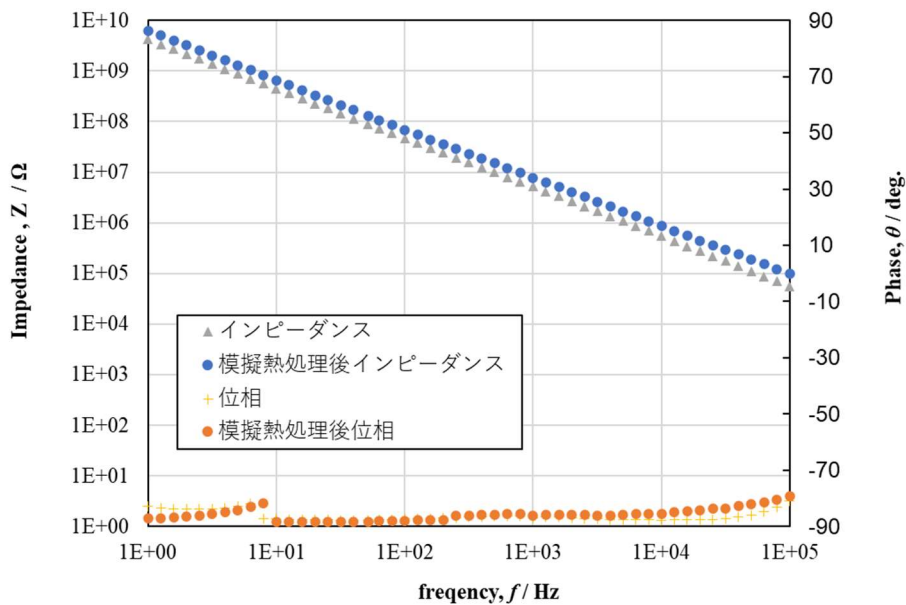


図 B-1-1-1-3 焼き詰め熱処理前後のボード曲線の変化

B-1-1-2 接着剤の選定（強度評価）

B-1-1-1 で述べたように積層体の接着剤には強度が求められる。射出成型時の熱影響により、積層した磁石が変形、剥離することが考えられたため、クリープ試験を計画した。射出成型時に磁石は片持ちで保持されることから図 B-1-1-2-1 に示す片持ち梁試験片を作製した。試験片は 10mm 角、厚さ 1mm の磁石を 3 枚積層し、その先端に 10mm 角、厚さ 40mm の炭素鋼(重さ 31.17g)のおもりを接着した。なお、接着層は 50 μm であった。このような試験片によって梁の接合根元の高荷重部分の影響を模擬した。試験片は 150°C~300°C の環境で保持し、おもり先端の変位から接着剤のクリープ変形を測定した。

図 B-1-1-2-2 は種々の温度に保持したアクリル系接着剤の HARDLOC G-55-03 とエポキシ系接着剤の Duralco NM25 の変形を示す。HARDLOC G-55-03 は 150℃、Duralco NM25 は 260℃、24 時間の暴露で変形が生じなかった。HARDLOC G-55-03 は 300℃では 2 時間の暴露で変形が生じ、12 時間でサンプルが脱落した。Duralco NM25 は 2 時間の暴露で変形が生じ、24 時間で変形が増大したものの、サンプルの脱落は生じなかった。

積層磁石は、続くロータ組み込みに向けて射出成型工程で一体化する。この時最大 150℃程度の温度に晒される。また、さらに続く焼き嵌めの加熱で 300℃に達する温度に晒される。今回、150℃では数時間の変形は担保することができ、また、焼き嵌め工程の非常に短時間の暴露であれば、HARDLOC G-55-03 も問題なく使用できると考えられた。

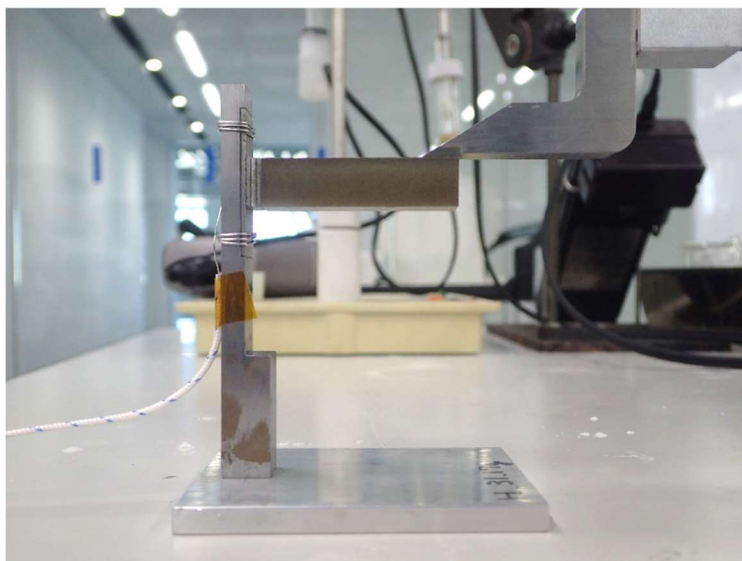


図 B-1-1-2-1 片持ちクリープ試験外観

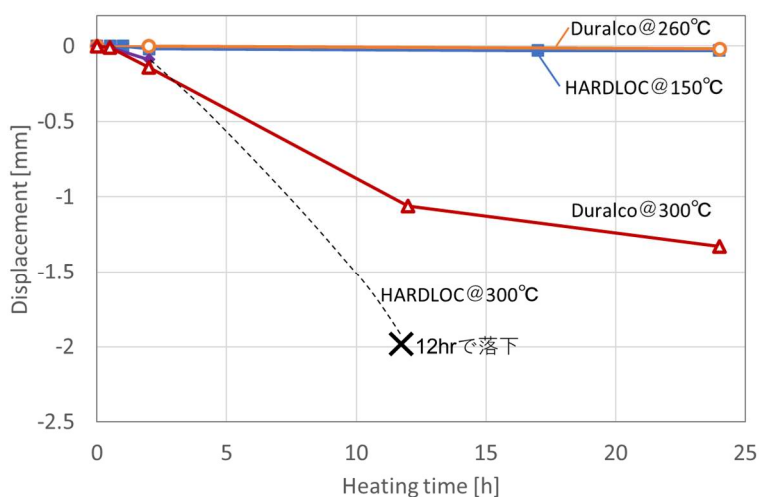


図 B-1-1-2-2 片持ちクリープ試験結果

B-1-1-3 積層磁石の試作

積層磁石では A 案、および B 案、2 種類の積層方法を検討した。それぞれの積層方法を図 B-1-1-3-1 に示す。積層において重視した点は次の 2 点である。(1)リング磁石に成形した際に、着磁容易方向が一定となること。(2)各層において磁石厚さの厚みが同じ、もしくは厚みが近い磁石を 4 枚選定して、積層体ごとの高さ方向のずれを極力小さくすること。

(1)を実現するために A 案では図 B-1-1-3-1(a)に示すように 2 種類の扇形磁石を準備した(図 B-1-1-3-1(a)では上段側を A1N、下段側を A1S と呼んだ)。A 案では周方向の磁石の継ぎ目が一致してしまい、剥離のリスクが想定されたことから、一体積層型の継ぎ目をずらした B 案も検討した。すなわち A 案は射出成型で一体化し、B 案は積層時に一体化する方法であった。B 案では図 B-1-1-3-1(b)に示すように 5 種類の扇形磁石が必要となる(図 B-1-1-3-1(a)では A1N～C1S と呼称する)。

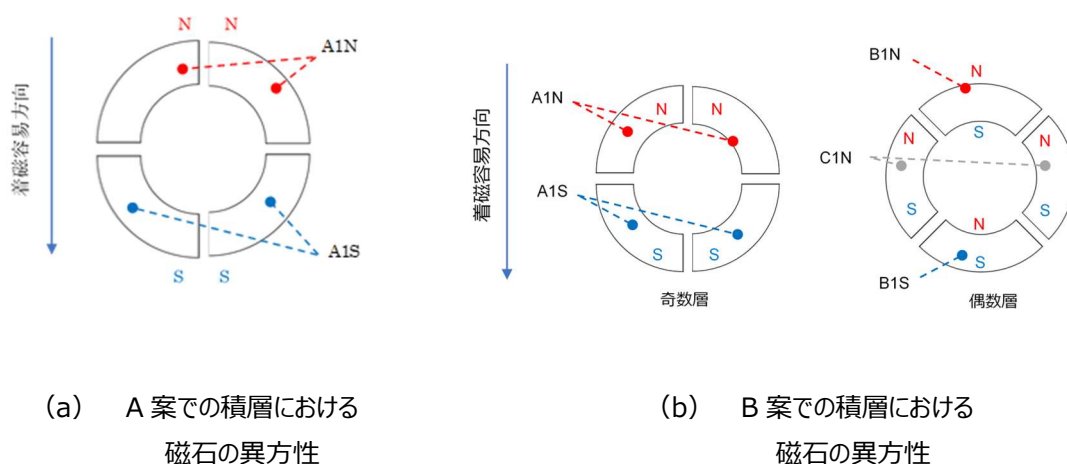


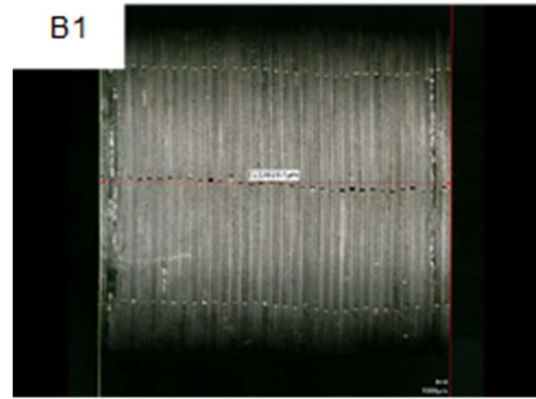
図 B-1-1-3-1 積層磁石の積層方向

(2)については、使用するすべての磁石の膜厚をマイクロメーターで計測し、それぞれの段で同じ厚さの磁石が積層されるよう積層方案を作成した。その後、以下の手順で積層を行った。作業は 2 人 1 組で実施した。①準備段階として、各磁石の容器に名称と厚さを記載する。②積層前に積層方案と差異ないか確認し、写真で記録として残す。③ゴム型に接着剤を塗布する。④ゴム型から接着剤のついた磁石を取り出し、積層する。(2 段ずつ積層して 2～3 分ほど待つ)⑤ハイトメーターで積層 + 接着層厚さの目標高さになるようにして、数秒固定し、積層させる。⑥最終層近くなったら積層体高さを計測し、積層体もしくは積層させる磁石を研磨して 37.90～38.00mm に収まるよう調整する。

このように作製した積層磁石を図 B-1-1-3-2 に示す。A 案の積層数と積層後の高さから平均接着層厚さと磁石体積率を計算すると、磁石体積率は約 91～92%であった。積層体の高さから磁石総厚さの差分から平均接着層厚さを算出したところ 0.04～0.05mm であった。また、B 案の積層数と積層後の高さから平均接着層厚さと磁石体積率を計算すると、磁石体積率は約 91～93%であった。



(a) A 案で作製した積層磁石



(b) B 案で作製した積層磁石

図 B-1-1-3-2 積層磁石の側面写真

B 案は複数の扇形磁石を用いる必要があり複雑な工程であること、A 案で十分射出成型が可能と判断できたことから、A 案で積層した磁石を用いて射出成型を行った。表 B-1-1-3-1 に射出成型条件と結果をまとめた。また、図 B-1-1-3-3 に射出成型後の積層磁石外観を示した。ダミー材で正常に射出成型できた条件であっても、積層磁石では十分に樹脂が回りきらなかった。FTA 分析から、積層磁石の内外径加工時に仮止め用のワックスを用いているためであると予想された。本ワックスは、150℃で剥がすことができ、加工後にはアセトンでワックスを除去していた。しかし、SmCo 磁石は焼結体であるため、アセトンでは完全に除去することができなかつたと考えられた。したがって、このワックスと射出成型のフェノール樹脂が反応する、もしくは、ワックスの存在そのものが金型内でのフェノール樹脂の流動性を低下させたことが、未充填部が生じた原因の一つと推定された。今回の条件では樹脂充填が達成できなかったものの、射出成型は積層磁石をロータに組み込む工程に必要な加工代、公差の確保、および積層 A 案での軸方向接着面の剥離を防止することを目的とした。特に今回、樹脂が回りきらなかった外側はロータ組み込みのための研削加工において取り除かれてしまった。すなわち、今回の射出成型においても十分機能を果たしていると判断し、本積層磁石を用いてロータ組み込みを行った。

表 B-1-1-3-1 射出成型条件と結果

サンプル	予熱温度	金型温度	結果
ダミー材 (SUS304)	170℃	180℃	成功
積層磁石 A1 (AN1、2、AS1、2)	170℃	180℃	完全に樹脂が回らず
ダミー材 (SUS304)	140℃	170℃	完全に硬化せず
ダミー材 (SUS304)	140℃	170℃	樹脂回りきらず
ダミー材 (SUS304)	140℃	170℃	成功
積層磁石 A2 (AN3、4、AS3、4)	140℃	170℃	A1 より充てん。樹脂回りきらず

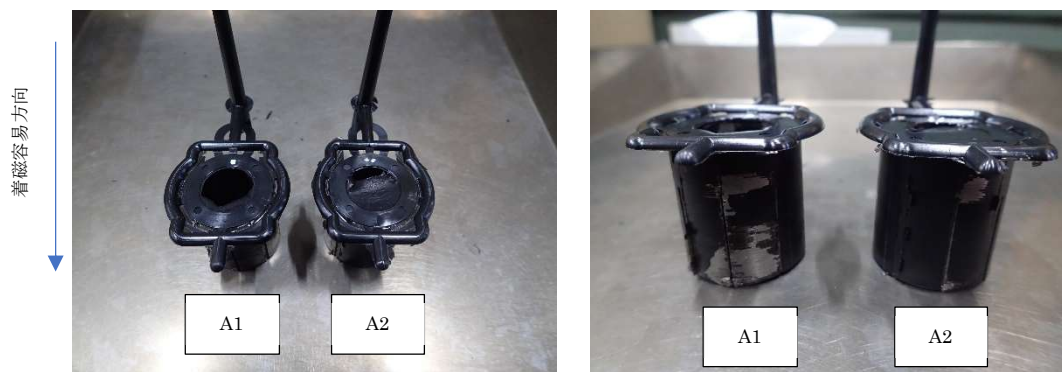


図 B-1-1-3-3 射出成型後の積層磁石 (A1 は白点 1 個、A2 は白点 2 個マーキングした)

B-1-2 積層磁石の特性評価機器試作と特性評価

成果のハイライト

- ・鉄損測定の結果、プロジェクト目標ジュール損比 $1/71$ に対して加工成型積層磁石のジュール損比は $1/70$ 、圧延型積層磁石のジュール損比は $1/58$ となった。
- ・ビッカース硬さ試験の結果、加工成型磁石と粉末圧延型磁石の測定値は文献値より典型的な脆性材料の値であることがわかった。両者は機械強度の観点から脆性材料のほぼ同等であることが示されたので、社内作製粉末圧延型の積層構造磁石はモーター搭載せず、加工成型磁石にてモーター試験を行った。

本節では、積層磁石の鉄損特性、加工成型磁石と粉末圧延型磁石の機械的強度に関して報告する。積層効果によって磁石中の渦電流がどの程度変化するか定量評価を行うことを目的とする。

B-1-2-1 計測サンプルおよび鉄損計測手法

表 B-1-2-1-1 に本計測で用意した積層磁石サンプルの仕様一覧を示す。

表 B-1-2-1-1 計測に用いた積層磁石サンプルの主な仕様

サンプル名	積層方向 寸法 [mm]	高さ方向 寸法 [mm]	着磁方向 寸法 [mm]	質量 [g]	積層磁石 厚み [mm]	接着方法	Bコイル 巻き数 [turn]
7mm バルク	7.15	7.20	7.00	2.99	7	-	22
7mm 3枚積層 絶縁	7.25	7.20	7.00	2.96	2.33	両面テープ	22
7mm 3枚積層 短絡	7.30	7.20	7.00	2.99	2.33	-	22
7mm 7枚積層 絶縁	7.55	7.25	7.00	2.91	1	両面テープ	22
7mm 7枚積層 短絡	7.35	7.25	7.10	2.89	1	-	22
3mm 6枚積層	3.35	3.45	3.15	0.30	0.5	エポキシ系接着剤	10

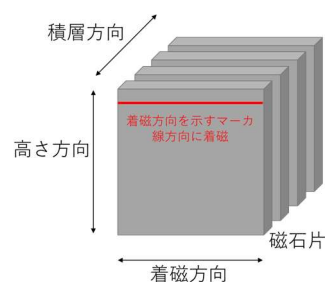


図 B-1-2-1-1 積層磁石サンプルの寸法形状の模式図

また、図 B-1-2-1-1 に積層磁石サンプルの寸法形状の模式図を示す。初めに積層磁石サンプルの作製を行い、その後、磁束密度計測用のコイル (B コイル) を巻きつけた。積層磁石サンプルはすべて未着磁の状態で行った。図 B-1-2-1-1 に示したように、積層磁石は着磁方向があらかじめ定められているため、層ごとに着磁方向を揃えるよう積層した。7mm 角の積層磁石サンプルの積層には両面テープで層間を絶縁した「絶縁」サンプルと、単純に磁石を積み上げ、外側からカプトンテープで包装し積層形状とした「短絡」サンプルの二種類を用意した。また今回、積層効果による鉄損の変化を測定するため、積層を施していないバルク磁石も比較用に用意した。その後、それぞれの積層磁石サンプルに B コイルを取り付けた。B コイルはサンプル内を通過する平均的な磁束密度の検出に用い、 $\Phi 0.2$ mm のエナメル線を試料中央の約 5 mm の範囲で着磁方向がコイル主軸となる方向に巻いた。B コイルの巻き数は、7mm サイズの積層磁石サンプルで 22 回巻、3 mm サイズの積層磁石サンプルで 10 回巻とした。

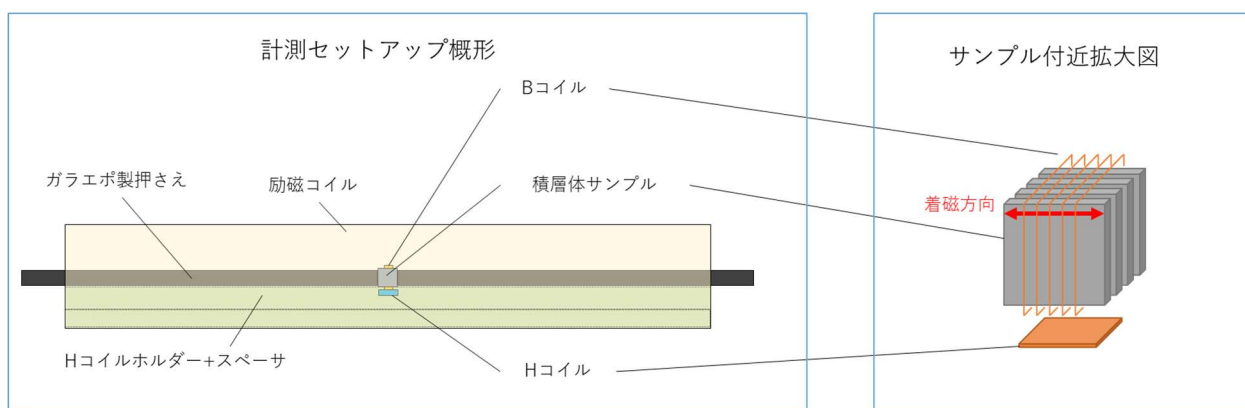


図 B-1-2-1-2 計測セットアップの模式図

図 B-1-2-1-2 に励磁に用いた空芯有限長ソレノイド、サンプル表面の磁場強度を計測する H コイルおよび B コイルのセットアップの模式図を示す。空芯有限長ソレノイドは、内寸法が 30 mm×30 mm、外寸法が 36 mm×36 mm である巻枠の長さ方向 200 mm の範囲に、 $\Phi 1$ mm の絶縁電線を 189 回巻いたソレノイドコイルを用いた。H コイルはサンプル表面を流れる磁場 H の検出に使用し、幅 5 mm、厚さ 1 mm のガラスエポキシ製の枠に $\Phi 0.04$ mm のエナメル線を長さ方向 5 mm の範囲に 0.06 mm ピッチで巻いた。H コイルはコイル断面積の実測が困難であることから、較正用ソレノイドコイルを使用しエアーターン較正を行った。使用した H コイルのエリアターンは $7.365 \times 10^{-4} \text{ m}^2$ であった。

図 B-1-2-1-3 に計測セットアップの写真を示す。



図 B-1-2-1-3 計測セットアップの様子

B コイルを巻いたサンプルを、H コイルが埋め込まれている H コイルホルダーに、カプトンテープを用いて固定した。H コイルの中心とサンプル表面からの距離は、約 0.75 mm であった。またソレノイドコイルの主軸方向を固定するために、ガラスエポキシ製の押さえ棒を用い、外側からクランプすることで、サンプルの固定を行った。これらのサンプル、コイル一式を、サンプル中心と励磁コイル中心が一致するようにスペーサで位置調整を行ったうえで励磁コイル中にセットし鉄損計測を行った。計測条件は磁束密度 B を 0.01 T とし、計測周波数 f を 500Hz～10kHz の範囲で変化させ計測を行った。

B-1-2-2 加工成型磁石の計測結果

B-1-2-2-1 鉄損の周波数依存性

各サンプルにて計測した鉄損の周波数依存性の結果を図 B-1-2-2-1 に示す。計測周波数が増加すると共に、鉄損が増加している。10 kHz の計測周波数においてバルク磁石の鉄損が一

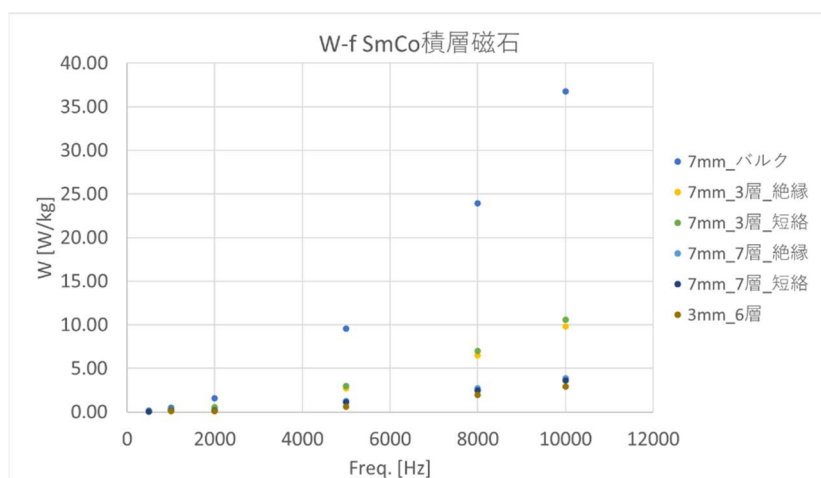


図 B-1-2-2-1 各サンプルでの鉄損値の周波数依存性

番大きく、その次に 3 枚積層磁石、7 枚積層磁石、3mm 6 枚積層の順に鉄損量が減少していることが確認できた。また、接着方法の違い(絶縁、短絡)によって鉄損は大きく変化しないということが判明した。これは短絡サンプルにおいては、励磁によって積層磁石同士が反発し、層と層の間に隙間が生じ、励磁中は空気により絶縁されたためと考えられる。

B-1-2-2-2 鉄損分離

計測した鉄損をヒステリシス損と渦電流損に分離し、積層効果による鉄損量の変化に関して更なる調査を行った。鉄損分離は以下の方法で行った。ヒステリシス損 W_h および渦電流損 W_e はヒステリシス損係数 k_h [W/(kg·Hz)]および渦電流損係数 k_e [W/(kg·Hz²)] を用いて近似的に次のようにあらわすことができる。

$$W_h = k_h f \text{ [W/kg]}$$

$$W_e = k_e f^2 \text{ [W/kg]}$$

鉄損 W はヒステリシス損失と渦電流損失からなると、全鉄損は以下のように表記することができる。

$$W = k_h f + k_e f^2 \text{ [W/kg]}$$

測定によって得られた鉄損をそれぞれの測定周波数 f で割り、 $W/f - f$ 特性のグラフを線形近似したとき、その近似曲線の切片と傾きはそれぞれ k_h と k_e となる。この関係式を用いてヒステリシス損失 W_h と渦電流損 W_e を算出した。なお、渦電流損は以下のように算出した。

$$W_e = W - W_h$$

各サンプルでの計測結果を図 B-1-2-2-2 に示す。

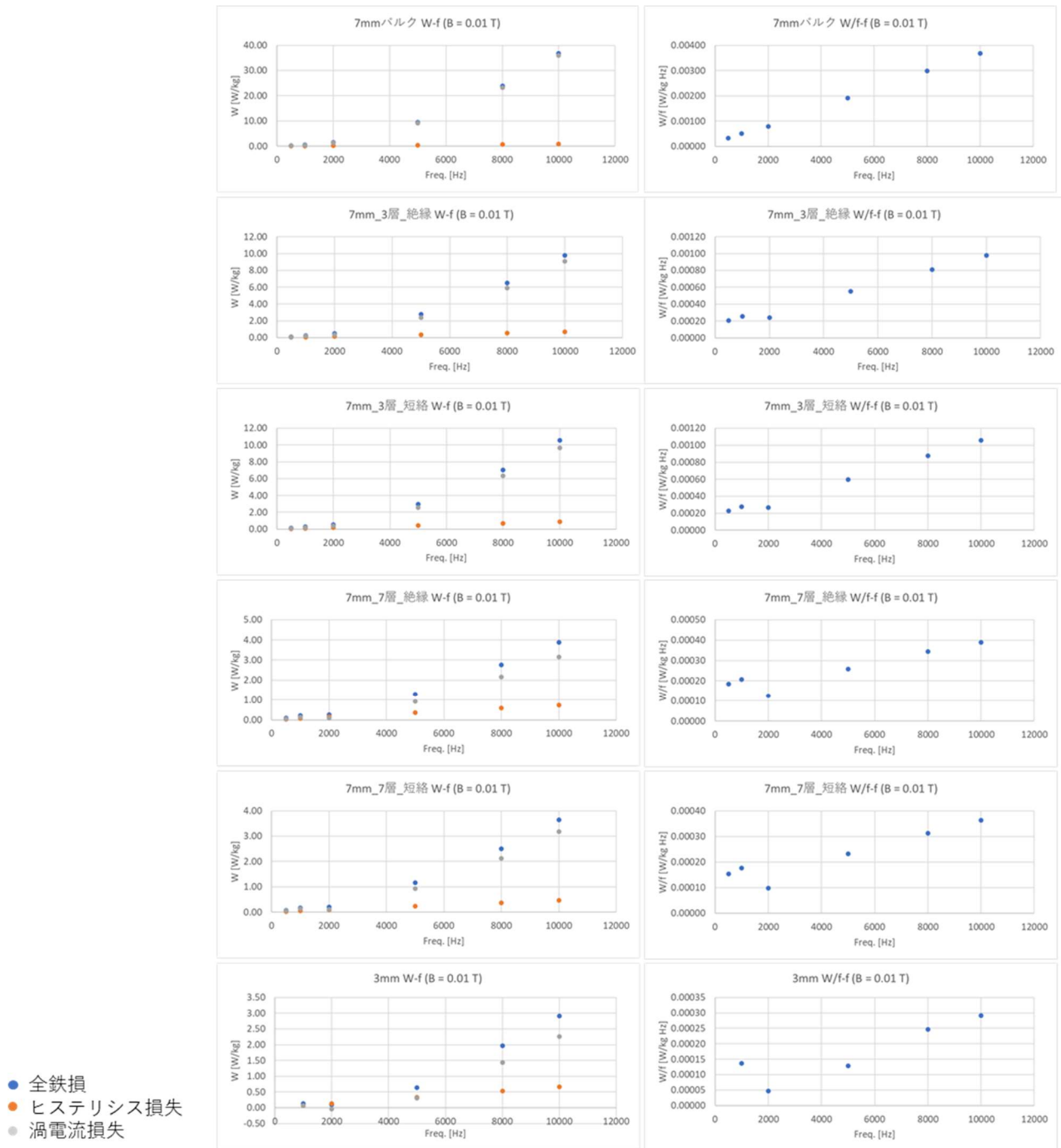


図 B-1-2-2-2 計測サンプルごとの鉄損の周波数依存性。

左側列にはサンプルごとに鉄損分離の結果から得られたヒステリシス損失、渦電流損失がプロットされている。

右側列は、鉄損を計測周波数で割った際の $W/f - f$ 特性がプロットされている。

また、表 B-1-2-2-1 に測定周波数 10 kHz での全鉄損、ヒステリシス損失、渦電流損失の比較を示す。表 B-1-2-2-1 より、積層効果によって、全鉄損に占める渦電流損失の割合が減少していることがわかった。以上により、磁石の分割によって磁石内に流れる渦電流を抑制し、鉄損を減少できることを確認した。

表 B-1-2-2-1 各サンプルの鉄損、ヒステリシス損失および渦電流損失の比較

サンプル名	W [W/kg]	Wh [W/kg]	We [W/kg]	We/W
7mm_バルク	36.78	0.80192	35.97323	98%
7mm_3層_絶縁	9.80	0.70682	9.09635	93%
7mm_3層_短絡	10.56	0.86822	9.69227	92%
7mm_7層_絶縁	3.89	0.74270	3.14617	81%
7mm_7層_短絡	3.64	0.46463	3.17486	87%
3mm_6層	2.92	0.66185	2.25469	77%

B-1-2-2-3 鉄損の分割数依存性

図 B-1-2-2-3 に測定周波数 10 kHz 時の絶縁サンプル(7mm_バルク、7mm_3層_絶縁、7mm_7層_絶縁、3mm_6層)の鉄損を縦軸、積層磁石の厚みの逆数の値を横軸に取ったプロットを示す。サンプルの厚みが減少するにつれ、鉄損も減少していることが確認された。

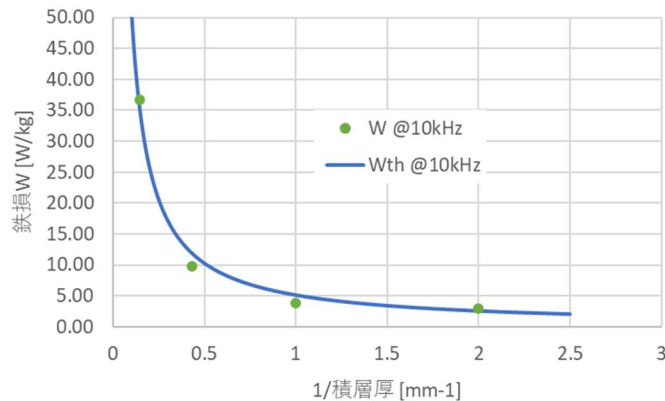


図 B-1-2-2-3 計測周波数 10 kHz の時の各サンプルの鉄損 W と積層厚の逆数の相関図

このプロットから非線形最小二乗法を用いて、回帰曲線を算出した。近似関数は二つのパラメータ a 、 b を用いて以下の式を用いた。

$$y = \frac{a}{r^{-1}} + b$$

ここで r は積層磁石の厚さを表している。回帰分析の結果 $a = 5.13$ 、 $b = 0$ と求められた。この回帰曲線を用いると、積層磁石の厚さが 0.1 [mm] の時、鉄損量 W が 0.51 [W/kg] となり、分割前のバルク磁石の鉄損量 35.9 [W/kg] のおよそ 1/70 になると予想された。また、バルク磁石の鉄損計測に関して、計測再現性を確認するために、サンプルのセットアップから鉄損量測定を行うまでの一連の計測を独立に 3 回行い、どの程度、計測結果にばらつきがあるかを計測した。表 B-1-2-2-2 に計測結果を示す。3 回の計測において最大値と最小値の差が平均値に対し最大 6.2 % 以内に収まっていた。

表 B-1-2-2-2 7mm_バルク磁石の鉄損測定結果

計測周波数 [Hz]	1回目	2回目	3回目	平均値	計測間の差	割合
500	0.16	0.16	0.15	0.16	0.01	6.0%
1000	0.52	0.51	0.49	0.50	0.03	5.4%
2000	1.57	1.55	1.48	1.53	0.10	6.2%
5000	9.55	9.48	9.04	9.35	0.51	5.5%
8000	23.91	23.73	22.64	23.43	1.27	5.4%
10000	36.78	36.64	35.06	36.16	1.72	4.8%

B-1-2-3 社内作製の圧延積層磁石の測定結果

社内において7mm 角サイズの圧延積層磁石を試作した。そこで、「磁石サンプルを着磁した際の鉄損の変化」、「IHI 製積層磁石サンプルの鉄損計測」について検討を行った。

IHI 製積層磁石サンプルの鉄損計測

社内において7 mm ×7 mm の面積で0.5 mm 厚の板状磁石サンプルを製作し、14 枚分重ね積層磁石サンプル(以下7mm_14 枚_短絡サンプル, とする)を製作した。この積層磁石サンプルを用いて、これまでと同様にバルク磁石に対して分割積層によりどのように鉄損が変化するか評価を行った。表 B-1-2-3-1 に計測結果を示す。

表 B-1-2-3-1 より、7mm_14 枚積層_短絡サンプルでは10 kHz において22.34 W とバルク磁石より小さな鉄損量が計測されたが、この値は他の分割磁石に比べてかなり大きな値となっていた。鉄損分離を行い、ヒステリシス損、渦電流損に分離した結果、7mm_14 枚積層_短絡サンプルでは、鉄損に占める割合としてヒステリシス損が支配的であった。積層分割によって減少が期待される渦電流損のみを比較した場合、2 kHz 以上の計測周波数においては1/18.3 - 1/58.0 まで減少していることが判明した。

表 B-1-2-3-1 7mm_バルク磁石および7mm_14 枚_短絡サンプルの鉄損計測結果比較

計測周波数 [Hz]	7mm_バルク			7mm_14層_短絡			渦電流損の減少率
	鉄損 [W]	ヒステリシス損 [W]	渦損 [W]	鉄損 [W]	ヒステリシス損 [W]	渦損 [W]	
1000	0.52	0.08	0.44	2.16	2.04	0.12	1/3.7
2000	1.57	0.16	1.41	4.18	4.08	0.10	1/14.0
5000	9.55	0.40	9.15	10.35	10.19	0.16	1/58.0
8000	23.91	0.64	23.27	17.56	16.30	1.26	1/18.5
10000	36.78	0.80	35.97	22.34	20.38	1.96	1/18.3

B-1-2-4 加工積層磁石と社内作製圧延磁石の機械強度の検討

本プロジェクトの方針としてモーター試験については、加工成型と粉末圧延薄型磁石層の機械特性が同等であることを示して行うことになった。本項では、加工成型磁石で行うことになった。本磁石は典型的な脆性材料のため、殆ど伸びずに破断に至り、引張試験、クリープ試験などによる定量的な評価が困難である。そこで、ビッカース硬さ試験を行った。その結果、加工成型磁石は Hv551.9 (N=3)、粉末圧延型磁石は Hv670.0 (N=3)となった。ビッカース硬さ試験の結果、粉末圧延型磁石の硬さの値が文献値¹⁾に近いことが分かった。両者は機械強度の観点から典型的な脆性材料の範囲となり、ほぼ同等であると判断できた。したがって社内作製粉末圧延型の積層構造磁石はモーター搭載せず、加工成型磁石にてモーター試験を行った。

B-2 高速回転モーターの試作

成果ハイライト

- ・積層磁石を採用したモーターシステムでは、電流密度を向上させる必要があることから、モーターステータコア形状を変更する必要があった。そのため、モーターステータコア形状の変更に伴う設計改造を実施した。
- ・モーターロータの製作とモーターステータの製作を平行して実施し、部品類を集結した上で、評価試験モーターシステムの全体組立てを実施した。

B-2-1 ロータ／モーター設計検討

本項では、評価試験モーターシステムの機械設計について記述する。

前述したとおり、積層磁石を搭載したモーターシステムとして評価試験を実施し、損失等を把握することで、積層磁石の性能を評価することが目的であった。なお、IHI で考案した積層磁石を採用しなかった。市販品磁石を薄肉化したものを積層することで、積層による効果を評価した。

評価試験モーターシステムは、IHI ですでに開発済みのブローモーターシステム(IHI ブローモーターシステム)を流用する方針とした。IHI ブローモーターシステムとしてすでに試験評価を進めており、損失等のデータが整備されていることから、損失等の差分を抽出しやすく、比較評価が容易であったためである。ただし、積層磁石を採用したモーターシステムでは、電流密度を向上させる必要があることから、モーターステータコア形状を変更する必要があった。そのため、モーターステータコア形状の変更に伴う設計改造を実施した。

具体的な改造の要点は以下(1)～(4)であり、これを満足するように各設計項目(表 B-2-1-1)を検討した。

- (1) モーターロータに内蔵する磁石の積層磁石への変更
- (2) モーターステータコア外径のサイズアップ
- (3) モーターステータコアサイズアップに伴うケース構造の見直し
- (4) モーターステータコアサイズアップに伴うテストベンチへの取合い見直し

また、前述したとおり、モーターロータの遠心力に対するロータ強度を評価するため、ロータ単体の回転試験も実施した。本試験に必要な回転試験用ロータの設計も実施した項目は、外部専門業社の回転試験設備との取合部設計である。得られた評価試験モーターシステムを図 B-2-1-1 に示す。

表 B-2-1-1 設計項目

項目	名称	作成図面	数量
1	評価試験モーターシステム組立図 および組立要領図	全体組立図	1 式
2	ロータ SUB ASSY および組立要領図	部分組立図、および部品図	1 式
3	ステータ SUB ASSY	部分組立図、および部品図	1 式
4	モーターシステム組立用治具	組立用治具	1 式
5	ロータ組立用治具	組立用治具	1 式
6	テストベンチ用構成図	全体組立図、および部品図	1 式
7	回転試験用ロータ ASSY	全体組立図、および部品図	1 式

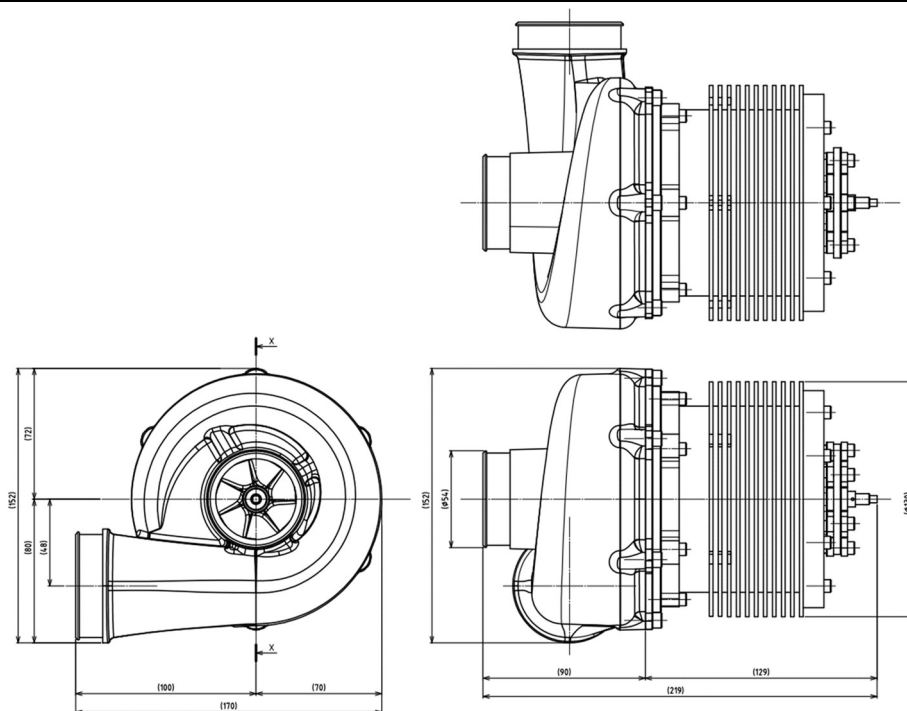


図 B-2-1-1 設計した評価試験モーターシステム

B-2-2 ステータ／モーター設計検討

永久磁石同期モーターのマグネットトルクは以下の式²⁾から求められる。

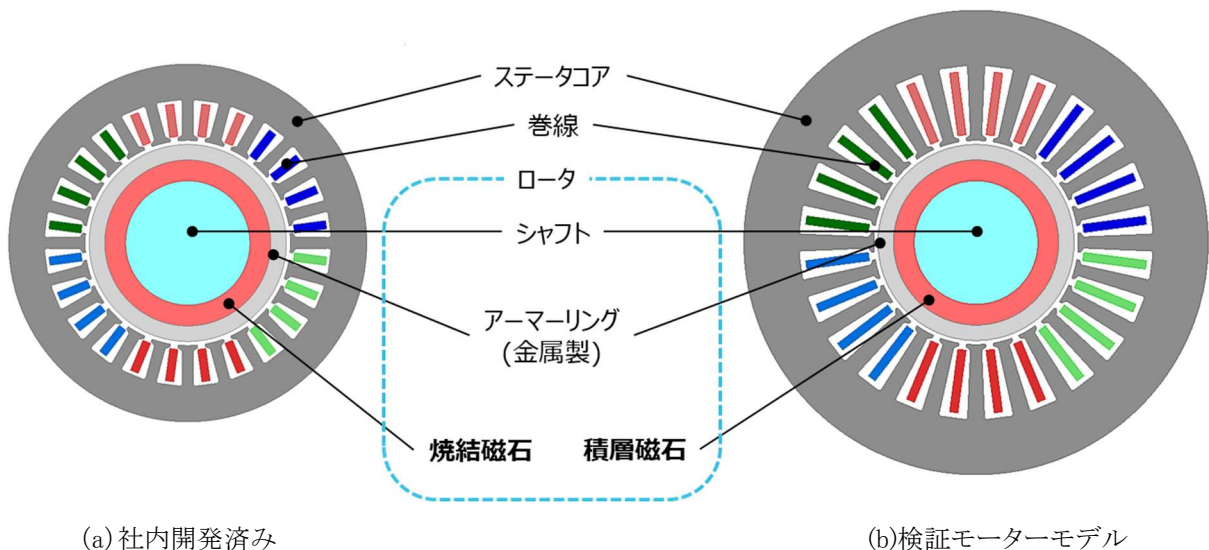
$$T = P_n \psi_a I_a \cos \beta = P_n N \phi_a I_a \cos \beta$$

ただし、 P_n :極対数、 ψ_a :dq軸の鎖交磁束量(実効値)、 I_a :dq軸の電流(実効値)、 β :dq軸の電流位相角、 N :ターン数、 ϕ_a :dq軸の磁束量(実効値)である。

社内開発済みモーターは2極機の表面磁石形同期モーター(SPMSM: Surface Permanent magnet Synchronous Motor)であったため、極対数極対数 P_n は1、電流位相角 β は0degとなった。使用している焼結磁石を積層磁石に置換するだけの場合、積層磁石は焼結磁石に対して残留磁束密度が低下する。よって、SPMSMで考えると磁束量 ϕ_a (もしくは鎖交磁束量 $\psi_a (= \phi_a N)$)が低下してトルクが低下することになる。トルクを維持するためには電流値を増やす必要があったが、電流増加によって損失(銅損)も増加してしまう。85krpm以上で連続駆動させるためには、銅損を下げる必要があった。

銅損は抵抗値 R_a と電流値 I_a の二乗の積で決まるため、銅損を下げるには電流値と抵抗値をそれぞれ減らす必要があった。電流値を下げる方策として、ターン数を増やして鎖交磁束量を12.5%増加させた。抵抗値を下げる方策としては、導体断面積も25%増加させた。これらにより電流値を約30%抑制した。なお、ターン数と導体面積はそれぞれ直流電源とモーター長(コイルエンド高さ)とコア積厚の和)の制限を受けており、それぞれの最大許容値となっている。

前述の方策を実現させたモーターステータの外観を図B-2-2-1に示す。表B-2-2-1にはモーター仕様の一覧を示す。ステータ外径を $\Phi 70\text{mm}$ から $\Phi 90\text{mm}$ まで増やし、それに伴ってスロットの深さを深くして導体を挿入する面積(=スロット面積)を確保した。巻線を模擬しているモデルが長細くなっていることからスロット深さが深くなっていることを確認できた。



図B-2-2-1 モーターステータ外観

表B-2-2-1 モーター仕様一覧

		社内開発品	検証用モーター
ステータ外径	mm	Φ70	Φ90
ステータ内径	mm	Φ36.6	←
ロータ外径	mm	Φ35	←
ステータコア		0.2mm材料	←
アーマーリング		非磁性材料	←
磁石		焼結磁石	積層磁石
シャフト		磁性材料	←

B-2-3 ロータ／モーター製作(焼き嵌め、バランス調整、モーター組み上げ等)

本項では、評価試験モーターシステムの製作/組立てについて記述する。

前項で設計した組立要領に基づき、述したとおり、評価試験モーターシステムの製作/組立を実施した。

具体的には、モーターロータの製作とモーターステータの製作を平行して実施し、部品類を集結した上で、評価試験モーターシステムの全体組立てを実施した。

モーターロータの製作手順を以下に示す。

- (1) 部品図に基づき、機械加工等によるモーターロータの構成部品の製作
- (2) 勘合、接着等による構成部品の部分組立て
- (3) 部分組立した部品に対し、焼嵌勘合部の研磨加工
- (4) 焼嵌め作業
- (5) 仕上げ加工
- (6) 回転バランス確認・バランス取り加工

モーターステータの製作手順を以下に示す。

- (1) 部品図に基づき、機械加工等によるモーターステータの構成部品の製作
- (2) モーターステータコアシートの積層、ワイヤカットによる形状加工
- (3) モーターステータコアへのコイル巻線
- (4) ケースへのモーターステータコアの焼嵌め

評価試験モーターシステムの製作/組立て手順を以下に示す。

- (1) ケースへの各種部品の組み込み
- (2) モーターロータの組み込み
- (3) 空気軸受部の隙間調整

- (4) インペラの組付け
- (5) インペラハウジングの組付け
- (6) テストベンチ取り合い部品の組み付け
- (7) 計測センサの組付け

作製した評価試験モーターシステムの外観を図 B-2-3-1 に示す。



図 B-2-3-1 作製した評価試験モーターシステムの外観写真

B-3 高速回転モーターの動作実証と複合構造磁石成立性の課題抽出

成果ハイライト

・スピントスト前後のバランスマシンによる軸の釣り合いに明らかな変化は見られなかった。また、試験運転中、振動変位(回転周波数成分)が急変することもなかった。以上から、積層構造磁石モーターロータの強度は問題ないと判断した。

・91krpm で各部の温度が静定するまで運転を実施した結果、特に異常は確認されなかった。また、モーター損失の計測値と解析値の差異は 10%以内であり、想定外の損失は発生していないと判断した。以上から、積層構造磁石モーターを高速回転で運転させることに成功したと判断した。

・磁石積層効果により積層数を 74 枚とすることで、磁石部で発生する損失量が 2.3%まで激減することを示した。

さらにアーマーリングをさらに薄くする、あるいは非電気伝導性の CFRP に変更することにより渦電流を低減することができれば積層磁石による損失抑制効果がより顕著になる。

B-3-1 スピントスト方法、結果、まとめ、考察／課題抽出

B-3-1-1 目的

積層構造磁石モーターロータを高速で回転させ、強度に問題がないことを確認する。

B-3-1-2 試験対象

スピントスト用モーターロータ(図 B-3-1-2-1 参照)

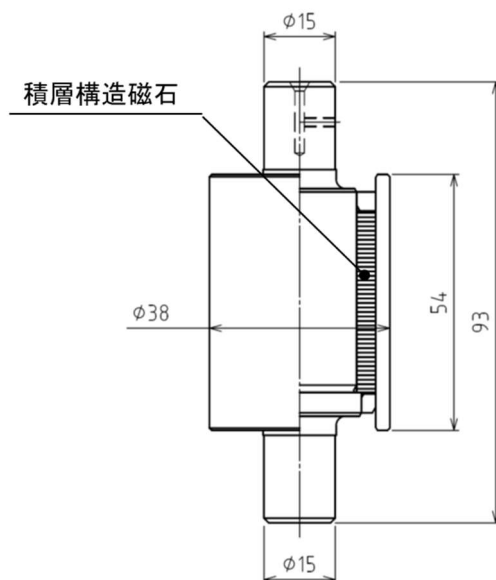


図 B-3-1-2-1 スピントスト用モーターロータ

B-3-1-3 試験日・場所

試験日 :2022年2月18日

試験場所 :丸和電機株式会社(千葉県柏市正連寺 253)

B-3-1-4 設備

B-3-1-4-1 スピンテスター

スピントストに使用した丸和電気株式会社所有のスピントスター外観を図 3-1-4-1 に示す。



(a) 設備外観

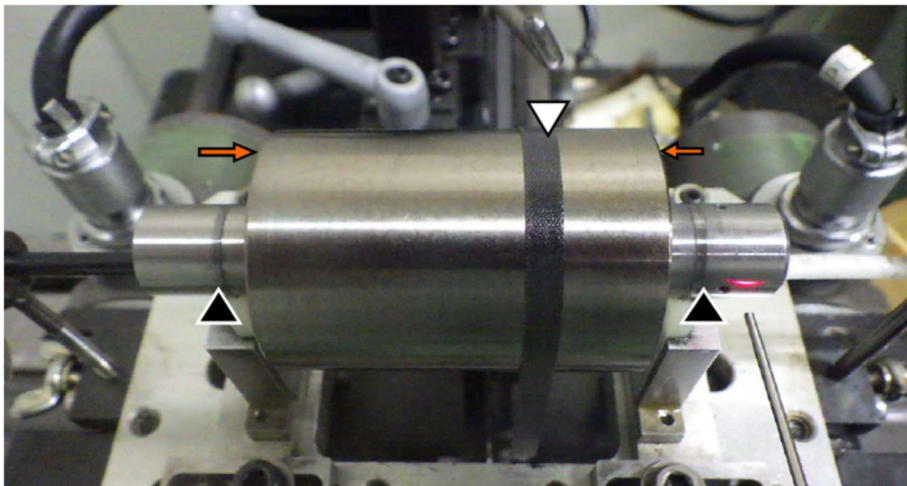


(b) 供試体組付け状況

図 B-3-1-4-1 スピントスター

B-3-1-4-2 バランスマシン

スピントストで使用した丸和電気株式会社所有のバランスマシン外観を図 3-1-4-2 に示す。



B-3-1-4-2 バランスマシン

B-3-1-5 試験方法

スピントテストの試験手順を図 B-3-1-5-1 に模式的に示す。B-3-1-4 で示したスピントスターを用いて、試験回転数、50krpm、85krpm、91krpm、100krpm(2回)と順番に負荷し、各回転数10分間保持することで評価試験を実施した。また試験の前後にバランスマシンによる軸の不釣り合い計測を行い、不釣り合いに変化がないこと確認した。また、試験運転中に振動変位の回転周波数成分を監視し、途中で急変しないか確認した。

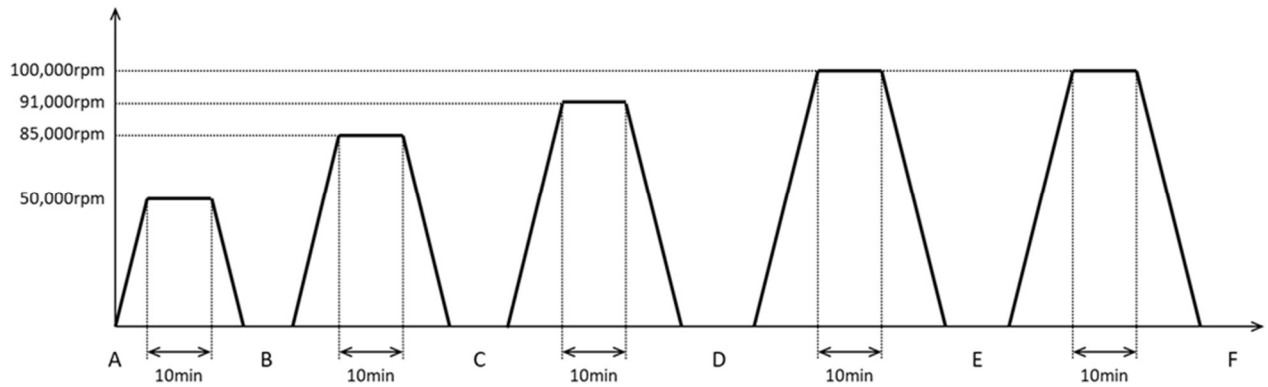


図 B-3-1-5-1 スピントテスト手順

B-3-1-6 試験結果

B-3-1-6-1 不釣り合い

表 B-3-1-6-1 にスピントテスト前後のバランスマシンによる軸の不釣り合いの変化を示す。計測は、毎回 3 回ずつ実施した。ただし、100krpm の 2 回目の運転後は、4 回計測を行った。スピントテスト前後の不釣り合いに明らかな変化は見られなかった。

表 B-3-1-6-1 不釣り合い

		スピントテスト前	50krpm 運転後	85krpm 運転後	91krpm 運転後	100krpm 運転後	100krpm (2回目) 運転後	単位
不釣り合い(右側)	位相 1	342	354	291	306	322	336	。
	位相 2	346	346	328	305	322	318	
	位相 3	2	344	287	298	330	324	
	位相 4	—	—	—	—	—	335	
	質量 1	10	8	17	10	10	4	mg
	質量 2	8	8	18	14	5	8	
	質量 3	9	8	11	11	9	13	
	質量 4	—	—	—	—	—	4	
不釣り合い(左側)	位相 1	353	357	319	314	348	4	。
	位相 2	354	348	358	327	350	343	
	位相 3	12	345	316	321	356	350	
	位相 4						6	
	質量 1	10	7	14	9	8	3	mg
	質量 2	8	7	16	10	4	7	
	質量 3	8	7	9	8	8	12	
	質量 4	—	—	—	—	—	4	

B-3-1-6-2 振動変位

図 B-3-1-6-1 にスピントテスト中の振動変位の回転周波数成分の変化を示す。スピントテスト中、急変することはなかった。

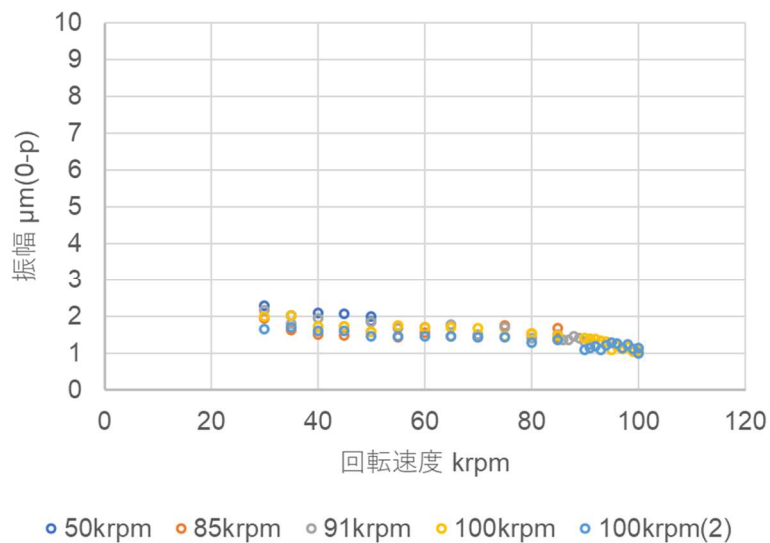


図 B-3-1-6-1 振動変位(回転周波数成分)

B-3-1-7 考察

スピントテスト前後の不釣り合いに明らかな変化は見られなかった。また、試験運転中、振動変位(回転周波数成分)が急変することもなかった。以上から、積層構造磁石モーターロータの強度は問題ないと判断した。

B-3-2 高速回転モーター試験方法、結果、まとめ、考察/課題抽出

B-3-2-1 目的

評価試験モーターシステムに積層構造磁石を搭載したロータ(図 B-3-2-1)を組み込み、評価試験モーターシステムが高速で運転可能であることを示す。また得られた課題を抽出する。



図 B-3-2-1 積層構造磁石モーターロータ
(アーマーリング焼き嵌め前。インペラ、スラストカラー等は外した状態)

B-3-2-2 対象機器

評価試験モーターシステムによる積層構造磁石モーター内臓電動ブロワシステム(以下、電動ブロワ)を図 B-3-2-2 に示す。

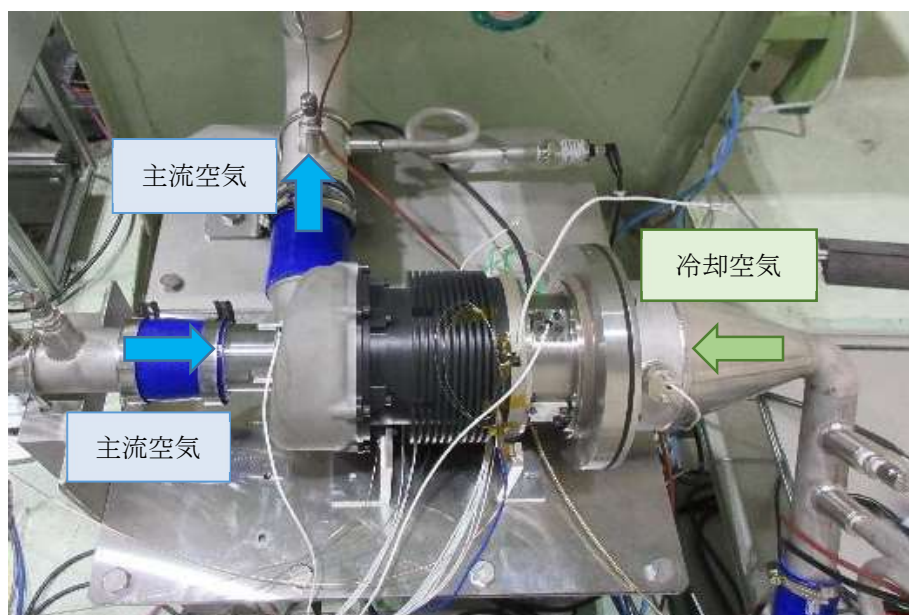


図 B-3-2-2 電動ブロワ外観(主に評価試験モーターシステム)

B-3-2-3 試験日・場所

試験日 2022年2月23日、28日

試験場所 (株)IHI 横浜事業所

B-3-2-4 試験設備

図 B-3-2-4 に電動ブロワを組み込んだ流体試験設備の外観を模式的に示す。これにより、主に評価試験モーターシステムの出力の性能を評価する。試験設備としてはこの他に各種システムを制御するための設備がある。

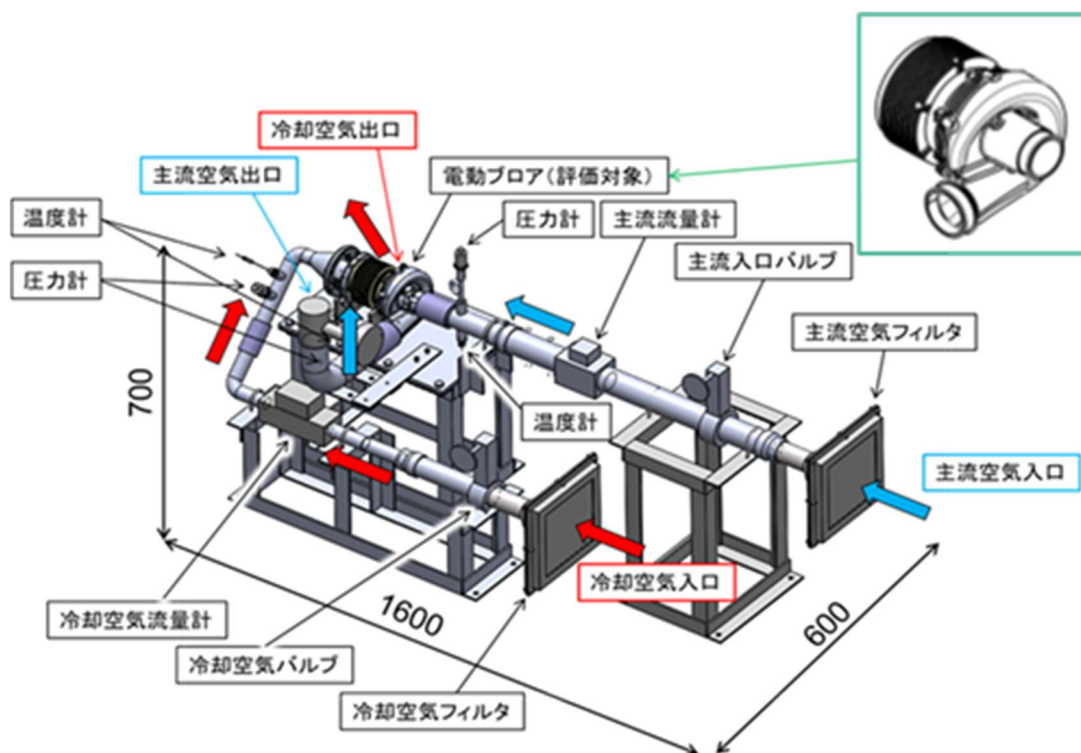


図 B-3-2-4 試験設備外観

B-3-2-5 試験方法

各種計測値(温度・振動・電流)が制限値以下であることを確認しながら、電動ブロワを最高回転速度 91krpm まで昇速させる。

B-3-2-6 試験結果

B-3-2-6-1 部温度・軸振動

図 B-3-2-6-1 に電動ブロワを 91krpm で運転した際の各部の温度のトレンドデータを示す。各部の温度が安定していることがわかった。また、軸振動の監視も行ったが、試験中、過大な振動が発生することはなかった。

B-3-2-6-2 モーター損失

図 B-3-2-6-2 にモーター損失の計測値と解析値の比較結果を示す。モーター損失の計測値は、モーター出力の計測値とフリーラン損失の差から算出した。一方、モーター損失の解析値は銅損、ステータ損失、ロータ損失の総和であり、それぞれは以下のような手法から算出した。

- ・銅損 : 抵抗 (R) と電流 (I) から 3 相分の銅損 ($3RI^2$) を算出
- ・ステータ損失 : 磁場解析からステータでの鉄損を算出
- ・ロータ損失 : 磁場解析からロータでの渦電流損失を算出

モーター損失の計測値と解析値の差異は 10% 以内であり、想定外の損失は発生していないと判断した。

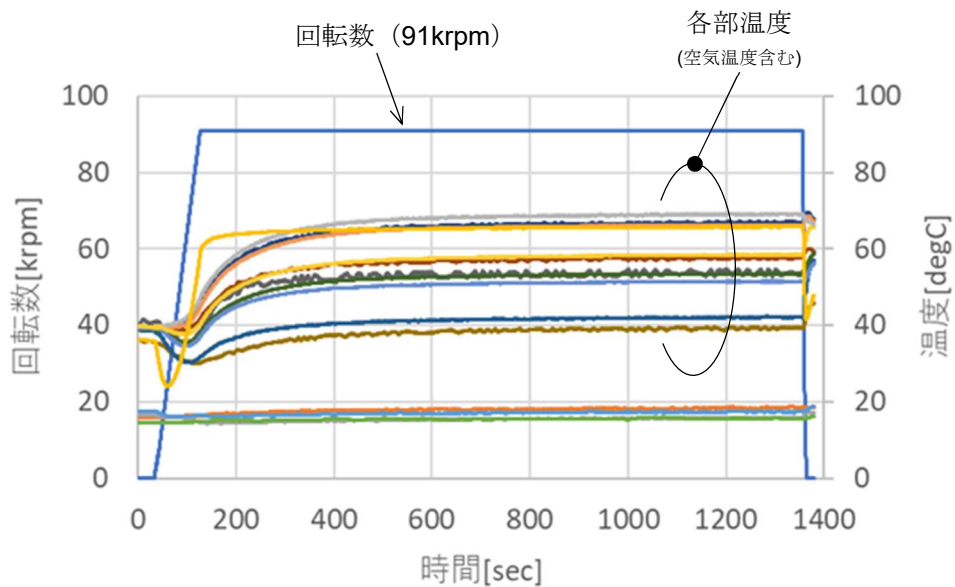


図 B-3-2-6-1 運転中の電動ブロワ各部の温度変化

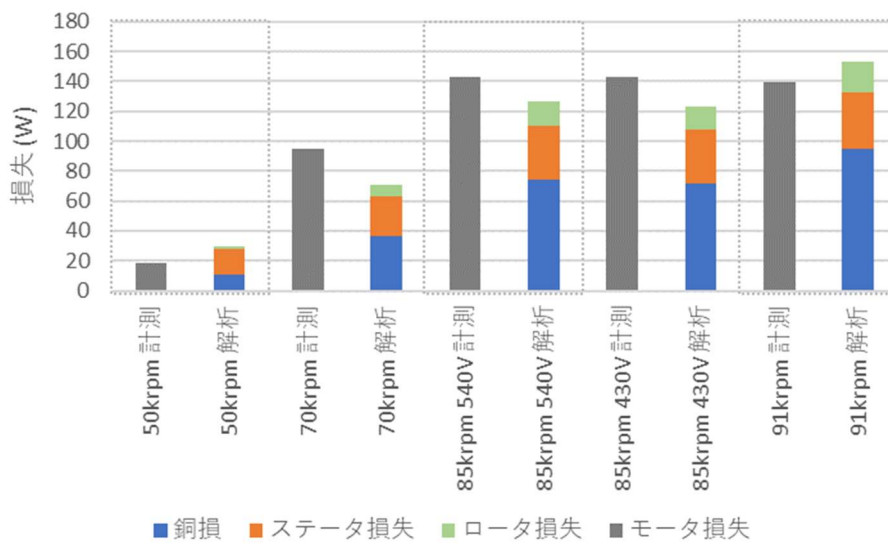


図 B-3-2-6-2 モーター損失

B-3-2-7 まとめ

91krpm で各部の温度が静定するまで運転を実施した結果、特に異常は確認されなかった。また、モーター損失の計測値と解析値の差異は 10%以内であり、想定外の損失は発生していないと判断した。以上から、積層構造磁石モーターを高速回転で運転させることに成功したと判断した。

B-3-3 高速回転モーター解析

高速回転モーターへ積層構造磁石を適用する効果は、3D 磁場解析を用いて検証した。解析諸元は以下の通り。

1. 解析規模削減のため、積層磁石の 3 層分のみモデル化(図 B-3-3-1 参照)
3 層分の渦電流損失から実際の積層枚数の損失を算出する。
2. ステータコア端面を境界面
端効果の影響は軽微と仮定して、ステータコア端面を境界面に設定
3. 接着層は未考慮
解析ツール上は磁石の積層面に絶縁設定をすることで、積層磁石の効果を再現
4. 磁石特性は積層磁石の実測値を使用
接着層が再現されないことによって、解析モデルと実測で乖離が生じるが、積層磁石の磁石特性を使用することで解析誤差を小さくするようにした。
5. 保護管部は渦電流の解析対象外
正味、非磁性材料かつ絶縁材料の材料と仮定

積層磁石による渦電流低減効果を確認するため、バルク磁石(=分割なし)を用いた解析も実施した。それらの解析結果を表 B-3-3-1 に示す。バルク磁石と積層磁石の同出力時の渦電流損失を比較すると、渦電流損失を 97.7%低減(ジュール損比換算 1/43)できていることが確認できた。損失低減目標値(98.6%)(ジュール損比換算 1/71)に対しては、0.9%足りない結果となった。

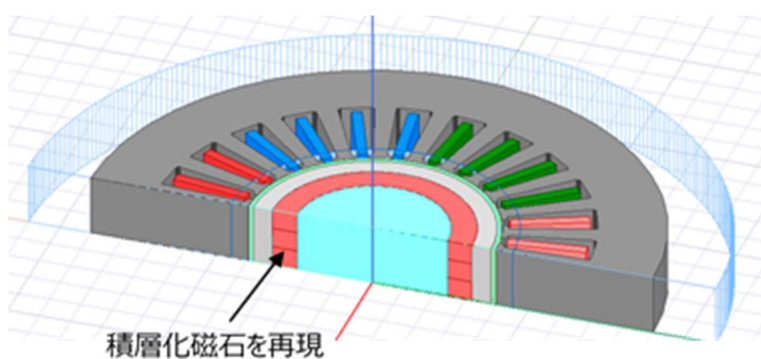


図 B-3-3-1 3D 磁場解析モデル

表 B-3-3-1 バルク磁石と積層磁石の結果比較

		バルク磁石	磁石積層 (0.5mm)
解析次元		3D	3D
分割数		1	74
トルク	mNm	524	527
磁石損失	W	1.08E+00	2.47.E-02
低減率	%	-	-97.7

次に、解析結果が目標値の低減効果よりも下がった要因について考えた。目標値は要素モデルの低減効果を算出しており、図 B-3-3-2 に示すように要素モデルの損失低減量から逆算して磁石の積層数を 74 とした。しかし、損失の低減効果は形状によっても異なる。リング磁石を簡易モデル化した特性も図 B-3-3-2 に併記した。このモデルに従うと、積層数が 74 枚のときの損失は 0.0184 となり、損失低減効果が下がることが確認できた。損失量を 0.014 まで下げる場合は、積層枚数を 100 枚以上にする必要があった。図 B-3-3-3 にはバルク磁石の時の渦電流分布を示す。このコンターから渦電流はスロット開口部による磁束変化によって生じていることが分かった。図 B-3-3-2 での損失低減予測は単一周波数(駆動周波数)のみを考慮したモデルとなっていた。しかし、実際は単一周波数に加えて、スロット開口部によって生じる空間高調波成分が含まれていた。

以上より、本解析モデルにおいて 0.9%低減量が減少した要因は、磁石形状や磁石周辺の磁束変化や空間高調波によるものだと考えられた。

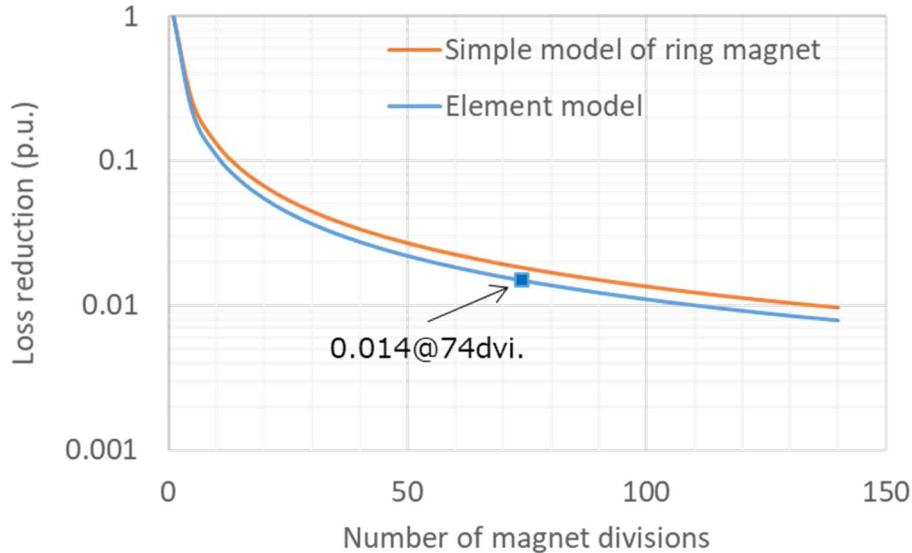


図 B-3-3-2 積層磁石化による損失低減量予測

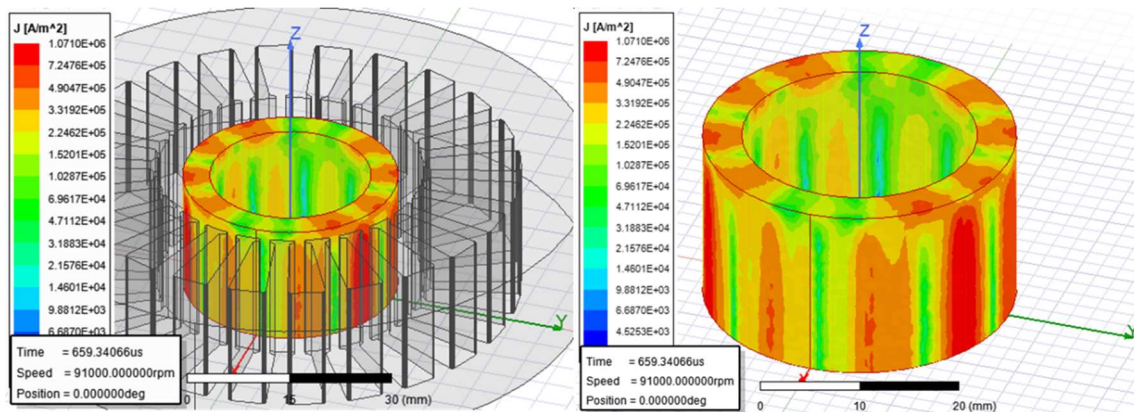


図 B-3-3-3 磁石部での渦電流密度コンターマップ

目標の低減量には達しなかったが、本結果は積層磁石の低減効果を否定するものではなく、積層数を 74 枚とすることにより磁石部で発生する損失量が 2.3%まで激減することを示していた。

また、本検討では磁石とステータとの隙間が大きいいため、損失量(1W)が非常に小さくなり、モーター全体でみたときの影響は軽微となっていた。しかし、材料の技術革新によって保護管部を薄く、渦電流が小さくできるようになると、ステータと磁石の隙間は必然的に小さくなる。その場合、磁石部での渦電流損失効果は指数的に増加することになり、積層磁石による損失抑制効果がより顕著になると考えられた。

参考文献

- 1) Hubin Luo et al., "Plasticity without dislocations in a polycrystalline intermetallic", *NATURE COMMUNICATIONS* (2019) 10:3587 <https://doi.org/10.1038/s41467-019-11505-1>
- 2) 武田 洋次ら, "埋込磁石同期モーターの設計と制御", オーム社, 2007

4. 成果の実用化に向けた取組及び見通しについて(テーマ B1:株式会社 IHI)

4.1 成果の実用化に向けた取組及び見通しについて

- 1) 本研究開発はチャレンジングかつ先進的な開発の結果として、技術成立性に一定の目途は得られたものの、目標を実現できない限界性能があるという結果になった。限界性能の打破に向けてはさらなる先進要素技術の探査・技術成立性向上の開発が必要であり、追加の検討期間が必要と考えられる。およそ5年程度の再構築・検討期間を要すると考える。
- 2) 本研究開発から得られた技術成果から、既存の手法である加工磁石においては、モーター性能評価まで本開発で完了しており、モーター試作に必要な手法、具体的には協力関係を通した国内メーカーでの試作体制を築くことも必要である。既存の手法である加工磁石による試作体制を整備しつつ、限界性能の打破に向けた先進要素技術の探査・技術成立と合わせて、製品に向けた成立性向上に取り組む必要がある。
- 3) これらの限界性能を打破する先進要素技術や、国内メーカーの協力体制や技術成立性

向上の開発をクリアし、製品への適用・事業化に向けた再設計が必要である。再設計・製品化期間は見通しが難しいものの、従来通りで据え置くと5年の期間となる。

- 4) およそこれらの期間を合計し、10年後の2032年頃の市場を目指し再構築するものと考ええる。

4.2 まとめ

本研究開発の結果として得られた限界性能については、限界性能を打破する新たな要素技術開発の立案・実行を通して破壊的なイノベーションが可能か、継続的に検討する必要がある。また、得られた技術成果や適用先の検討を経て、国内試作体制の構築や適用機種への再設計、適用開発などを通して実用化に向けて準備していく必要があると考える。

添付資料(テーマ B1:株式会社 IHI)

【外部発表】リスト例

(a) 学会発表・講演

番号	発表者	所属	タイトル	会議名	発表年月
1	米山 夏樹	IHI	高速回転モーターにむけた圧延を利用した Sm 系薄型磁石の開発	日本金属学会春季講演大会第 170 回講演会	2022 年 3 月 15 日

【3】 研究開発項目①-2

重希土類を使用せず、供給途絶懸念のあるレアアースの使用を極力減らす、又は使用しない高性能新磁石材料を探索するための新しい磁石開発手法の開発

国立研究開発法人産業技術総合研究所、国立研究開発法人物質・材料研究機構(テーマA2)

1. 事業の位置付け・必要性について(テーマA2):事業全体の I 章参照
2. 研究開発マネジメントについて(テーマA2):事業全体の II 章参照
3. 研究開発の成果と達成状況(テーマ A2)

[1] 単ロール法によるプロセスデータを中心としたデータ駆動型材料開発

(国立研究開発法人産業技術総合研究所)

効率よくデータ駆動型材料開発を行うための不足のない大量データセットの構築を目的に、単ロールを出発原料としたSmFe_xN系磁石材料のデータベース構築についての検討を行った。

まず、各種添加元素を含むSmFe_xN系磁石材料の作製、およびデータ収集を行った。Ce、La、W、Moなど様々な添加元素について、プロセス条件、蛍光X線による組成、X線回折データ、酸素量・窒素量、磁気特性のデータ項目を網羅した720件を収集するに至った。図1に添加元素とその範囲を示す。

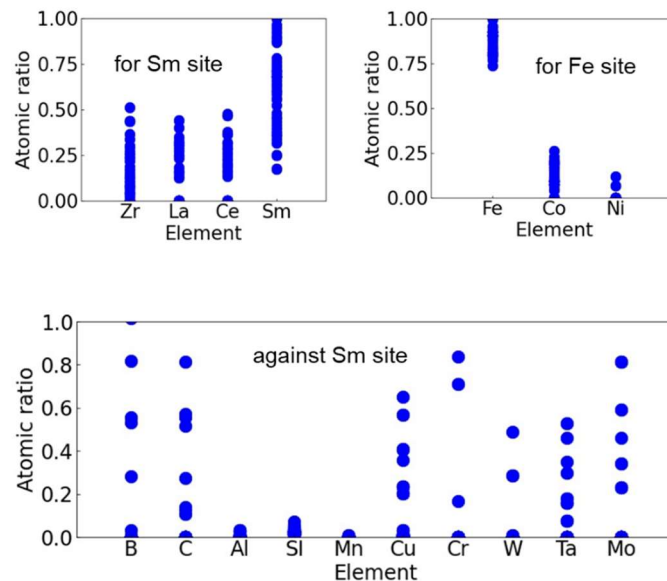


図1 データベースに登録されたSmFe系合金の添加元素とその範囲

一般に、機械学習(ML)による材料探索には多くのデータセット数が要求される。しかしながら、実験で多くの実験データを欠落なく、用意することは困難である。そこで次に、上記項目に欠落あるデータも活用するために、欠落データ予測生成技術の開発を行った。具体的には、SmFe_xN系磁石材料において、欠落が生じやすく、磁気特性に大きな影響を与える、酸素・窒素量データを予測生成するモデルを作成した。用いたアルゴリズムは畳み込みニューラルネットワーク(CNN)である。蛍光X線による組成とX線回折を入力層とし、酸素・窒素量を出力層とした。用意したデータセットは約250件である。図2に正答率と学習回数の結果を示す。学習データの正答率は99%以上に上昇するが、テストデータの正答率は20%程度から上昇しない。これはデータセット数不足に起因すると考えられる。そこでデータ増幅によりデータセット数を100倍にした上で、酸

素量・窒素量予測モデルを作成した。図3に正答率と学習回数の関係を示す。学習データ、テストデータともに正答率は99%以上になっており、良いモデルが作成できた。本結果は少ないデータであっても高い正答率を有するモデルを作成することが可能であることを示しており、より容易にデータ駆動を用いた研究開発を実施できることが期待できる。

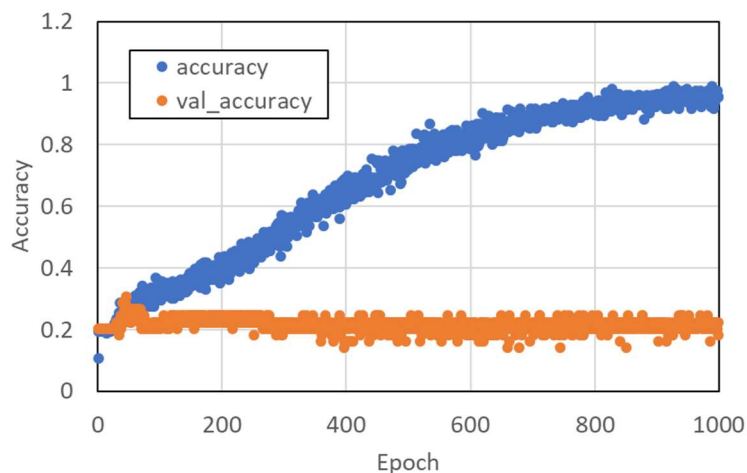


図2 正答率と学習回数

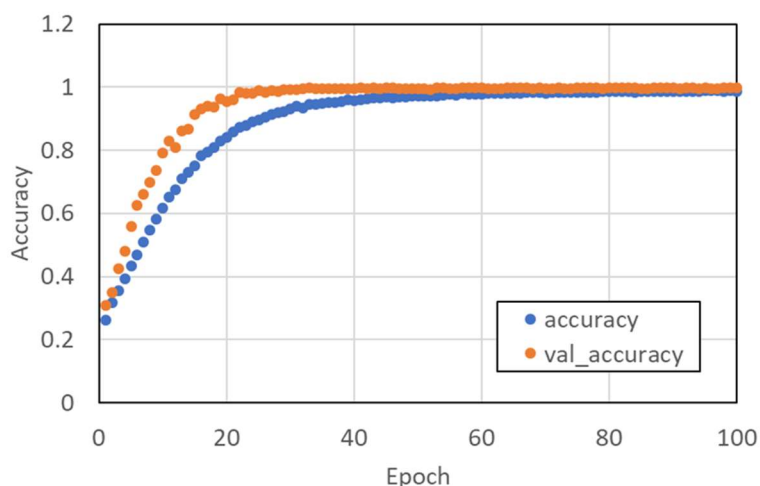


図3 データ増幅による正答率と学習回数

さらに、ML によるモデル検証中には目的変数の高精度予測のため、初期設定と異なる説明変数追加の必要性が往々にして生じる。このような場合一般的に、新規にMLモデル(全更新型MLモデル)を作成するが、計算コストがかかる。そこで、既存MLモデルに新たな説明変数を追加できるモデル(追加型MLモデル)を作成できれば、計算コストを大幅に軽減できると思われる。よって、SmFe系合金を対象に説明変数に酸素量と窒素量を追加する際に、全更新型MLモデルと追加型MLモデルを作成し、後者の有用性を検証した。アルゴリズムはニューラルネットワークである。ノード数、中間層、ドロップアウト率などパイパーパラメータを検討し、最適構造を決定した。評価関数には平均二乗誤差(MSE: Mean Squared Error)を用いた。最初のモデルとして材料組成とプロセス因子を説明変数、磁気特性を目的変数としてMLモデルを作成した。次に新たな説明変数として酸素量と窒素量を追加し、全更新型MLモデルと追加型MLモデルを作成した。まず、グリッドサーチによるハイパーパラメータの最適化を行った。図4に各ハイパーパラメータ条件におけるMSEを示す。全更新型モデルのほうが、追加型モデルよりも全体的にMSE

が低い傾向にあるが、最適なニューラルネットワーク構造においてはともに 2×10^{-3} オーダーで同等のMSEを有する。計算時間は全更新型モデルは37分、追加型モデルは30分になり、追加型モデルのほうが少ない計算時間であることが確認された。今回は表による機械学習であるが、画像など情報量が多いものをモデルに含むことになると、さらに計算時間に大きな相違が生まれると考えられ、追加型モデルは計算コストの削減に効果があると考えられる。

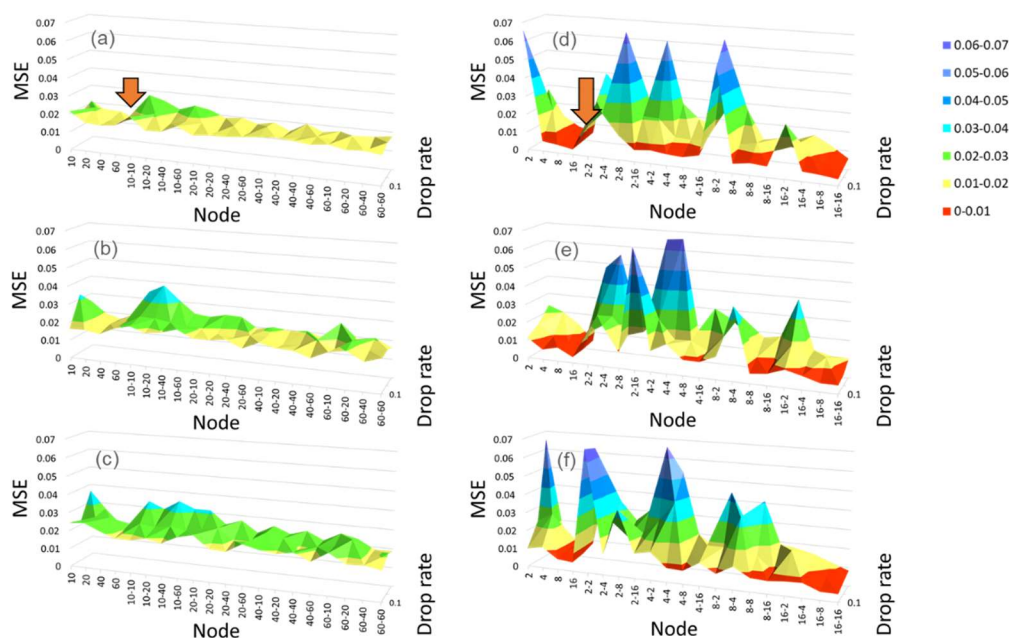


図4 各ハイパーパラメータにおけるMSE: 全更新型モデルにおけるバッチサイズ(a) 8, (b) 23, (c) 46, および追加型モデルにおけるバッチサイズ(d) 8, (e) 23, (f) 46のMSEである。

図5に全更新型モデルと追加型MLモデルによる予測Hcj値と実験Hcj値の関係を示す。およそ全てのデータは傾き1の直線近傍に位置している。モデル精度は前述したとおり、両手法とも 2×10^{-3} オーダーであり、高精度モデルが作成できている。未知データとの比較精度において、MSEは0.01, および0.02オーダーとモデル精度と比して、1桁高い値を示した。また、追加型のほうが全更新型より大きな誤差が生じていた。追加型の未知データ予測の誤差の大きさの原因を、データ分布から検討したが、データは内挿でありデータの粗密による誤差の相関もなかった。今後、モデルの汎化性の向上が課題であると考え、データの少なさやハイパーパラメータのグリッドサーチ設定値の検討などを継続して検討する必要があると考える。

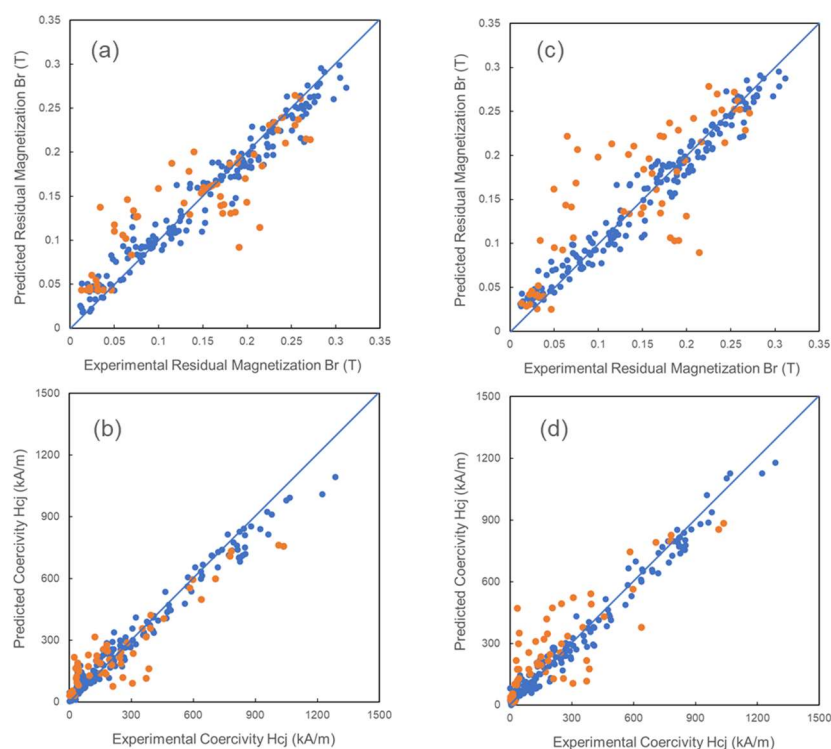


図5 予測値と実験値の関係:

全更新型モデルにおける(a)Br, (b) Hcj と追加型 ML モデルにおける(c)Br, (d) Hcj

最後に、実験データを基にした場合、多くのデータ点数が見込めない状況が存在する。そのような場合に用いられる主なアルゴリズムとしてベイズ最適化が挙げられる。実際の実験データから学習データを獲得する場合に問題となるのは、観測データに含まれる外乱要素(ノイズなど)に加え、人的エラーや機械的な故障等に起因する外れ値の混入である。そこでこれらの問題に対し、本研究ではカーネル関数の自動選択、学習データの自動スクリーニング等についてハイパーパラメータとともに検討を行った。ここでは、界面活性剤を使用したボールミル加工によりSmFe合金粉末を高配向化させることを目的として、加工プロセス条件探索をベイズ最適化プログラムにより行った。入力には界面活性剤の体積比率とミリング時間、出力はプロセス後粉末の結晶配向度である(XRDによるI(006)/I(220))。具体的には、カーネル関数の拡張を行うとともに学習データに対して学習誤差を計算し、誤差の大きかった学習データを除く作業を行うことで、実験により獲得された学習データに対する学習誤差を少なくするようなアルゴリズムを構築した。また、モデルは出力値(I(006)/I(220))の高い値での予測を正確にすることが望まれるため、高い値の実験値は極力採用するようなエリート戦略を用いた。図6に上記処理前後の実験値と予測値の関係を示す。処理を行うことにより、出力6程度の予測から、10以上の予測までを行うことに成功した。

以上、データベース構築技術、それに伴う高精度な学習モデル作製技術など、プロセス・インフォマティクスのプラットフォームを構築するために必要な要素技術を開発することができた。

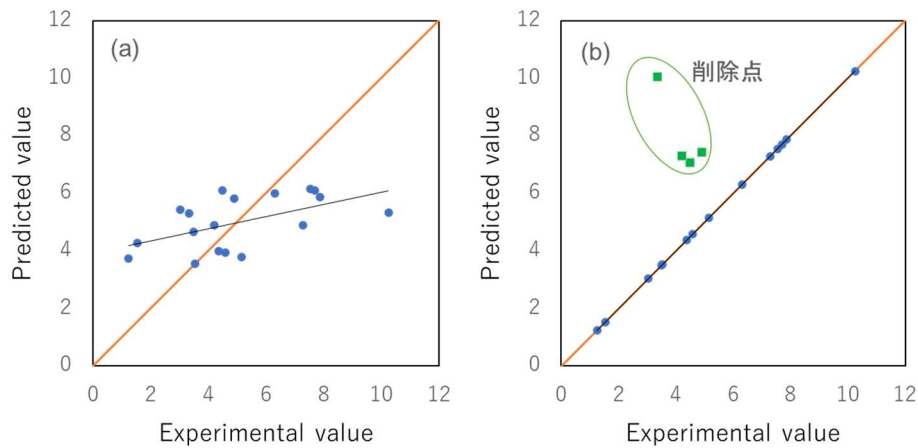


図6 処理(a)前(b)後の実験値と予測値の関係

[2] 微細組織解析とそれによる材料画像インフォマティクス技術開発

(国立研究開発法人物質・材料研究機構、国立研究開発法人産業技術総合研究所)

微細組織画像による画像インフォマティクス技術の開発を目的として、まずアクティブラーニングによる磁化および保磁力の向上のために、提案されたプロセス条件で作製した試作品の磁気特性の実験結果とそれに付随して測定される画像を蓄積した。当初はSEM画像を蓄積する予定であったが、試作材料の組織が微細であるために図7に示すように、TEM画像を蓄積した。蓄積された画像に対し、2020年度に開発した自動画像解析システムを利用することで画像特徴量を複数抽出すると共に、これらを用いた磁気特性の回帰のための情報をフィードバックした。これにより、磁気特性を向上させるにはどのような画像特徴量を改善すれば良いか、その指針を提案した。

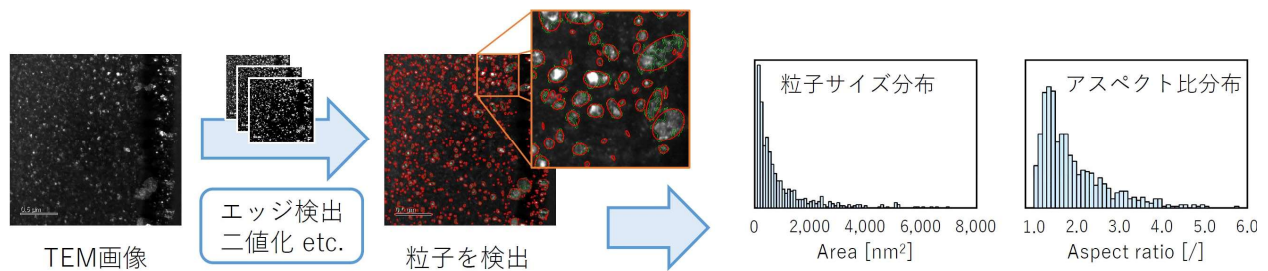


図7 自動画像解析システムによる画像解析例

[3] 第一原理シミュレーションによる構造安定化と特性予測システムの開発

(国立研究開発法人産業技術総合研究所)

計算データの蓄積

第一原理計算を用いた計算シミュレーションとデータ駆動手法を用いて、高性能磁石の主相化合物の探索を行った。高性能磁石の主相化合物には高飽和磁化、高キュリー温度、高結晶磁気異方性が求められる。このうち、高飽和磁化と高キュリー温度には鉄やコバルトなどの3d遷移金属元素が、高結晶磁気異方性のためには希土類元素を使用することが有効である。データ駆動手法では、ターゲットを含む広い組成・構造空間におけるデータが有用である。そこで、

様々な結晶構造に対して、Sm-Fe を含む広い組成の計算データの蓄積を行なった。具体的には、希土類遷移金属化合物として知られている代表的な結晶構造の CaCu_5 型構造、 $\text{Th}_2\text{Zn}_{17}$ 型構造、 $\text{Th}_2\text{Ni}_{17}$ 型構造、 ThMn_{12} 型構造、 Gd_2Co_7 型構造、 CeNi_3 型構造、 PtNi_3 型構造、 $\text{Th}_6\text{Ni}_{23}$ 型構造、 CeNi_5Mn_6 型構造、 MgCu_2 型構造を対象として、様々な希土類元素に対する計算を実行した。計算には、密度汎関数理論、擬原子軌道基底関数、ノルム保存型擬ポテンシャルに基づいたソフトウェアパッケージ OpenMX (www.openmx-square.org/) を用いた。その結果、最適化した構造に対する全エネルギーと飽和磁化の計算データ 196 件を蓄積した。図 8 に R -Fe 系 ($R=\text{Y}, \text{Zr}, \text{Nd}, \text{Sm}$) の飽和磁化の結果を示す。

Slater-Pauling 曲線に見られるように、構成元素の一部を異種元素で置換することにより磁気物性値が顕著に変化する。理論的な観点からは、非化学量論組成では結晶の周期性が破られるため計算技術上の困難を伴う。そこで、グリーン関数に基づいたコヒーレント・ポテンシャル近似 (Coherent Potential Approximation, CPA) を採用した。CPA はエネルギーに依存した自己エネルギー (コヒーレント・ポテンシャル) を導入することにより、大きなスーパーセルを用いることなく不規則系を扱うことが可能である。短距離秩序が無視されるが、不規則合金では妥当な近似であることが知られている。計算にはグリーン関数 Korrington-Kohn-Rostoker 法に基づいた AkaiKKR コードを用いた。その結果、以下の非化学量論組成の第一原理計算データを蓄積した。

- $(R, \text{Zr})(\text{Fe}, \text{Co})_5$: 121 件
- $(R, \text{Zr})_2(\text{Fe}, \text{Co})_{17}$: 363 件
- $(R, \text{Dy})_2(\text{Fe}, \text{Co})_{17}$: 363 件
- $R(\text{Fe}, M)_{12}$: 894 件
- $R(\text{Fe}, \text{Cr}, \text{Co}, \text{Ni}, \text{Fe}, \text{As})_{12}$: 290 件

構造安定性

ThMn_{12} 型構造と $\text{Th}_2\text{Zn}_{17}$ 型構造の高鉄濃度希土類化合物は、高性能磁石の主相化合物として期待されている。2017 年には、平山らによる実験で、 $\text{Sm}(\text{Fe}, \text{Co})_{12}$ が $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ を超える飽和磁化、キュリー温度、異方性磁場を示すことが示された (Y. Hirayama et al., Scripta Materialia 138, 62 (2017))。ただし、この物質は薄膜でしか合成できず、バルクの安定相を得るには、置換元素を導入する必要がある。安定化元素としては、Fe サイトに対する Ti がよく知られているが、Ti ドープにより磁化が顕著に低下する。一方、希土類サイトへの Zr ドープも安定化を促進することが知られている。そこで、本研究では、 $(\text{Sm}, \text{Zr})(\text{Fe}, \text{Co})_{12-\gamma}\text{Ti}_\gamma$ の安定性を第一原理計算により調べた [1]。 $\text{Th}_2\text{Zn}_{17}$ 型構造を競合相として全エネルギーの比較を行い、安定相を特定した。図 9 に $\gamma=0$ の結果を示す。また、 $(\text{Sm}, \text{Zr})(\text{Fe}, \text{Co})_{12-\gamma}\text{Ti}_\gamma$ の hull distance (凸包からの距離) を計算した。図 10 に結果を示す。 $\gamma=1$ の場合、安定相の形成に Zr は必要ない。一方、Ti 濃度を減らすと、安定相の Co 濃度、Zr 濃度が顕著に変化する。 $\gamma=0$ では、Zr の濃度を高くすることにより ThMn_{12} 型構造が安定化する。

磁性

ThMn_{12} 型構造の鉄基化合物を対象として、高キュリー温度の組成探索を行なった。まず、 $\text{NdFe}_{12-\delta}M_\delta$ を対象として、様々な M 元素に対するキュリー温度の変化を計算した。第一原理計算と Liechtenstein の方法によりサイト間磁気交換結合を計算して古典ハイゼンベルグモデルを導出して、平均場近似によりキュリー温度を算出した。

$M = \text{Kr-K}$ を微量ドーブ ($\delta \rightarrow 0$) した場合のキュリー温度の変化を図 11 に示す。ThMn₁₂ 型構造には、8*f*, 8*i*, 8*j* の 3 種類の Fe サイトがあるので、各サイトにドーブした場合を計算した。多くの元素でキュリー温度が上昇する。特に、K, V, As, Se, Br の微量ドーブが効果的であることがわかった。ついで、キュリー温度の上昇が期待できる元素に対して有限濃度のドーピング効果を調べ、ドーパント候補を Cr, Co, Ni, Ge, As に絞った。

以上の結果を踏まえて、複数元素の同時ドーピングを考慮した Nd(Fe, Cr, Co, Ni, Ge, As)₁₂ を対象とし、ベイズ最適化により高キュリー温度の組成探索を行なった[2]。Fe 元素 12 個のうち、ドーパントが 2 以下の 92,378 組成に対する探索の結果を表 1 左に示す。ここで、平均場近似により評価したため、キュリー温度の絶対値は過大評価していることに注意が必要である。Co がキュリー温度を上昇させることはよく知られているが、As や Ge も有効であることがわかった。ついで、希土類元素を Sm に変え、ドーパントとして毒性の強い As を除いた場合の結果を表 1 右に示す。この場合も、Co の他に Ge が有効であることがわかった。

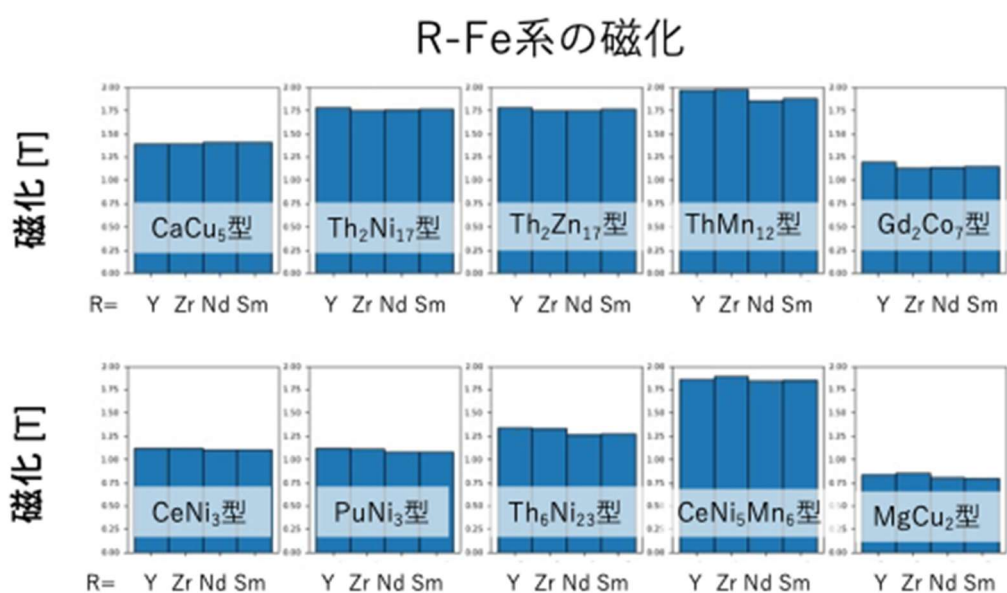


図 8 : 第一原理計算による様々な結晶構造の鉄基化合物の飽和磁化。

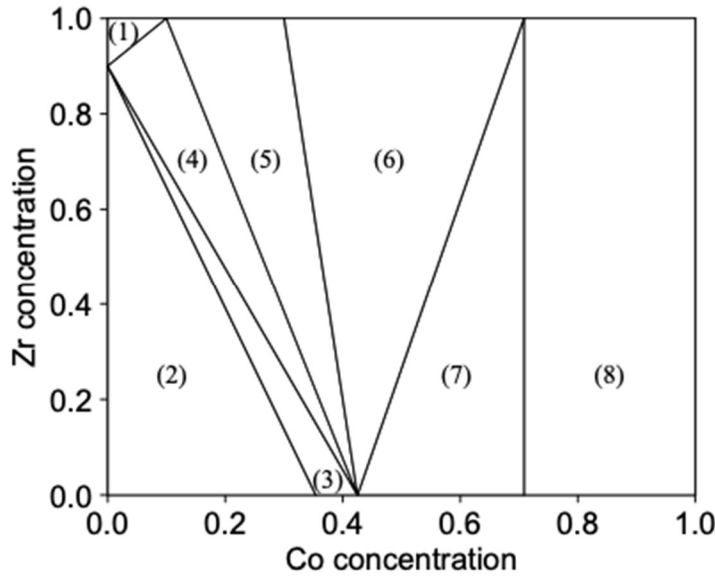


図 9 : (Sm, Zr)-(Fe, Co)系の安定相。(1) (Sm, Zr)Fe₁₂, Zr(Fe, Co)₁₂, Zr₂Fe₁₇ と Fe; (2) (Sm, Zr)Fe₁₂, Sm₂(Fe, Co)₁₇, Sm, Fe; (3) (Sm, Zr)Fe₁₂, Sm₂(Fe, Co)₁₇, Fe; (4) (Sm, Zr)Fe₁₂, Zr(Fe, Co)₁₂, Sm₂(Fe, Co)₁₇, Fe; (5) Zr(Fe, Co)₁₂, Sm₂(Fe, Co)₁₇, Fe; (6) Zr(Fe, Co)₁₂, Zr₂Co₁₇, Sm₂(Fe, Co)₁₇, Fe; (7) Sm₂(Fe, Co)₁₇, Zr₂Co₁₇, Fe; (8) Sm₂Co₁₇, Zr₂Co₁₇, Fe, Co. (文献 1) より転載)

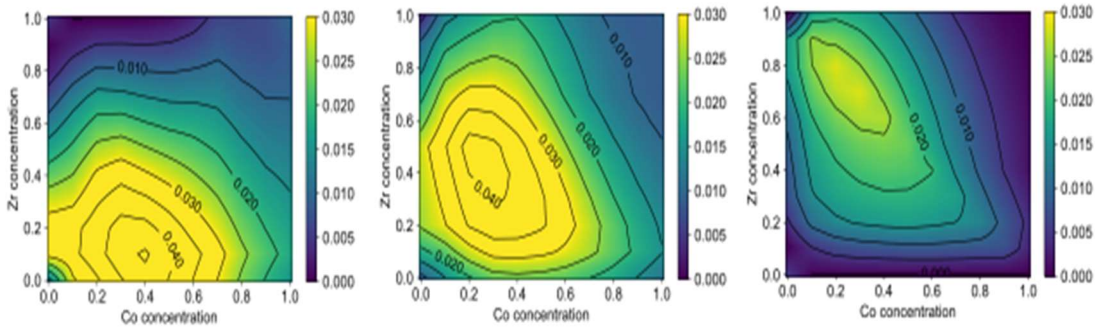


図 10 : (Sm, Zr)(Fe, Co)_{12- γ} Ti γ の hull distance. (左) $\gamma=0$ 、(中) $\gamma=0.5$ 、(右) $\gamma=1$ に対する結果([1]より転載)。

表 1 : ベイズ最適化により得られた高キュリー温度の組成。(左) Nd の結果 (文献 2) より転載) と、(右) Sm 系の結果。(第一原理計算と平均場近似により算出したため、キュリー温度は実験値に比べて過大評価している)

Formula	T_C (K)	$\mu_0 M$ (T)	Composition	T_C (K)
NdFe ₁₀ Co(8f) _{1.8} As _{0.2}	1201	1.72	SmFe _{10.0} Co(8f) _{1.6} Ge(8f) _{0.4}	1141
NdFe ₁₀ Co(8f) _{1.6} As _{0.4}	1200	1.69	SmFe _{10.0} Co(8f) _{1.4} Ge(8f) _{0.6}	1140
NdFe ₁₀ Co(8f) _{1.8} Ge _{0.2}	1199	1.71	SmFe _{10.0} Co(8f) _{1.8} Ge(8f) _{0.2}	1140
NdFe ₁₀ Co(8f) _{1.4} As _{0.6}	1198	1.65	SmFe _{10.0} Co(8f) _{1.2} Ge(8f) _{0.8}	1138
NdFe ₁₀ Co(8f) _{1.2} As _{0.8}	1198	1.62	SmFe _{10.0} Co(8f) _{2.0}	1137
NdFe ₁₀ Co(8f) _{2.0}	1198	1.76	SmFe _{10.0} Co(8f) _{1.0} Ge(8f) _{1.0}	1135
NdFe ₁₀ Co(8f) _{1.6} Ge _{0.2} As _{0.2}	1197	1.68	SmFe _{10.0} Co(8j) _{0.2} Co(8f) _{1.8}	1129
NdFe ₁₀ Co(8f)As	1197	1.59	SmFe _{10.0} Co(8j) _{0.4} Co(8f) _{1.0} Ge(8f) _{0.6}	1127
NdFe ₁₀ Co(8f) _{1.6} Ge _{0.4}	1195	1.68	SmFe _{10.0} Co(8j) _{0.4} Co(8f) _{0.8} Ge(8f) _{0.8}	1125
NdFe ₁₀ Co(8f) _{0.8} Ge _{1.2}	1195	1.56	SmFe _{10.0} Co(8i) _{0.2} Co(8f) _{0.6} Ge(8f) _{1.2}	1124
NdFe ₁₂	881	1.73		

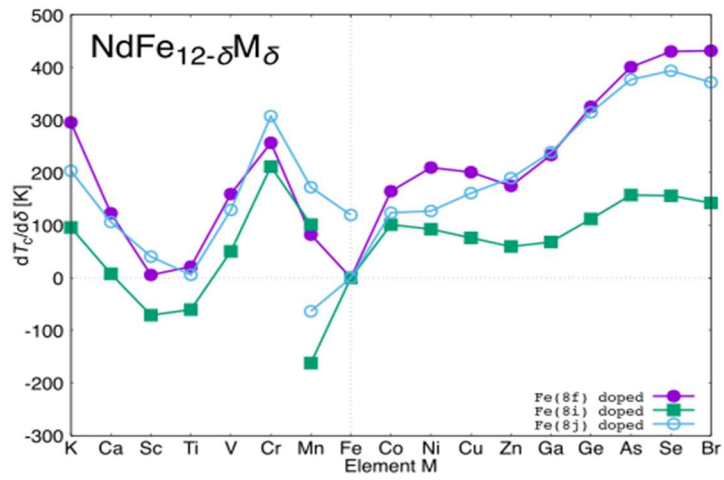


図 11 : NdFe₁₂の鉄サイトに異種元素を微量ドーピングした場合のキュリー温度の変化。第一原理計算と平均場近似により算出した ([2]より転載)

[4] 熱プラズマ法を用いたハイスループット粉末合成システムの開発(国立研究開発法人産業技術総合研究所)

熱プラズマプロセスによって合金ナノ粉末を作製する際には、ペアとなる元素の蒸気圧や表面張力の違いから、得られるナノ粒子の組成に分布が生じることが実験[3-5]、計算[6, 7]の双方から分かっている。本研究では、熱プラズマプロセスで得られる合金ナノ粉末の組成分布と粒子径の相関関係を実験的に評価し、粒子形成プロセス中の合金組成の空間分布も評価した[8]。特に、反応場における空間組成分布に関する実験的研究はこれまで報告されておらず、初めての試みである。まずは、Ni-Cu 系を選択した。理由は、(i) 組成の変化が構造の変化なしに連続的に評価できる全率固溶系であり、(ii) 蒸気圧と表面張力が Ni と Cu である程度異なるために、評価可能な程度に組成分布が生じることが予想されたためである。実験的評価に加えて、合金ナノ粉末の形成メカニズムは、バイナリエアロゾル形成-成長モデルに基づいて数値計算を行った。(詳細については、参考文献[6, 7]を参照)。この数値計算の利点は、実験で得られる粒子の最終状態を予測できるだけでなく、反応の進行に関する情報も得られることである。

Ni-Cu 合金ナノ粉末は、ITP システム(TP-40020NPS、JEOL Ltd.)および粉末供給システム(TP-99010FDR、JEOL Ltd.)を使用して合成した。原料金属粉末としては、粒子径が 3 μm までの Ni 粉末(純度 99.99%)と粒子径が 5 μm までの Cu 粉末(純度 99.99%)の 2 つの混合金属粉末を使用し、原子比 Ni:Cu = x:1-x(x = 0, 0.3, 0.6, 0.7, および 1.0)とした。熱プラズマプロセス圧力は 100kPa とした。また本研究では、通常の熱プラズマプロセスに加えて(図 12(a))、水冷銅棒をプラズマの出口から 307 mm の距離に水平に配置し、チャンバー内に粉末を供給して、水冷銅棒に堆積した粉末をカーボンテープに転写し、各位置の EDS プロファイルを取得して、空間組成の変化を定量的に評価した(図 12(b))。熱プラズマプロセスの処理時間は約 10 秒とした。詳細な位置情報は図 12 に示した。

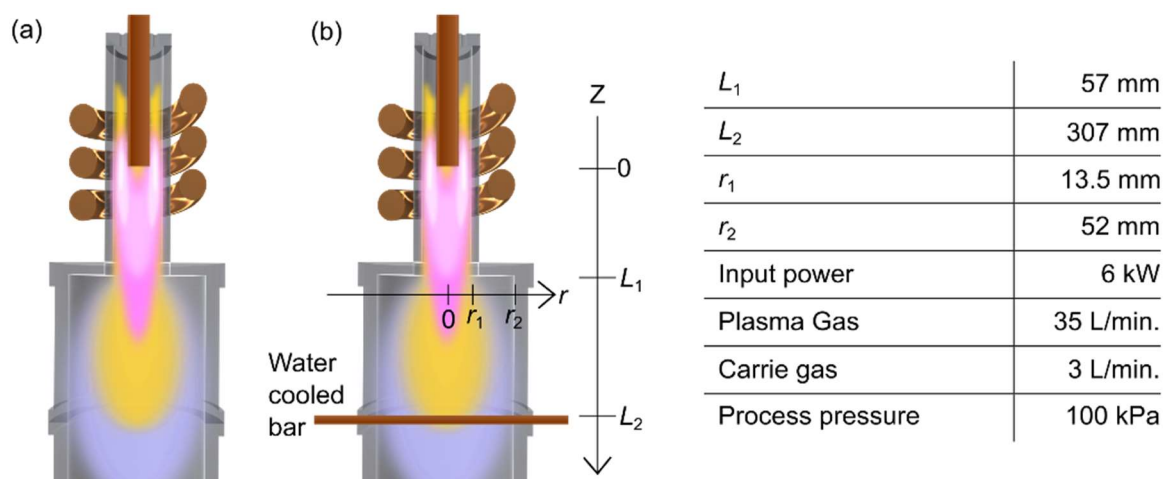


図 12 本研究で使用した熱プラズマ装置の Cu 水冷棒の配置図

原料組成を変化させて作製した NiCu ナノ粒子について(図 12(a)の場合)、XRD 測定を行った結果を図 13 に示す。Cu の割合が増加するにしたがって、格子は連続的に変化していることわかる。格子定数を算出したところ、ベガード則に従い、平均組成としては狙い組成と一致していた(図 13(b))。

次に、得られた NiCu 粒子一つ一つについて合計 500 個の粒子について、EDX による組成評価と、STEM 測定による粒子径を定量評価した結果をプロットし、2D カーネル密度図として表現した図が図 14(a)である。組成分布は $s=7.7\text{at}\%$ と算出された。同様の実験を FeCo で行うと $s=3.0\text{at}\%$ であることから[9]、Ni-Cu 系で得られた組成分布が大きいことが分かる。

図 14(b,c) は、数値計算によって得られた、1600K と 300K での粒子数密度の 2D マップを示した図である。粒子径に対する組成分布を表す密度マップは図 14(a)の密度マップと非常に似ているが、組成分布の絶対値は異なる。数値計算で算出される σ は $1.05\text{at}\%$ であり、実験値と比べると非常に小さい。これは、実験における粉末供給の不均一性による、蒸気生成過程の違いが一つの原因であると考えられる。実際に FeCo の場合、合金粉末を使用した場合、混合粉を出発材料として場合に比べて、得られたナノ粒子の組成分布が小さいことも報告されている[3, 9]。

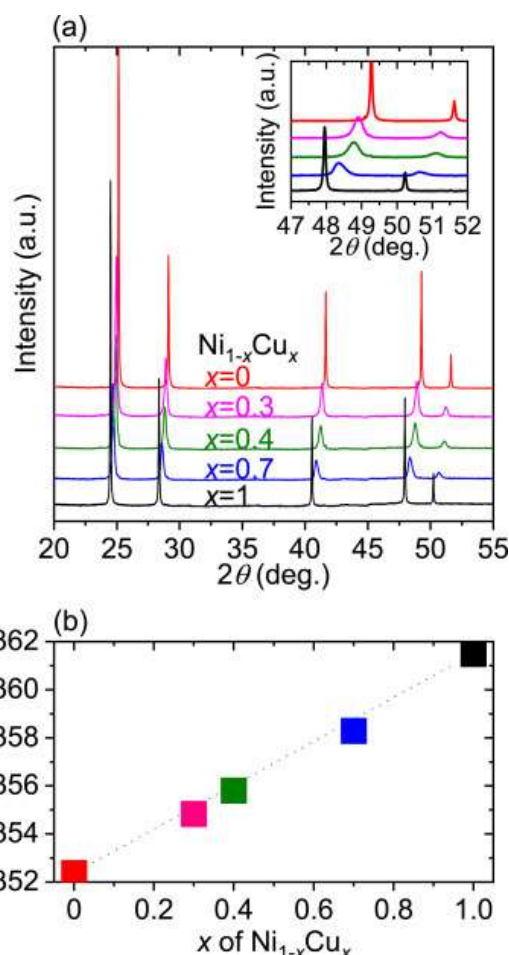


図 13 (a)熱プラズマプロセスで得られた NiCu 合金の XRD 測定結果と (b)原料粉末の組成に対する算出した格子

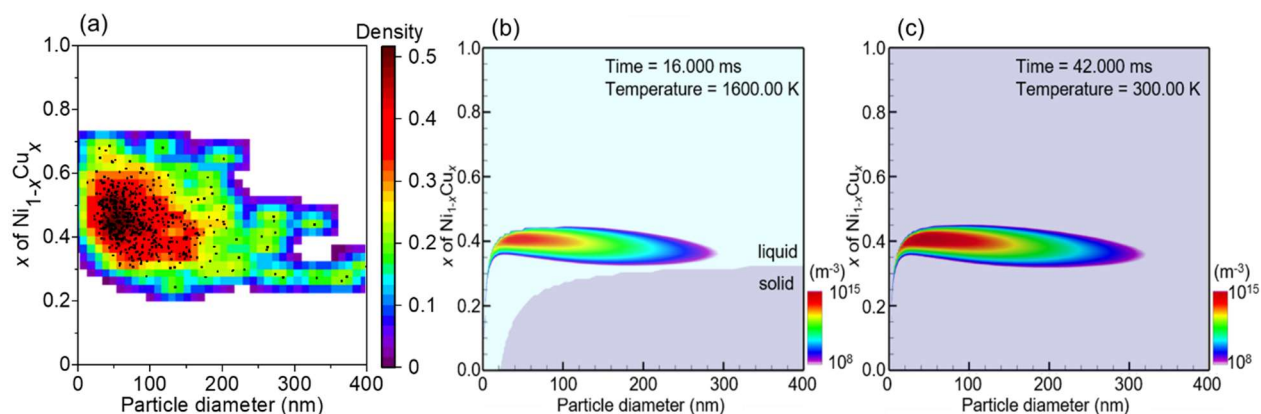


図 14 熱プラズマプロセスを用いて合成した NiCu 合金の粒子径に対する (a) 実験的な組成分布評価 (2D カーネル密度図) と (b) 数値計算による組成分布評価、数値計算については、1600 K と 300 K でのスナップショットを示した。(b) (c)内の青色部は液体領域、灰色部は固体領域であることを示す。

Vorobev らによる計算によると、同様の物理的ボトムアッププロセスである熱プラズマジェットの組成変化は、粒子組成の空間分布として現れる可能性があることを示唆している[10]。しかし、こ

の予測の実験的検証に関する報告はない。そこで、場所の関数として組成変化を実験的に確認できるかどうかを確認するために、図 12(b)に示すように、サンプル収集用のチャンバーに水冷バーを配置した。水冷バーの各部に堆積した粉末を回収し、位置による組成変化を評価した。

図 15 は、水冷バーから回収された $Ni_{1-x}Cu_x$ の Cu 組成を、チャンバーの中心 ($r = 0$ mm) から端までの半径方向の位置 r の関数として示した図である。チャンバーの半径方向に対して組成が変化し、原料粉の組成比を変えてもフランジの半径方向に沿って同じ組成変化の傾向が得られた。Cu 濃度は、 r が増加するにつれて増加したが、 $r \sim 27$ mm で減少し始め、 $r \sim 40$ mm で再び増加し始めた。この結果は、1 回の実験で広い組成範囲の合金粒子サンプルを取得することに加えて、収集場所に応じて特定の組成を選択できることを意味する。この組成分布の原因は、計算結果に示されているように、Ni と Cu の核形成と凝固過程の温度差であることが理解できる。さらに、チャンバー内の温度分布も存在するため[7]、上記の原因の 1 つとしてチャンバー内箇所での粒子形成の温度ヒステリシス(つまり冷却速度)が異なることも挙げられる。しかし、半径方向に沿った組成振動の原因に関してはまだ明確ではなく、深く理解するには、トーチに対するバーのさまざまな位置でのさらなる実験と、チャンバー内の空間組成分布のシミュレーションが必要である。

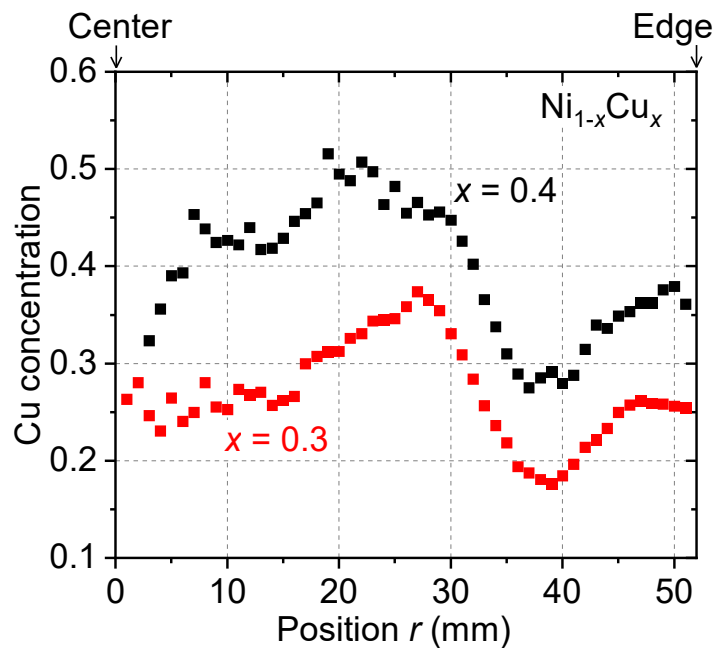


図 15 原料粉を Ni:Cu= 1-x:x ($x = 0.3, 0.4$) としたときに得られる合金粉末の空間組成分布

Sm-Feの空間分布

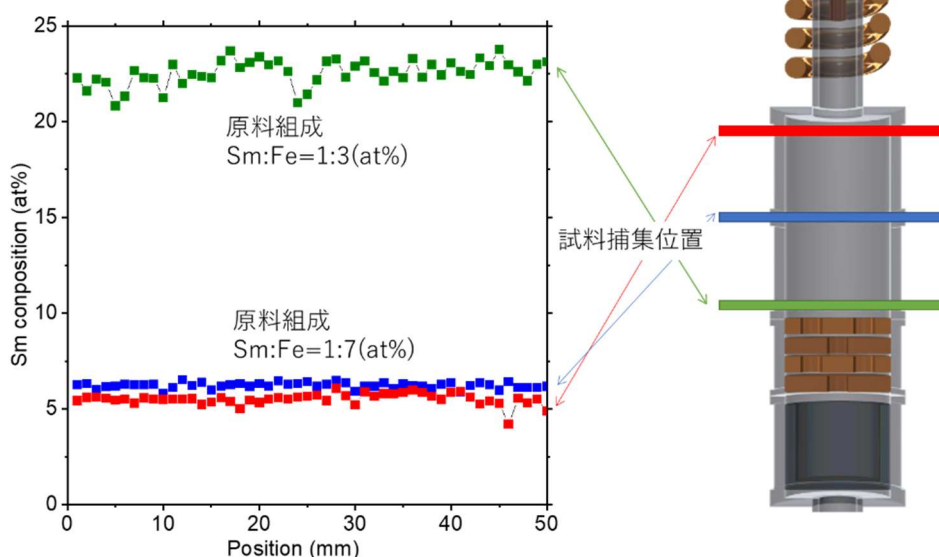


図 16 Sm-Fe の空間組成分布

Sm-Fe 系についても同様に捕集位置と原料組成を変化させて、Ni-Cu 系と同様の実験を行った。結果を図 16 示す。Ni-Cu 系とは異なり、チャンバーの径方向には Sm-Fe の組成分布は観測されなかった。一方で、捕集位置や原料組成の変化によって得られる組成は異なることが分かった。これは、Sm の蒸気圧が非常に高い為に、Sm の凝集が Fe に比べて低い温度で起こることが原因であると考えられる。つまり、試料捕集位置が高い場合には Sm はまだ気体状態であり、水冷 Cu 棒では捕集できない。よってプラズマ進行方向(図内の縦方向)に対する Sm と Fe の組成の違いは、Sm の凝集速度による違いであることが推測される。これらの考察により、コンビナトリアルプロセスとして熱プラズマプロセスを活用するためには、試料を縦方向に捕集するか、時間軸を設定し原料組成を時間に対して変化させることで一回の実験で組成の異なる試料が得られることができることが分かった。

[5] 高 Fe 濃度 SmFe_xN_y 系磁石材料の異方化の可能性探索 (国立研究開発法人産業技術総合研究所)

低温還元拡散プロセスによる高鉄濃度 TbCu_7 構造 Sm-Fe 単結晶微粉末の開発

TbCu_7 構造 SmFe_xN_y は x が 7-10 をとることのできる化合物であり、 x が大きい、つまり高鉄濃度であるほどに磁化は高くなる。櫻田らにより、Sm よりも原子半径の小さい Zr を Sm と置換し、ダンベル鉄が入る空間をつくることで作製された $(\text{Sm}_{0.75}\text{Zr}_{0.25})(\text{Fe}_{0.7}\text{Co}_{0.3})_{10}\text{N}_y$ は表 2 に示すように飽和磁化が 1.7 T という Nd-Fe-B を超える高い飽和磁化が報告されている[11]。

表 2 TbCu₇ 構造 Sm-Fe-N 磁石の磁気物性

磁石系	組成	飽和磁化 (kG)	異方性磁界 (kOe)	キュリー温度 (°C)
Nd-Fe-B	Nd ₂ Fe ₁₄ B	16.0	67	313
TbCu ₇ 構造 Sm-Fe-N	SmFe _{8.5} N _y	14.0	86	470
	(Sm _{0.75} Zr _{0.25})(Fe _{0.7} Co _{0.3}) ₁₀ N _y	17.0	77	600<

一方で TbCu₇ 構造 SmFe_x は準安定相であり、従来、超急冷法やメーカーニカルアロウイングなど非平衡プロセスでしか合成することができず、その結晶粒径は数十 nm から数百 nm の等方性である。そのため、実際に Nd-Fe-B 磁石を超えるような TbCu₇ 構造 SmFe_xN_y 磁石を実現するには異方性であることに加え高鉄濃度な TbCu₇ 構造 SmFe_xN_y 磁石粉末の製造方法を開発する必要がある。

我々は異方性 TbCu₇ 構造 SmFe_xN_y 磁石粉末の実現を目指し、Th₂Zn₁₇ 構造 Sm₂Fe₁₇N₃ 異方性磁石粉末合成プロセスとして知られる還元拡散プロセスを用いた TbCu₇ 構造 SmFe_xN_y 異方性磁石微粉末の合成を検討してきた。還元拡散プロセスは希土類酸化物粉末と遷移金属粉末、および還元剤である Ca 粉末を混合し、高温下にて Ca による希土類酸化物の還元とそれに続く希土類金属の遷移金属への拡散により希土類-遷移金属合金粉末を合成するプロセスである。Ca と希土類酸化物が接触し、かつ希土類金属が遷移金属粒子へ拡散する経路を確保する必要があるため、従来の還元拡散プロセスにおいては Ca の融点(約 850 °C)以上に加熱する必要がある。この場合、Sm-Fe 合金においては Th₂Zn₁₇ 構造 Sm₂Fe₁₇ 相が形成し、TbCu₇ 構造 SmFe_x 相は生成しない。超急冷法やメーカーニカルアロウイングでの TbCu₇ 構造 SmFe_x 合成において TbCu₇ 構造となるのは 700 °C 以下であることが知られている。そこで我々は Ca を溶かすことができる、いわば Ca の溶媒を還元拡散プロセス加えることで Ca 融点以下でも還元拡散反応が可能となるのではないかというアイデアのもと、新たに LiCl 溶融塩を溶媒として用いた還元拡散プロセスを開発した。結果、Ca 融点を大幅に下回る、600 °C 以下でも還元拡散反応が可能なることを見出し、TbCu₇ 構造 SmFe_x 単結晶微粉末を得ることに成功している。[12]

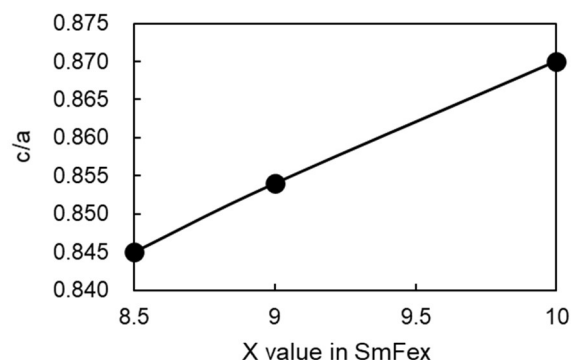


図 17 TbCu₇ 構造 SmFe_x における x の値と格子定数比 c/a の関係

一方で、合成された TbCu_7 構造 SmFe_x 単結晶微粉末の格子定数比 c/a は 8.45 程度であり、図 17 に示す結晶構造データベース及び前記論文[11]に報告されている c/a と TbCu_7 構造 SmFe_x の鉄濃度の関係から、 $\text{SmFe}_{8.5}$ 程度であると推察される。実際、この単結晶微粉末を窒化した磁石粉末においては、飽和磁化は高い値とはならなかった。そこで、本研究では先例にならって Sm を Zr 置換し、ダンベル鉄が入ることのできる空間を増やすことで、高鉄濃度 TbCu_7 構造 $(\text{Sm}, \text{Zr})\text{Fe}_x$ 単結晶微粉末の合成を検討した。

Fe 微粉末と SmCl_3 、 LiCl と Ca 及び Zr 源として ZrCl_4 を SmCl_3 に対し 5 mol% となるように秤量、混合し、還元拡散反応を行った。洗浄して得られたサンプルの XRD パターンを図 18 に示す。 ZrCl_4 を添加した場合、 Fe_2Zr のピークが確認された。また TbCu_7 ピーク位置の変化は確認できなかった。この原因として、添加した ZrCl_4 は SmCl_3 が還元されるよりも先に還元され、Fe 粒子と合金化することで Fe_2Zr が生成、その後、 SmCl_3 が還元され、Zr と未反応の Fe 粒子と合金化し、Zr 置換されていない TbCu_7 構造 SmFe_x が生成していると考えられる。そこで SmCl_3 と ZrCl_4 を還元したのちに Fe 粒子に拡散させることを目的に、図 19(a),(b) のイメージ図に示す通り、従来はすべての原料粉を混合し、還元拡散反応をおこなっていたのに対し、るつぼ内に Fe 粉末を入れた後に、Ca 粒、その上に SmCl_3 、 ZrCl_4 、 LiCl の混合粉末を設置することで、Zr と Sm を還元したのちに Fe 粒子に接触させることを検討した。結果、図 19(c) に示す通り、Fe 粉末をるつぼ下部に設置した結果、 Fe_2Zr の生成を抑制することができることがわかった。

次に ZrCl_4 の添加量を変えて、同方法にて還元拡散処理を行った。洗浄・脱水素後粉末の XRD パターンを図 20(a) に示す。Zr 仕込量に応じて $2\theta = 42.5^\circ$ 付近の(110)面回折ピークと $2\theta = 49.9^\circ$ 付近の(111)面回折ピークの高角シフト、 $2\theta = 50.9^\circ$ 付近(002)面回折ピークの低角シフトがみられる。図 20(b) にそれぞれの XRD 回折パターンからリートベルト解析により求められた格子定数と格子定数比の変化を示す。櫻田らの報告同様に Zr 添加量が増えるに応じて a 軸長の低下と c 軸長の増加が確認される[11]。このことは Sm が原子半径の小さな Zr に置換されることによる a 軸長の低下とダンベル鉄が増えたことによる c 軸長の増加に対応していると考えられる。よって、

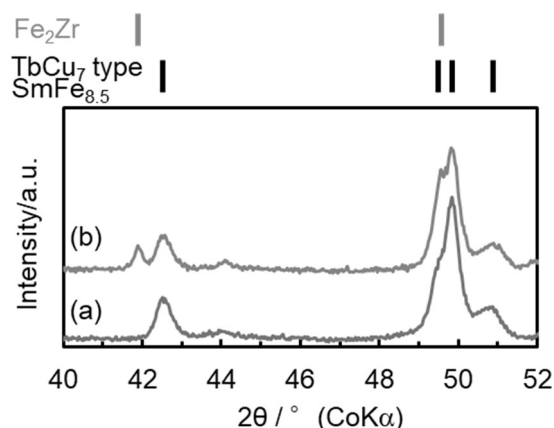


図 18 (a) ZrCl_4 添加無、及び(b) ZrCl_4 添加有にて合成したサンプルの XRD

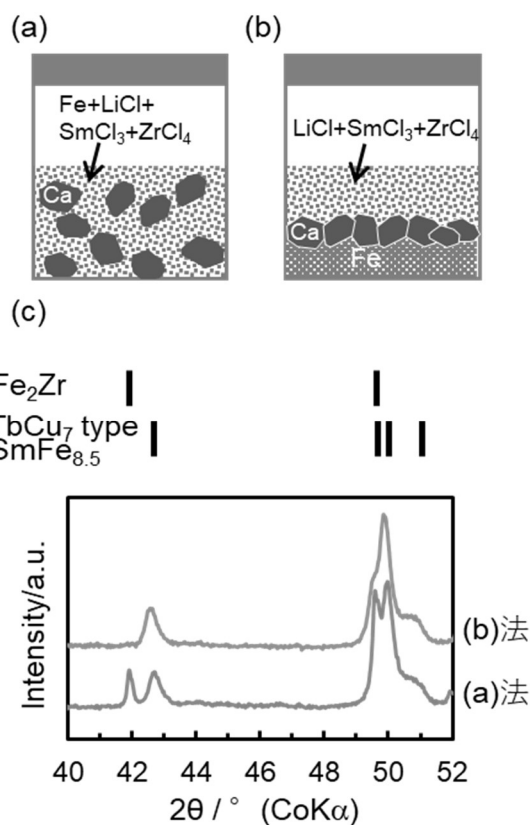


図 19 (a) 全原料をあらかじめ混合した場合と (b) 新たに考案した原料粉設置イメージ、および(c) 各方法にて作製されたサンプルの XRD パターン

低温還元拡散法でも高鉄濃度 TbCu₇ 構造 Sm-Fe 単結晶粉末が合成可能であることがわかった。Zr 添加量をさらに多くした、仕込 Zr/Sm モル比が 0.9 以上においては Fe₂Zr の生成が確認され、(Sm,Zr)Fe_x 相の回折強度も大きく低下してしまい、格子定数の解析は困難であった。現状、この方法での最大 c/a は 0.848 であり、図 17 に示した c/a と鉄濃度の関係からすると SmFe_{8.7} 程度であると考えられる。また EDX 測定を行ったところ、実際に導入されている Zr/Sm モル比は 0.1 未満であり、仕込みモル比 Zr/Sm=0.6 に対してかなり低い値であった。導入されていない Zr は熔融塩中に溶け込んだ状態のまま、洗浄時に除去されていると考えられる。

先の実験にて Zr と Sm を同時に Fe 粒子に拡散させることが低温還元拡散法において (Sm,Zr)Fe_x を合成するために必要であることがわかった。一方で、効率的に Zr を導入できていないことが分かった。そこで Zr を効率よく導入すること目的に Sm,Zr,Fe が均一に分布した酸化物前駆体を合成することでさらなる高鉄濃度化を検討した。

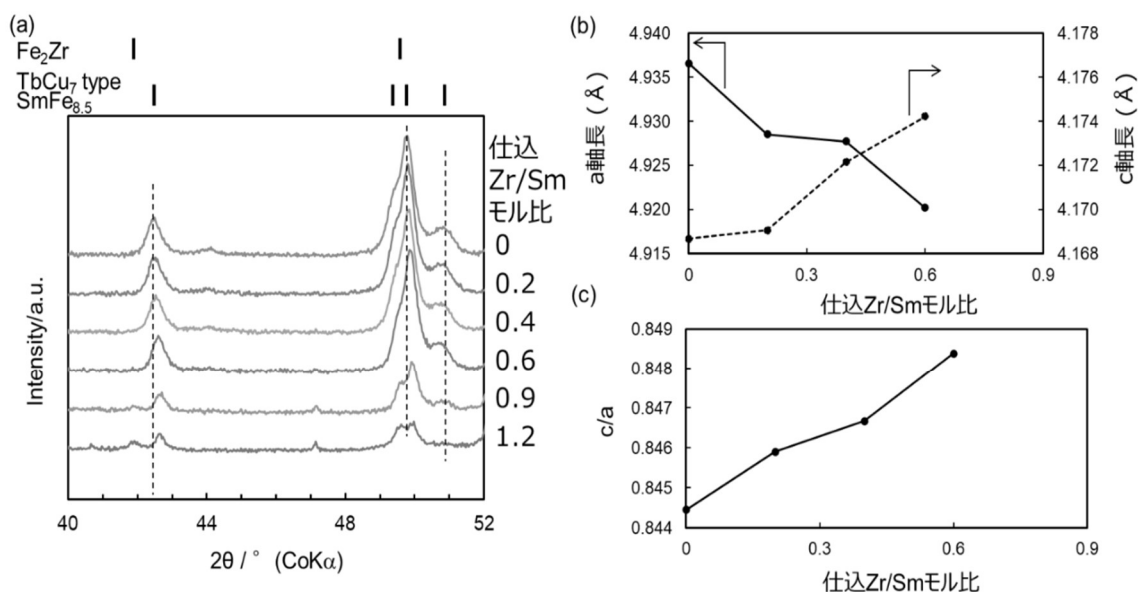
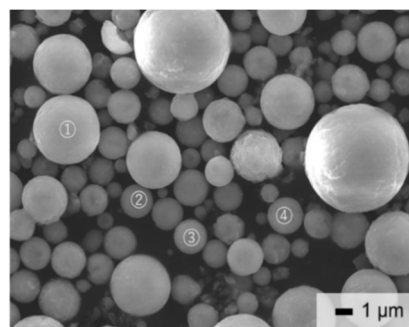


図 20 (a) ZrCl₄ 添加量と得られたサンプルの XRD パターンと (b) 仕込み Zr/Sm モル比とリートベルト解析により算出された a 軸長及び c 軸長の関係、(c) その c/a 値の関係

酸化物前駆体は FeCl₂·4H₂O、SmCl₃·6H₂O、ZrCl₄ を純水に溶かし水溶液とした後に、スプレードライにより微粉末を作製した。一例として FeCl₂·4H₂O:SmCl₃·6H₂O:ZrCl₄ のモル比を 90:7:3 で調整し、スプレードライにより得られた粉末の FE-SEM、EDX 分析結果を図 21 に示す。粒子径は数 μm であり組成はほぼ均一であることを確認した。これを大気焼成後、水素還元を行い、Ca、LiCl と混合し、還元拡散反応を行った。洗浄後粉末の XRD パターン及び Zr 仕込みによる格子定数の変化を図 22 に示す。各塩を混合していたとき同様、スプレードライで作製した前駆体粉末を用いても TbCu₇ 構造 SmFe_x 微粉末が合成可能であること、そして、Zr/Sm の仕込み比が増加すると a 軸長の低下と c 軸長の増大により c/a が増加することが確認された。



	Fe (at%)	Sm (at%)	Zr (at%)
1	90.1	6.9	3.0
2	90.2	6.9	2.9
3	89.9	7.2	2.9
4	90.1	7.1	2.8

図 21 スプレードライ法で作製した前駆体粉末の FE-SEM 及び各ポイントの EDX 分析結果

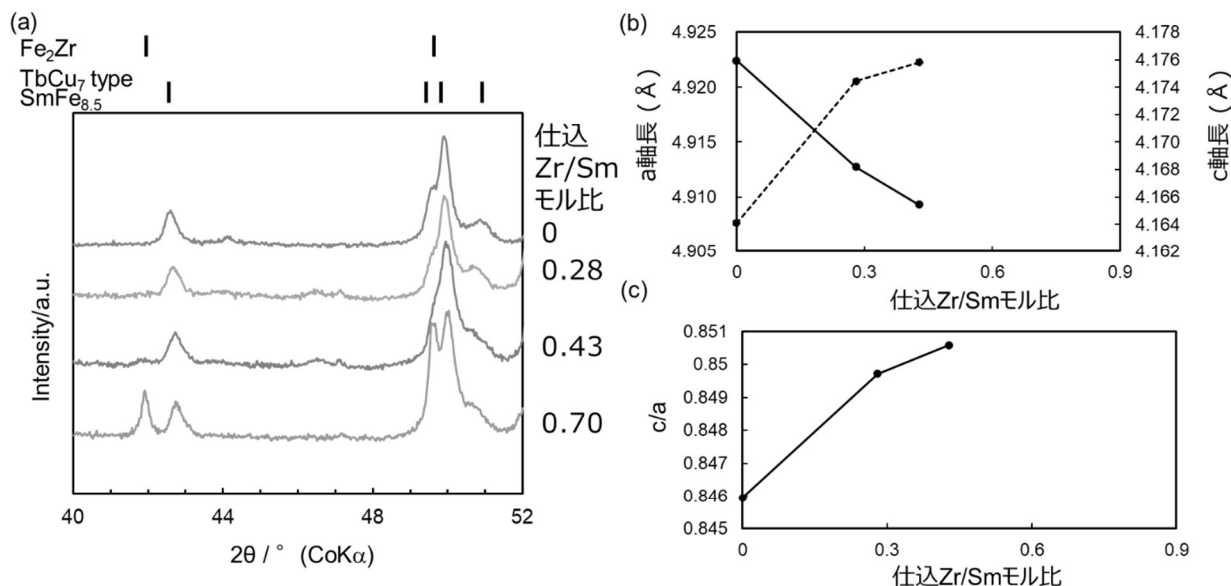


図 22 スプレードライ法で作製した前駆体粉末を用い合成した TbCu₇ 構造 (Sm, Zr)Fe_x 粉末の (a) XRD パターン、(b) 仕込み Zr/Sm モル比と a 軸長及び c 軸長の関係、及び (c) c/a 値の関係

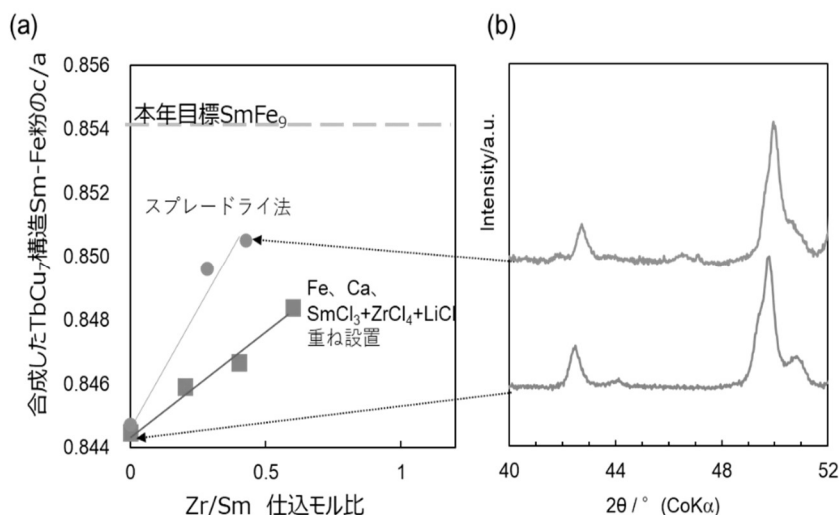


図 23 (a) 各方法による異なる Zr/Sm 仕込比で合成した TbCu₇ 構造 (Sm, Zr)Fe_x 粉末の c/a と (b) 矢印で示す粉末の XRD パターン

このころからスプレードライ法での前駆体を用いても高鉄濃度 TbCu₇ 構造 (Sm, Zr)Fe_x 微粉末が合成できることが示された。

一方、Zr 添加量がある量以上ではやはり Fe₂Zr が生成してしまい、それ以上の高鉄濃度化は出来なかった。

図 23 に各合成方法による仕込 Zr/Sm モル比と c/a の関係を示す。スプレードライにより均一な前駆体を合成することでより高い値となっていることから、各試薬を混合した場合に対し、効率よく Zr が導入されていることが示された。現状、c/a の最高値としては 0.851 であり、この c/a の値から推察される組成は SmFe_{8.8} 程度であった。本研究により、低温還元拡散プロセスにおいて

も Sm を一部 Zr で置換した(Sm,Zr)Fe_x 微粉末が合成可能であり、Zr 置換することにより高鉄濃度が可能とすることが出来た。一方、目的とする x が 9 以上の高鉄濃度 TbCu₇ 構造(Sm,Zr)Fe_x 単結晶微粉末を実現するにはさらなる Fe₂Zr の生成抑制と Zr 置換量の増大が必要であることがわかった。

低酸素熱プラズマ法を用いた TbCu₇ 型 Sm-Fe-N 異方性粒子の開発

TbCu₇ タイプの Sm-Fe-N 化合物の異方性ナノサイズ粉末を取得するための新規プロセスとして、熱プラズマ (ITP) プロセスを用いた。ITP プロセスは物理的なボトムアッププロセスであり、高い冷却速度を備えていることが特徴である。TbCu₇ 型化合物は Sm-Co[13]、Nd-Fe[14] および系を用いた ITP プロセスにより得られることがすでに実証されており、Sm-Fe 系でも実現することができれば、ジェットミル法などの従来の粉砕プロセスでは得られない、約 100nm のサイズの微細な永久磁石異方性粉末を合成することも可能である。そこで本研究では、ITP プロセスによりナノサイズの Sm-Fe-N 合金粉末を作製し、その得られる相とその配向性について評価した。

Sm:Fe = 1:6 (at%)の原子比で Sm 粉末 (D90 = 18 μm) と Fe 粉末 (粒子サイズ約 3 μm、高純度化学実験室) を混合し、その混合粉末を熱プラズマプロセスの原料粉末として使用した。出発原料となる金属 Sm 粉末は市販されていないため、水冷銅るつぼを備えたスカルガス噴霧装置 (CCGA-0.8、SINFONIA TECHNOLOGY Co., Ltd) を用いて作製した。得られた Sm 粉末の酸化を防止するために、空気に暴露することなく、全て不活性雰囲気中で回収した。図 24 は、得られた Sm 粉末の (a) 大気暴露 (b) 大気非暴露の場合の XRD プロファイルを示した。大気非暴露の場合には酸化物のピークは観察されず、Sm のみからのシグナルが得られたが、大気暴露した粉末では窒化物もしくは酸化物のピークが検出された。本実験では、非暴露の Sm 粉末を出発材料として使用した。また、得られた Sm-Fe 合金を窒素気流下、400°C で 15 分窒化処理を行うことにより、Sm-Fe-N を得た。得られた Sm-Fe-N 粉末の SEM 画像を図 25 に示した。100nm 以下の粒子が得られていることが分かる。

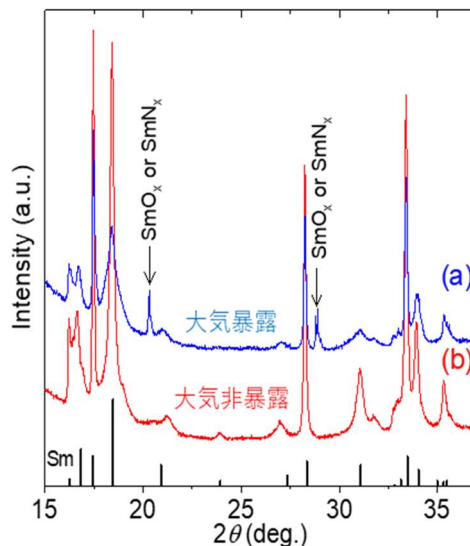


図 24 スカルガスアトマイズ装置で作製した Sm 粉末の XRD プロファイル。(a)大気暴露、(b)大気非暴露条件で測定した

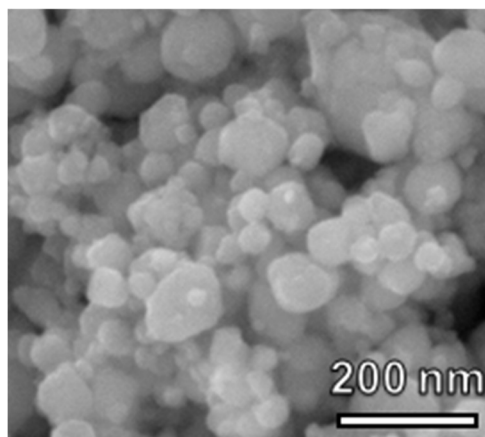


図 25 Sm-Fe-N の SEM 画像

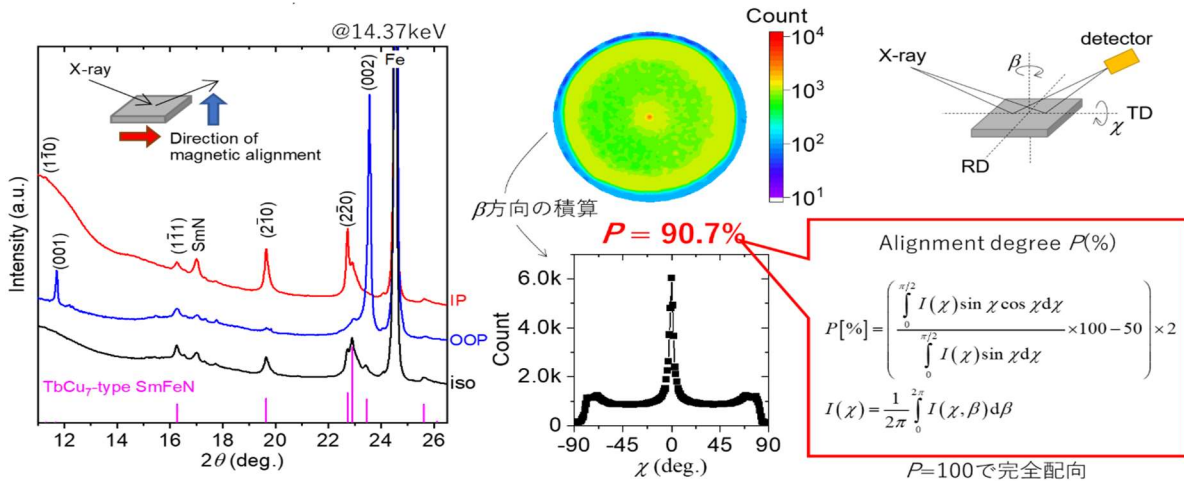


図 26 TbCu₇型の Sm-Fe-N 粉末の磁場配向後の XRD 測定結果と c 軸方向付近の極点図

図 26 には得られた無配向 Sm-Fe-N 粉末の XRD 測定結果(iso)を、9T の強磁場下で配向させた試料(OOP, IP)と共に示した。ここで OOP、IP とはそれぞれ磁場配向の際の印加磁場方向が、測定面に対してそれぞれ垂直、平行方向であることを示す。無配向試料の測定結果より、TbCu₇型の結晶構造を有する化合物であることが分かった。IP 方向に配向させた試料では(hk0)のピーク強度が増加し、OOP 方向に配向させた試料では(00l)のピーク強度が増加していることから、TbCu₇型の Sm-Fe-N 化合物は c 軸が磁化容易軸である一軸異方性を有する化合物であることが分かった。

次に、OOP 試料を用いて TbCu₇型 Sm-Fe-N の配向度を定量化するために c 軸方向付近の極点図測定を行った。得られた $I(\chi, \beta)$ の等高線図 β 方向に積算し、そこから以下の式を用いて配向度 P を見積もった。

$$P[\%] = \left(2 \times \frac{\int_0^{\pi/2} I(\chi) \sin \chi \cos \chi d\chi}{\int_0^{\pi/2} I(\chi) \sin \chi d\chi} - 1 \right) \times 100$$

$$I(\chi) = \int_0^{2\pi} I(\chi, \beta) d\beta$$

ここで、 $\int_0^{\pi/2} I(\chi) \sin \chi d\chi$ と $\int_0^{\pi/2} I(\chi) \sin \chi \cos \chi d\chi$ は、それぞれ、全磁気モーメントと、外部磁場に沿った Z 方向の全磁気モーメントの成分の投影と見なすことができる。その結果、 $P=90.7\%$ と見積もることができ、ナノ粒子でも磁場配向可能であり、その配向度は非常に高いことが分かった。従って、得られた TbCu₇型の Sm-Fe-N 粉末は異方性磁粉である。今後は、副相として軟磁性の Fe が多く含まれているため、単相化を目指して合成条件の最適化を進める。

参考文献

- [1] Taro Fukazawa, Yosuke Harashima and Takashi Miyake, *Physical Review Materials* (印刷中).
- [2] Taro Fukazawa, Hisazumi Akai, Yosuke Harashima and Takashi Miyake, *Acta Materialia* 226, 117597 (2022).
- [3] J.H.J. Scott, Z. Turgut, K. Chowdary, M.E. McHenry, S.A. Majetich, *Thermal Plasma Synthesis of Fe-Co Alloy Nanoparticles*, *MRS Proceedings*, 501 (2011) 121.
- [4] K. Park, Y. Hirayama, M. Shigeta, Z. Liu, M. Kobashi, K. Takagi, *Anisotropic Sm-Co nanopowder prepared by induction thermal plasma*, *Journal of Alloys and Compounds*, 882 (2021) 160633.
- [5] Y. Hirayama, M. Shigeta, Z. Liu, N. Yodoshi, A. Hosokawa, K. Takagi, *Anisotropic Nd-Fe ultrafine particles with stable and metastable phases prepared by induction thermal plasma*, *Journal of Alloys and Compounds*, 873 (2021) 159724.
- [6] M. Shigeta, T. Watanabe, *Effect of Saturation Pressure Difference on Metal-Silicide Nanopowder Formation in Thermal Plasma Fabrication*, *Nanomaterials*, 6 (2016) 43.
- [7] M. Shigeta, T. Watanabe, *Effect of precursor fraction on silicide nanopowder growth under thermal plasma conditions: A computational study*, *Powder Technol.*, 288 (2016) 191–201.
- [8] Y. Hirayama, M. Shigeta, K. Takagi, K. Ozaki, *Spatial composition distribution of a Ni-Cu binary alloy powder in a thermal plasma process*, *Journal of Alloys and Compounds*, 898 (2022).
- [9] Y. Hirayama, K. Takagi, *Evaluation of compositional homogeneity of Fe-Co alloy nanoparticles prepared by thermal plasma synthesis*, *Journal of Alloys and Compounds*, 792 (2019) 594–598.
- [10] A. Vorobev, O. Zikanov, P. Mohanty, *A Co-Condensation Model for In-Flight Synthesis of Metal-Carbide Nanoparticles in Thermal Plasma Jet*, *Journal of Thermal Spray Technology*, 17 (2008) 956–965.
- [11] S. Sakurada, A. Tsutai, T. Hirai, Y. Yanagida, M. Sahashi, S. Abe, T. Kaneko, *Structural and magnetic properties of rapidly quenched (R,Zr)(Fe,Co)₁₀N_x (R=Nd,Sm)*, *J. Appl. Phys.*, 79 (1996) 4611.
- [12] S. Okada, K. Takagi, *Novel synthesis of single-crystalline TbCu₇-type Sm-Fe powder by low-temperature reduction-diffusion process using molten salt*, *J. Rare Earths*, (2021), in press (<https://doi.org/10.1016/j.jre.2021.05.017>).
- [13] K. Park, Y. Hirayama, M. Shigeta, Z. Liu, M. Kobashi, K. Takagi, *Anisotropic Sm-Co nanopowder prepared by induction thermal plasma*, *Journal of Alloys and Compounds*, 882 (2021) 160633.
- [14] Y. Hirayama, M. Shigeta, Z. Liu, N. Yodoshi, A. Hosokawa, K. Takagi, *Anisotropic Nd-Fe ultrafine particles with stable and metastable phases prepared by induction thermal plasma*, *Journal of Alloys and Compounds*, 873 (2021) 159724.

4. 成果の実用化に向けた取組及び見通しについて(テーマ A2)

4.1 成果の実用化に向けた取組及び見通しについて(テーマ A2)

【実用化の見通し】

データ駆動型材料開発技術について、マテリアルズ・インフォマティクスとプロセス・インフォマティクスについては、プログラムを企業に提供できる状況にある。個別企業に対してチューニングを行う事により、提供が可能。ハイスループットプロセス技術は、材料探索手法として企業への技術移転が可能となっている。また、新たに開発した装置は、まずは内部での材料開発手法として取り組み、知財を確保した後に、企業への技術移転を図る。準安定系の磁石材料については、高磁化でかつ異方化が可能な材料開発ができればインパクトは大きいですが、まだ開発途上である。

(付録) 研究発表・講演、文献、特許等の状況

(1) 研究発表・講演

発表者	所属	タイトル	雑誌名・学会名・イベント名等	発表年月
柏谷裕美、 下島康嗣、 細川裕之	産業技術総 合研究所	機械学習による入 力層追加に対応し た磁気特性予測モ デルの作成	日本金属学会 2022 年春期(第 170 回) 講演大会	2022 年 3 月
下島康嗣、 柏谷裕美、 細川裕之	産業技術総 合研究所	ベイズ最適化を用 いた Sm-Fe 合金粉 末のボールミル加 工条件の最適化探 索	日本金属学会 2022 年春期(第 170 回) 講演大会	2022 年 3 月
柏谷裕美、 下島康嗣、 細川裕之	産業技術総 合研究所	磁性材料用データ ベース構築に向け たデータ変換技術 の開発	日本金属学会 2022 年春期(第 170 回) 講演大会	2022 年 3 月

(2) 論文

発表者	所属	タイトル	雑誌名・学会名・ イベント名等	ページ番 号	発表年 月
Taro Fukazawa, Yosuke Harashima, Takashi Miyake	AIST, NIMS, University of Tsukuba	A first-principles study on the stability of (R, Zr)(Fe, Co, Ti) ₁₂ against 2-17 and simple phases (R=Y, Nd, Sm)	Physical Review Materials	6, 054404	2022
Taro Fukazawa, Hisazumi Akai, Yosuke Harashima, Takashi Miyake	AIST, University of Tokyo, University of Tsukuba, NIMS	First-principles investigation of Nd(Fe, M) ₁₂ (M = K-Br) and Nd(Fe, Cr, Co, Ni, Ge, As) ₁₂ : Possible enhancers of Curie temperature for NdFe ₁₂ magnetic compounds	Acta Materialia	226, 117597	2022
Y. Hirayama, M. Shigeta, K. Takagi and K. Ozaki	National Institute of Advanced Industrial Science and Technology	Spatial composition distribution of a Ni- Cu binary alloy powder in a thermal plasma process	Journal of alloys and compounds	162792	2022/03

(3) 特許等(知財)

準備中(2022.10 末、出願予定)

【4】 研究開発項目①-2

重希土類を使用せず、供給途絶懸念のあるレアアースの使用を極力減らす、又は使用しない高性能新磁石材料を探索するための新しい磁石開発手法の開発

国立大学法人東北大学、株式会社東芝、公益財団法人豊田理化学研究所(テーマA1)

1. 事業の位置付け・必要性について(テーマA1):事業全体の I 章参照
2. 研究開発マネジメントについて(テーマA1):事業全体の II 章参照
3. 研究開発の成果と達成状況(テーマ A1)

3.1 事業(テーマ A1)全体の成果

研究項目(2)-2「高鉄濃度希土類磁石化合物における相平衡とプロセス技術開発」(国立大学法人東北大学、株式会社東芝、公益財団法人豊田理化学研究所)

本研究では、(株)東芝と東北大学が連携し(2021年度は研究者の異動によって豊田理化学研究所も加わる)、高鉄濃度 TbCu₇型 SmFe_x 磁石化合物において、非平衡状態図計算、液体急冷/熱処理プロセス技術、微細組織解析技術を組み合わせることによって、高い磁気特性の発現に必要なプロセス指針を得ることを目的とした。

その結果、合金組成ならびに作製条件の最適化によって高鉄濃度(SmFe_x($x \geq 9$))と高い保磁力($H_{cJ} \geq 640$ kA/m(8 kOe))が両立できる条件を確立するとともに、最大で 695 kA/m なる既報値を超える高い保磁力を得た。また、これら急冷薄帯を用いて等方性ボンド磁石を作製したところ、ネオジムボンド磁石の半分のレアアース使用量で同等の磁気特性が得られ、ネオジムボンド磁石よりも温度特性が良好で高い耐熱性を示すことが確認された。

さらにこれらの急冷薄帯の微細組織の観察により、結晶粒径は 20~50 nm と単磁区粒子サイズ以下であること、Nb と B が結晶粒界に濃化することなどが判明した。すなわち、非強磁性元素の Nb と B の粒界への濃化によって主相の TbCu₇ 相微結晶が磁氣的に分断され保磁力が増加したものと考えられる。

一方、Sm-Fe 系合金における出現相の有限温度での自由エネルギーから、その安定性に及ぼす添加元素の影響を検討し、数種の希土類元素が SmFe₇ 相の安定化に有効であること、その元素(X)を用いた Sm-Fe-X 三元系合金の非平衡状態図を作成して SmFe₇ 相が安定する組成範囲、などを明らかにした。

3.2 研究開発項目毎の成果

[1]高鉄濃度希土類化合物微結晶創製技術の開発(担当:東芝)

【達成目標】

TbCu₇型結晶の高鉄濃度(SmFe_x($x \geq 9$))と高い保磁力($H_{cJ} \geq 640$ kA/m (8 kOe))が両立できる添加元素の特定と急冷薄帯の作製条件を確立する。

【開発成果】(評価◎)

(株)東芝は高鉄濃度希土類化合物微結晶創製技術の開発を担当した。2020年度は、粒径数 10 nm レベルの均一な高鉄濃度微結晶を得るための合金組成と液体急冷条件と熱処理条件を検討し、平均粒径数 10 nm の高鉄濃度 TbCu₇型結晶(SmFe_x($x \geq 9$))実現に必要な材料組成/プロセス基本条件を決定した。続いて 2021年度は、前年度に抽出された基本条件をベースに「データ駆動による高鉄濃度準安定系磁石材料の開発」(担当:国立研究開発法人産業技術総合研究所、国立研究開発法人物質・材料研究機構)で構築されるデータ駆動材料開発手法ならびに「高鉄濃度希土類化合物の非平衡状態図の構築(担当:東北大学)」の研究開発項目から効果が予

想される各種添加元素などを用いて、高鉄濃度を維持しながら高保磁力化を目指した。これらの研究遂行に際しては、東北大学の微細組織解析技術、非平衡状態図計算との連携が重要であった。

これらによって、 $TbCu_7$ 型結晶の高鉄濃度 ($SmFe_x$ ($x \geq 9$)) と高い保磁力 ($H_{cJ} \geq 640$ kA/m (8 kOe)) が両立できる添加元素の特定と急冷薄帯の作製条件を確立した。また、このような優れた磁気特性を有する高鉄濃度 $TbCu_7$ 型 Sm-Fe-Co-Nb-B 系合金を用いて、等方性ボンド磁石を試作したところ、図1のような磁気特性が得られ、既存のネオジムボンド磁石に対して半分のレアアース使用量で残留磁束密度が同等の特性を示すことを確認した。

また、本ボンド磁石は表1に示すように温度特性が良好でネオジムボンド磁石よりも高い耐熱性を持つことも確認されている。

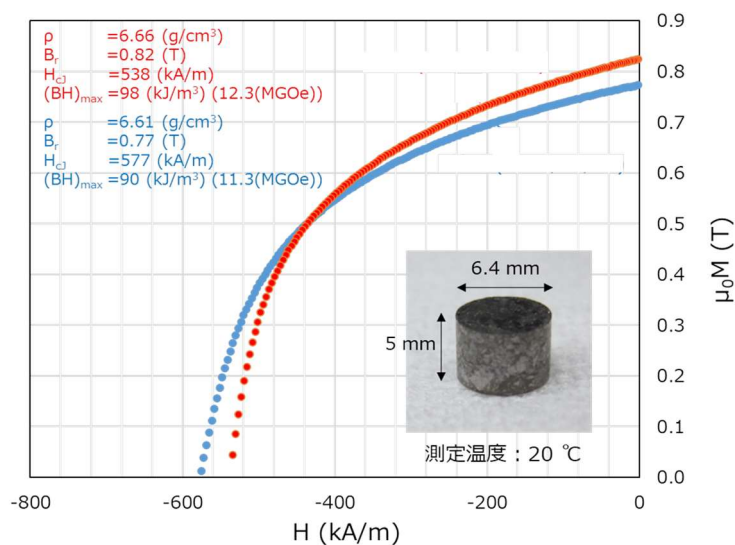


図1 本研究で試作した Sm-Fe-Co-Nb-B 系等方性ボンド磁石の外観図と減磁曲線

表1 本研究で試作した Sm-Fe-Co-Nb-B 系等方性ボンド磁石と市販の等方性 Nd-Fe-B 系ボンド磁石の磁気特性の比較([1] 株式会社ダイドー電子 カタログ「NEOQUENCH-P」 NP-12L, [2] J. Magn. Magn. Mater., 303, e371-e374 (2006).)

	B_r (T)	H_{cJ} (kA/m)	$(BH)_{max}$ (kJ/m ³)	α (%/°C)	β (%/°C)
SmFeCoNbB	0.77-0.82	538-577	90-98	-0.05~6	-0.27~8
NdFeB	0.72-0.77 ^[1]	716-836 ^[1]	88-99 ^[1]	-0.10 ^[1]	-0.35 ^[2]

[2]高鉄濃度希土類化合物急冷薄帯の組織解析(担当:東北大学)

【達成目標】

TbCu₇型結晶の高鉄濃度(SmFe_x ($x \geq 9$))と高い保磁力($H_{cJ} \geq 640$ kA/m (8 kOe))の両立を実現させる微細組織の形態を明らかにする。

【開発成果】(評価◎)

東北大学では[1]を担当した(株)東芝と連携し、組織解析を担当した。2020年度は、合金組成と液体急冷条件などの作製条件による出現相の変化ならびに微細組織を調べ、粒径が数十nmオーダーの均一な高鉄濃度結晶を得るための作製条件を明らかにした。その結果、Sm-Fe-Co-Nb-B系急冷薄帯を作製する際に、石英ノズルを用い、そのノズル径やロールとのギャップ、射出ガス圧力、ロール周速を最適化することで、as-spun状態でアモルファス構造を有する急冷薄帯の作製が可能となることがわかった。また、これらアモルファス状態となった急冷薄帯を様々な条件で熱処理した試料を用いて出現相ならびに微細組織を観察し、熱処理条件と出現相・微細組織の関係を調べて随時[1]担当の製造プロセス条件に反映させた。その結果、適する熱処理条件で熱処理すると、主相としてTbCu₇型化合物が形成されること、そのTbCu₇型化合物をSm(Fe,Co)_xと表したときのxの値は $x \geq 9$ となり高鉄濃度であること、さらにその主相の平均粒径は20~50nmと単磁区粒子サイズ以下の微結晶となること、などが分かった。

続いて2021年度は、2020年度に判明した組成ならびに試料作製条件を基に、TbCu₇型結晶の高鉄濃度(SmFe_x ($x \geq 9$))と高い保磁力($H_{cJ} \geq 640$ kA/m (8 kOe))を両立できる試料作製条件と微細組織の形態の明確化を目標とした。その結果、 $x \geq 9$ と高鉄濃度で液体急冷条件ならびに熱処理条件の最適化によって目標値を上回る695 kA/mなる最高保磁力が得られた。また、これら高保磁力が得られた試料では、図2で示したように数十nmの微結晶から構成されていること、さらに熱処理時間が長時間になるに従って粒界にはNbやBが濃化していること、などが微細組織観察から明らかになった。すなわち、主相のTbCu₇型化合物相が単磁区粒子サイズで出現することに加え、その粒界にNbやBが濃化することによって結晶粒界が非強磁性相となり、主相の磁氣的孤立化が進んで高保磁力が出現することが示唆された。

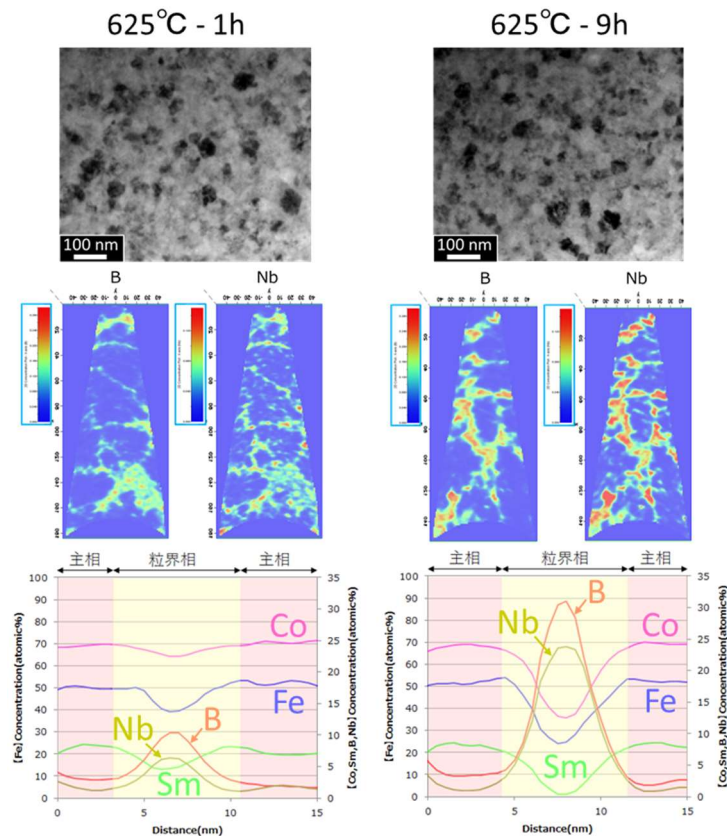


図2 625°Cで1時間または9時間熱処理した Sm-Fe-Co-Nb-B-系急冷薄帯における組織と3次元アトムプローブによる元素マップ

[3]高鉄濃度希土類化合物の非平衡状態図の構築(担当:東北大学、豊田理化学研究所)

【最終目標】

Sm-Fe 系安定、準安定状態図の完成と 40 種類以上の添加元素の影響を明らかにし安定化に寄与する元素を特定する。

【開発成果】(評価◎)

本研究において2020年度は、Sm-Fe 系合金における出現相の有限温度での自由エネルギーを求め、その安定性に及ぼす添加元素の影響を検討した。なお、計算には SmFe_7 型化合物の規則構造の一つである $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ を選択し、その構造に対する添加元素の影響を調べることで SmFe_7 型化合物の安定性の指標とした。その結果、Sm サイトに置換する可能性がある元素を選択し化合物の生成エンタルピーおよび磁気モーメントを評価したところ、数種の希土類元素が SmFe_7 相の安定化に有効であることが判明した。

2021年度は、2020年度の計算を発展させ、Sm-Fe-X 系三元系状態図の作成ならびに TbCu_7 型相の安定性に及ぼす添加元素の影響を調べた。その結果、Sm-Fe 系合金に添加元素(40 元素以上)を加えたときの自由エネルギーを計算し、 SmFe_7 相の分解速度を低下させる元素(X)が判明した。さらに、その Sm-Fe-X 三元系合金について非平衡状態図を作成して SmFe_7 相が安定する組成範囲を明らかにした。

4. 成果の実用化に向けた取組及び見通しについて(テーマ A1)

4.1 成果の実用化に向けた取組及び見通しについて

●研究開発成果の産業界における具体的利用の形態、実用化が想定される製品

本研究開発において得られた SmFe 系磁石粉末を樹脂と混合して一体成型することで等方性ボンド磁石として実用化することが可能となる。等方性ボンド磁石に関してはすでに磁石メーカーとの議論を開始しており、量産化を目指して製造技術開発を進めている。また、本等方性ボンド磁石はモーターや発電機に組み込まれて使用されることが想定される。本研究開発の等方性ボンド磁石を使用したモーターの有効性を検証するため、まずは小型モーターにてモーター設計最適化の検討に着手している。一方、本研究開発において得られた磁石粉末は等方性ボンド磁石にとどまらず、異方性ボンド磁石または焼結磁石としての実用化も可能性がある。異方性ボンド磁石実現のためには結晶配向が課題であり、焼結磁石化のためにはこれと合わせてバルク一体化も課題となる。

●実用化に向けた課題と今後の方針

SmFe 系等方性ボンド磁石の実用化に向けては、製造技術開発とモーター適用性検証が課題となる。本研究開発において実証した高性能 SmFe 系等方性ボンド磁石の原料となる TbCu₇ 型化合物急冷薄帯とそれを用いたボンド磁石を量産規模で製造するための基盤技術開発が必要となる。また、前記 SmFe 系等方性ボンド磁石を適用したモーターの設計検討により、モーターとしてのメリットを明確にして適用性を検証することが重要である。

一方、SmFe 系焼結磁石実現に向けては、まずは SmFe 系 TbCu₇ 型化合物急冷薄帯をベースにした原理検証を実施する。具体的には、状態図計算から抽出された添加元素による TbCu₇ 型結晶安定化と低速冷却プロセスによる大粒径高保磁力化の可能性検証及び焼結法によるフルデンス化の可能性検証などが重要となる。

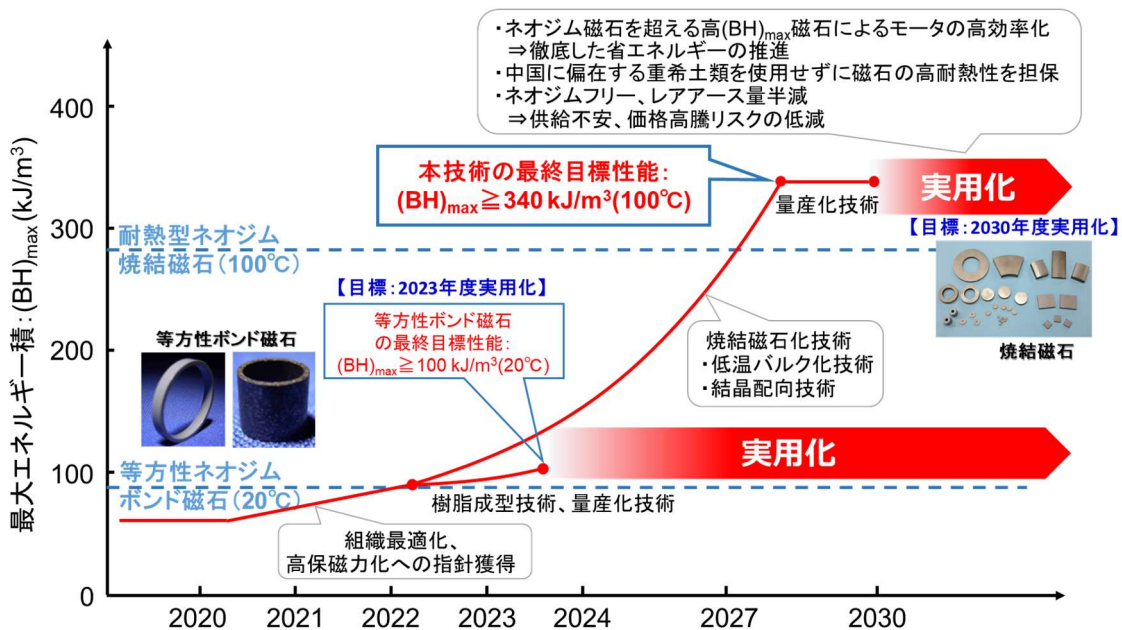


図3 実用化に至るまでのシナリオ・構想

添付資料

【特許】

番号	出願者	出願番号	国内・国外・PCT	出願日	状態	名称	発明者
1	東芝、 東北大学	特願 2021-189389	国内	2021/11/22	出願	磁石材料及 び永久磁石	桜田新哉、 杉本諭、 松浦昌志

【論文】

番号	発表者	所属	タイトル	発表誌名、 ページ番号	査読	発表年月
1	N. Kurokawa ¹⁾ , M. Matsuura ¹⁾ , S. Sakurada ²⁾ , S. Sugimoto ¹⁾	1) Tohoku University 2) Toshiba Corporation	Enhancement of magnetic properties and microstructural changes in TbCu ₇ -type Sm-Fe-Co-Nb-B melt- spun ribbons	J. Magn. Magn. Mater., 556, 169414-1~ 9, (2022).	有	2022/4/27

【外部発表】

(a) 学会発表・講演

番号	発表者	所属	タイトル	会議名	発表年月
1	黒川直樹 ¹⁾ 、 松浦昌志 ¹⁾ 、 手束展規 ¹⁾ 、 杉本諭 ¹⁾ 、 桜田新哉 ²⁾	1) 東北大学、 2) 東芝	TbCu ₇ 型 Sm-Fe-Co- Nb-B 系急冷薄帯の磁 気特性と微細組織	日本金属学会 2022 年春期講演大会	2022/3/16
2	桜田新哉	東芝	高鉄濃度 SmFe 系非平 衡化合物の生成と磁気 特性	令和 4 年電気学会全 国大会シンポジウム	2022/3/23

(b) 新聞・雑誌等への掲載

番号	所属	タイトル	掲載誌名	発表年月
1	東北大学、東芝	磁石、レアアース使用半減 東芝、調達 リスク抑える	日本経済新聞,朝 刊 16 面	2022/3/1
2	東北大学、東芝	サマリウムでボンド磁石 東北大・東芝 コスト・資源リスク抑制	日刊工業新聞,朝 刊 25 面	2022/3/1
3	東北大学、東芝	レアアース使用量半分で従来以上の磁力 東北大と東芝が新しい磁石開発 余剰 資源のサマリウム活用	電波新聞,朝刊 4 面	2022/3/1
4	東北大学、東芝	車載モーター用磁石 レアアース使用 半減 東芝、東北大 耐熱性も向上	電気新聞,朝刊 4 面	2022/3/1
5	東北大学、東芝	余剰資源サマリウム活用の新しい磁石 東北大と東芝が開発	電波新聞デジタル	2022/3/1
6	東北大学、東芝	東芝、レアアース使用量半分の磁石開発 調達リスク軽減	日本経済新聞(電 子版)	2022/3/1
7	東北大学、東芝	東北大と東芝、サマリウムでボンド磁石 コスト・資源リスク抑制	日刊工業新聞(電 子版)	2022/3/1
8	東北大学、東芝	東芝と東北大学が共同開発、レアアース 半分で同等の磁力	日刊自動車新聞 (電子版)	2022/3/1

(c) その他

番号	所属	タイトル	掲載、放映	発表年月
1	東北大学	少ないレアアース量でネオジムボンド磁石と同等磁力を持つサマリウム鉄系等方性ボンド磁石を開発	東北大学ホームページ	2022/3/1
2	東芝	少ないレアアース量でネオジムボンド磁石と同等磁力を持つサマリウム鉄系等方性ボンド磁石を開発	東芝ホームページ	2022/3/1
3	東芝	レアアースが半分で済む“磁石”	テレビ東京 WBS “トレンドたまご”	2022/3/8

研究開発項目②

低品位レアアースを利用した機能性材料の開発

【5】 研究開発項目②-1

低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発

産業技術総合研究所株式会社、日本原子力研究開発機構、ニッキ株式会社(テーマC1)

【6】 研究開発項目②-2

低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証

産業技術総合研究所株式会社(テーマC2)

1. 事業の位置付け・必要性について(テーマC)

1-1. 事業の背景

レアアースは機能性材料元素に分類され、環境に配慮した先端産業には欠かせないものとなっている[1]。一方、銅、亜鉛等のベースメタルと比べて市場が小さいことから、需給バランスの僅かな変化で価格動向に大きな影響を及ぼす。この様に産業への供給リスクが高いことは、2009年に起こった中国によるレアアース輸出制限による価格高騰からも明らかである。これらの事態を受けて、レアアース調達先の多様化のために、オーストラリア、ベトナム、インド、カザフスタン等の権益を日本企業は確保しており[1]、レアアース輸入の中国依存度は2009年の85%から2018年では58%と大幅に低下した[2]。しかしながら、中国におけるレアアース分離精製技術の高度化が進んでおり、その他の国からの輸入品では品質の点で中国製より劣るためその使用を見合わせる事が多く、調達先の多様化が達成されたとはいえない[3]。

レアアースの中でもセリウムは最も需要が高い元素であり、その用途は多岐にわたる[2]。中でも、セリア(CeO_2)を含んだ水性スラリーは材料表面の塩基性サイトと化学的に反応することが可能なため、機械的研磨よりも研磨速度を高められることから、化学機械研磨(Chemical Mechanical Polishing: CMP)材として、半導体のウェハー、電子ディスプレイ用ガラス基板、眼鏡レンズ等の研磨に用いられている[4]。スマートフォン、タブレットPC、ノートPC等に代表される電子機器の、さらなる小型化・高性能化へ向けた半導体デバイスの微細化・多層化に伴い、半導体製造に必要なCMP材に要求される特性も多様化している[5]。また、セリアは自動車排ガス浄化用触媒の助触媒としても不可欠である。国際的な排ガス規制の強化により、自動車排ガス浄化用触媒の需要増加が予想されていることから[6]、その主要成分であるパラジウム、白金、ロジウムと共にセリアの安定供給の必要性も高まっている。

以上の状況を鑑みると、将来的なセリウムの供給逼迫や価格高騰の可能性は否めず、現時点からその資源リスクの回避、つまり特定の軽希土類元素の産地に限定されず多様なサプライチェーンを活用することが求められる。しかしながら、上記の様に中国以外で生産されるセリウムは純度の面で不十分である。ゆえに国内での高純度化を可能にする技術や低純度のセリウムでも一定の性能を発揮する材料の開発が行えれば、これらの問題を解決することができる。

1-2. 事業の目的の妥当性

(1) 市場・需給動向 [2,7]

2018年のレアアースの国際市場は80億USDである。レアアース鉱石の生産量は190.0千ton(REO)であり、そのうち中国が生産量の63%を占めている。日本の輸入相手国としても中国が最大で、その輸入量は全体の約58%となっている。また、酸化セリウム及びセリウム化合物については、中国からの輸入量は、それぞれ全体の87%及び56%である。

(2) 政策動向

①国外 [8]

欧州原材料アライアンスが公表した(2021年9月30日付)、欧州産業のレアアースへのアクセス確保のためのアクションプラン「レアアースマグネット及びモーター:欧州行動要求」では、欧州のレアアース需要の現状と予測、供給確保のために取るべき措置について説明している。

米大統領府では2022年2月22日付けで米国内のレアアースを含むクリティカルミネラルサプライチェーンを強化することを目的とした新たな政策方針を発表した。2020年エネルギー法の下でクリティカルメタルは、脆弱なサプライチェーンを有する米国経済あるいは安全保障上必要不可欠な非燃料鉱物又は鉱物材料と定義されており、米国地質調査所はクリティカルミネラルとして、50鉱種を指定し、レアアースではプロメチウム以外すべての元素が選ばれている。

中国は2021年1月15日にレアアースの管理に関する統一的な法律を制定するために「レアアース管理条例」を公表し、以下の3点よりその必要性を説明している。1) 国家利益と戦略資源産業の安全を守る観点からレアアースの統一的な管理が必要となっている。2) 無許可の採掘、生産、取引に対する取り締まりを強化し、法律に則ったレアアースの生産経営秩序の規範化を行う必要がある。3) レアアースの採掘、抽出・分離のみならず、備蓄、流通、二次利用、輸出等を含むサプライチェーン全体の管理を行う必要がある。

②国内

令和3年2月15日 資源エネルギー庁 資源・燃料部より発表された「2050年カーボンニュートラル社会実現に向けた鉱物資源政策」においては、レアアース施策の方向性案として、「レアアースは、高性能磁石用途を始め、最先端技術分野で幅広く使用されている。サプライチェーン上のリスクとしては、国別生産寡占度、価格変動幅、スクラップ等再生の数値が高い。現状、鉱石生産・製錬工程が特定国に偏在。また、市場規模が小さく、価格変動幅も大きいため、資源利用時のリスクが高く、コストの問題等からリサイクルが進んでいない。このため、供給リスクの分散につながる上流開発支援、製錬所支援、備蓄、省資源・代替材料技術開発、リサイクル支援等の総合的な対策が必要。」と記載されている。

(3) 内外の技術動向

①国外

米国エネルギー省(DOE)がCritical Materials Institute(CMI)を設立し、リサイクルを含めたレアアース製錬に関する研究も行われている。溶媒抽出法によるレアアース相互分離では、硝酸系において軽レアアースに対し高い分離係数を示している[9]。

Seren Technologie社では、Queens 大学 Belfast との特許(イオン液体によるレアアース抽出)に基づき、英国において商業化を目指した磁石のリサイクルプラントの稼働を開始している[10]。

中国では環境に配慮したレアアース製錬プロセスも提案され始めている。レアアース精製工程で生じたCO₂とMgにより製造したMg(HCO₃)₂溶液を、抽出剤の saponification 工程や、レアアースを沈殿させる際の中和剤として精製工程において使用することで、アンモニア窒素フリーの排水が行えるとともに、投入する塩の量及びCO₂排出量の低減も可能である[11]。

②国内

レアアース製錬に関する研究は、NEDO「高効率な資源循環システムを構築するためのリサイクル技術の研究開発事業」において進められており、ネオジム磁石のリサイクルを対象とし、プラセオジムとネオジムの相互分離及び廃磁石からのネオジムとジスプロシウムの同時回収について研究が行われている。

参考文献

- [1] レアメタルの最新動向、監修 岡部徹、野瀬勝弘、シーエムシー出版 (2012).
- [2] JOGMEC、鉱物マテリアルフロー2019.
- [3] 企業ヒアリング.
- [4] E. J. Schelter, *Nat. Chem.*, **5**, 348 (2013).
- [5] 野部ら、日立化成テクニカルレポート, **55**, 17 (2013).
- [6] International Energy Agency, *Energy Technology Perspective* 2017.
- [7] M. Summers, *Rare Earth Markets and Imbedded Demand*, https://www.netl.doe.gov/sites/default/files/2019-05/2019_Annual_Reports/Wednesday/REE/12%20-%20REE%20Review%20Presentation_Summers%2020190408.pdf
- [8] JOGMEC、ニュース・フラッシュ、https://mric.jogmec.go.jp/news_flash/?me=レアアース/希土類
- [9] M. R. Healy et al.: *Chem. Eur. J.*, **25**, 6326–6331 (2019).
- [10] P. Nockemann et al.: *International Patent*, WO2019239150A1.
- [11] X.-W. Huang et al.: *Rare Met.*, **34**, 215–222 (2015).

2. 研究開発マネジメントについて(テーマC)

2-1. 事業の目標

含有量や、不純物が多く、現状ではそのままで利用が難しいレアアース（低品位レアアース）を利用した多用途、代替化、高付加価値化等を目指した機能性材料開発を行うために、以下の2項目の検討を行った。

(1) C1 低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発

複数地域から供給可能でも低品位のためにそのままで利用が難しいセリウム化合物の品位を、化学機械研磨 (Chemical Mechanical Polishing: CMP) 材等の素材として、当該製品の生産者が求める品位にまで高め、我が国触媒産業等の発展に寄与することを目指す。環境負荷が高い硝酸性窒素等の排水への流出を考慮し、硝酸溶液を使用しない分離法を開発する。最終的には、小型かつ大量処理が可能で、実プロセスに導入可能な分離装置を用いた試験を行い、実用化への課題を明確にする。また、以下の各項目について要素技術を確立する。

② セリウム溶媒抽出における選択性向上 : 忌避元素残存率 0.01%以下

② 分離プロセスの高効率化：従来型ミキサーセトラー比で装置規模 1/2（同等能力運転）

(2) C2 低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証

セリウム化合物が助触媒として必須である自動車排ガス浄化触媒について、低品位セリア原料の使用率の高くかつ実用触媒並みの浄化性能を備える触媒調製技術を、触媒材料並びにハニカム部材化も含めて開発する。低品位のために利用できない軽希土類化合物について、高品位原料から調製した触媒材料の浄化性能と比較し低下した浄化性能を補うため、触媒組成および構造の最適化等による触媒性能向上を図り、低品位原料を有効利用できる技術開発・実証を実施する。低品位原料からでも高性能な触媒材料が調製できる、高付加価値な触媒材料技術を開発することで、自動車排ガス浄化触媒の高性能化に不可欠なレアアース（酸化セリウム）の原料代替化を目指し、我が国の技術力の底上げや国際競争力の強化、サプライチェーンの強靱化に貢献する。また、以下の各項目について要素技術を確立する。

① 触媒の構成成分の見直しと適材配置を提案：実用触媒同等性能／プロピレン浄化率 50%の温度 300℃以下（ストイキ組成のモデルガスによるライトオフ特性評価法に準じる、文献：自動車技術会論文集 Vol. 50, No. 5, September 2019 p1293 等）

② 低品位原料の触媒部材の利用割合最適化：低品位原料の利用比（重量比）50%以上

2-2. 研究開発計画の内容

2-2-1. C1 低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発

(1) 研究内容、計画及び予算

希土類元素は元素間の性質が極めて類似していることから、その相互分離は、金属の分離工学においても最難関技術の一つである。今回、分離対象となる 3 価セリウム(Ce^{3+})も原子番号が隣の 3 価ランタン(La^{3+})及び 3 価プラセオジウム(Pr^{3+})とのイオン半径の差は、いずれも 0.017 Å であり、アルカリ金属の Na^+ と K^+ のその差が 0.33 Å であることから、極めて小さな差である。Ce を Ce^{4+} に酸化することで、3 価が安定な他の希土類イオンから分離する方法もあるが、主に硝酸系で行われるために、硝酸性窒素に関する廃水規制が厳格化されている国内では、廃水処理の際に問題がある。

工業的な希土類元素の相互分離工程のほとんどが、抽出分離装置にミキサーセトラーを用いた溶媒抽出法によって行われている。前述の様に、化学的性質の類似した希土類元素の分離には多段の分離操作を行う必要があり、それに伴い使用する有機溶媒の量も増加する。消防法による有機溶剤の保管量の制限や多段の分離槽を稼働させるためのランニングコストにより、国内における分離精製の実施は極めて困難な状況になっている。これら諸問題の打開には、分離装置の大幅見直しと Ce^{3+} に対し選択性の高い抽出剤の導入の二点が重要になる。

そこで本プロジェクトでは、ミキサーセトラーに替わる新規分離装置として、エマルションフロー装置の導入を検討する。そのために① Ce^{3+} に対する高選択抽出分離系の探索、②エマルションフロー装置による Ce^{3+} の高純度化及び③実工程液による分離試験及びプロセス評価の 3 テーマの研究を行う。①ではエマルションフロー装置へ導入する抽出剤等の条件設定のために、数種類の抽出系に関して、バッチ試験によるレアアースの基礎的データを取得することで、 Ce^{3+} に対する分離性能を評価する。②ではラボ用エマルション

フロー装置を用い、①で評価された抽出剤を使用して、La, Ce, Pr, Nd の混合溶液から Ce の高純度化試験を行う。③では実液試験用エマルションフロー装置による実工程液を用いた分離試験を行い、Ce 分離データの取得、及びそれに基づく実用化への課題を抽出する。

表 2.1 研究実施計画 C1

研究開発項目 C1 低品位レアアース の高品位化に資する改質技術の開発	2020 年度		2021 年度			
	第 3 四半期	第 4 四半期	第 1 四半期	第 2 四半期	第 3 四半期	第 4 四半期
①Ce ³⁺ に対する高選択抽出分離系の探索 (担当:産総研、ニッキ) ・有機リン系抽出剤による La/Ce/Pr/Nd のバッチ抽出試験 ・DGAA による La/Ce/Pr/Nd のバッチ抽出試験 ・協同抽出系及び TAA による La/Ce/Pr/Nd のバッチ抽出試験						
②エマルションフロー(EF)装置による Ce ³⁺ の高純度化 (担当:原子力機構) ・ラボ試験用 EF 装置の設計・導入 ・有機リン系抽出剤による La/Ce/Pr/Nd の EF 抽出試験 ・DGAA による La/Ce/Pr/Nd の EF 抽出試験 ・ラボ試験用 EF 装置の改良・最適化						
③実工程液による分離試験及びプロセス評価 (担当:ニッキ) ・実液試験用 EF 装置の設計・導入 ・実液試験用 EF 装置による油水分離試験 ・有機リン系抽出剤による実液試験用 EF 抽出試験 ・実液試験用 EF 装置の改良・最適化 ・実液試験用 EF による Ce 分離に関する プロセス評価						
予算 (千円)	24,635		37,769			

(2) 研究目標値

忌避元素残存率 0.01%以下及び分離プロセスの高効率化(従来型ミキサーセトラー比で装置規模 1/2(同等能力運転))を研究目標値として設定した。前者に関しては、CMP 材として利用可能な Ce の純度が 99.99%以上であることから、忌避元素残存率 0.01%以下とした。後者に関しては、国内精錬を行うために必要な装置規模低減の目安となる値を示した。

(3) 予算内での追加投入

2021年8月に本事業の最終目標達成に大きく寄与する研究開発部分として、予算内での12百万円の追加的な開発促進を実施した。主な購入品、目的、成果を以下に示す。

①エマルションフロー装置付属品等(3.7百万円):Ceのさらなる高純度化及び実用性の向上を行うため、細管束ノズル、pHメータ付きエマルションフロー装置等を導入した。実工程液による試験において生じていた、目詰まり等の問題を解消することができた。

②新規トリアミドアミン型抽出剤(1.1百万円):本事業の研究推進委員会において、「セリウム以外にも対応できる汎用性向上」が推奨されたため、高酸濃度溶液からのレアアース抽出が期待できるトリアミドアミン型抽出剤を導入し、検討した。レアアースの抽出率と原子番号との関係を明らかにし、査読付き英語論文への掲載に至った。

③油分測定計(1.6百万円):新規トリアミドアミン型抽出剤の実用性を調べるために、抽出操作後の水溶液への抽出剤の漏洩濃度を測定した。トリアミドアミン型抽出剤の水溶液の漏洩濃度は極めて低く、問題ないことが分かった。

2-2-2. C2 低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証

(1) 研究内容、計画及び予算

ガソリンエンジン車用の自動車排ガス浄化触媒(三元触媒)において、セリアは助触媒成分として使用されており、理論空燃比近傍での排気ガス組成変動を緩和する酸素貯蔵能、触媒活性成分である貴金属の耐熱性向上等の機能を持つことから、必要不可欠な材料である。現在では、助触媒としての機能を高めるため、セリア単一成分では無くセリア-ジルコニア固溶体の形で使われており、また、セリアとジルコニアの組成比によって特性が変わるため、最適組成で使用されている。したがって、低品位セリウム原料を用いてセリア-ジルコニア固溶体を調製した場合、触媒性能の低下が懸念される。

現行のガソリン車用自動車排ガス触媒(三元触媒)は、コーゼライト等のセラミックスハニカムの内壁に触媒粉末をコーティングした構造になっている。現在よく使われている触媒粉末の構成は、RhあるいはPd金属を担持したセリア系材料粉末とPd金属を担持したアルミナ系材料粉末を50:50で混合したものである。本研究においては、低品原料利用による触媒性能低下を補うため、これら触媒の構成成分の見直しやナノメートルレベルでの適材配置等により高性能化を図り、現行の実用触媒と同等の浄化性能を目指す。その手法として触媒調製技術が非常に重要であり、従来の貴金属塩を含浸担持する含浸法とは異なり、貴金属触媒成分をナノ粒子として担持する方法が有効であると考えられる。本研究では触媒調製方法として、触媒担体表面上でポリオール還元を誘起し、直接貴金属ナノ粒子を還元析出させて担持する方法である表面ポリオール還元法の適用を検討する。

共沈法等の手法によりセリウムとジルコニウム原料からセリア-ジルコニア複合酸化物担体を合成する。合成したセリア-ジルコニア複合酸化物担体および市販のアルミナ担体にPd等の貴金属ナノ粒子を、表面ポリオール還元法を用いて担持し、触媒粉末を調製する。貴金属組成や助触媒添加量等の異なる調製条件で触媒を調製し、触媒物性と触媒性能特性を比較検討し、最適な触媒組成および触媒構造を探索する。実機評価試験を行うために、調製した触媒粉末をハニカム担体への担持を検討する。触媒粉末を担持したハニカム触媒から切り出したテストピースを、モデルガスを使用した触媒性能評価試験を行い、触媒担持量や触媒層密度等のハニカム触媒の作製条件を最適化する。試作したハニカム触媒についてガソリンエンジン排ガスを使用した実機評価試験を行い、本研究で開発した触媒の実用化に必要な指針を得る。

表 2.2 研究実施計画 C2

研究開発項目 C2 低品位レアアース の触媒等材料への代替利用技術の開発 実証	2020 年度		2021 年度			
	第 3 四半期	第 4 四半期	第 1 四半期	第 2 四半期	第 3 四半期	第 4 四半期
①低品位セリア原料を用いた触媒材料 の研究開発（担当：産総研） ・セリアージルコニア担体の合成およ び触媒調製 ・モデルガスによる触媒粉末の反応活 性評価試験 ・ハニカム担体への触媒担持の最適化 ・モデルガスによるハニカム触媒の反 応活性評価試験 ・ハニカム触媒の実機評価試験						
予算（千円）	27,362		20,222			

(2) 研究目標値

先行研究を参考に開発触媒の研究目標値を、模擬排ガスを用いたライトオフ性能評価におけるプロピレン浄化率 50%の温度 (T_{50}) が 300℃以下、かつ低品位セリア原料の利用率が重量比で 50%以上とした。

2-3. 事業の実施体制

国立研究開発法人 産業技術総合研究所 成田弘一氏を研究開発責任者とし研究開発を実施する。C1 低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発に関しては、バッチ法による基礎的検討を産業技術総合研究所及びニッキ株式会社にて、エマルションフロー装置による基礎的検討を日本原子力研究開発機構にて、実工程液等によるエマルションフロー分離試験をニッキ株式会社にて行い、実験結果をフィードバックしながら、目標達成に向けて研究を進める。

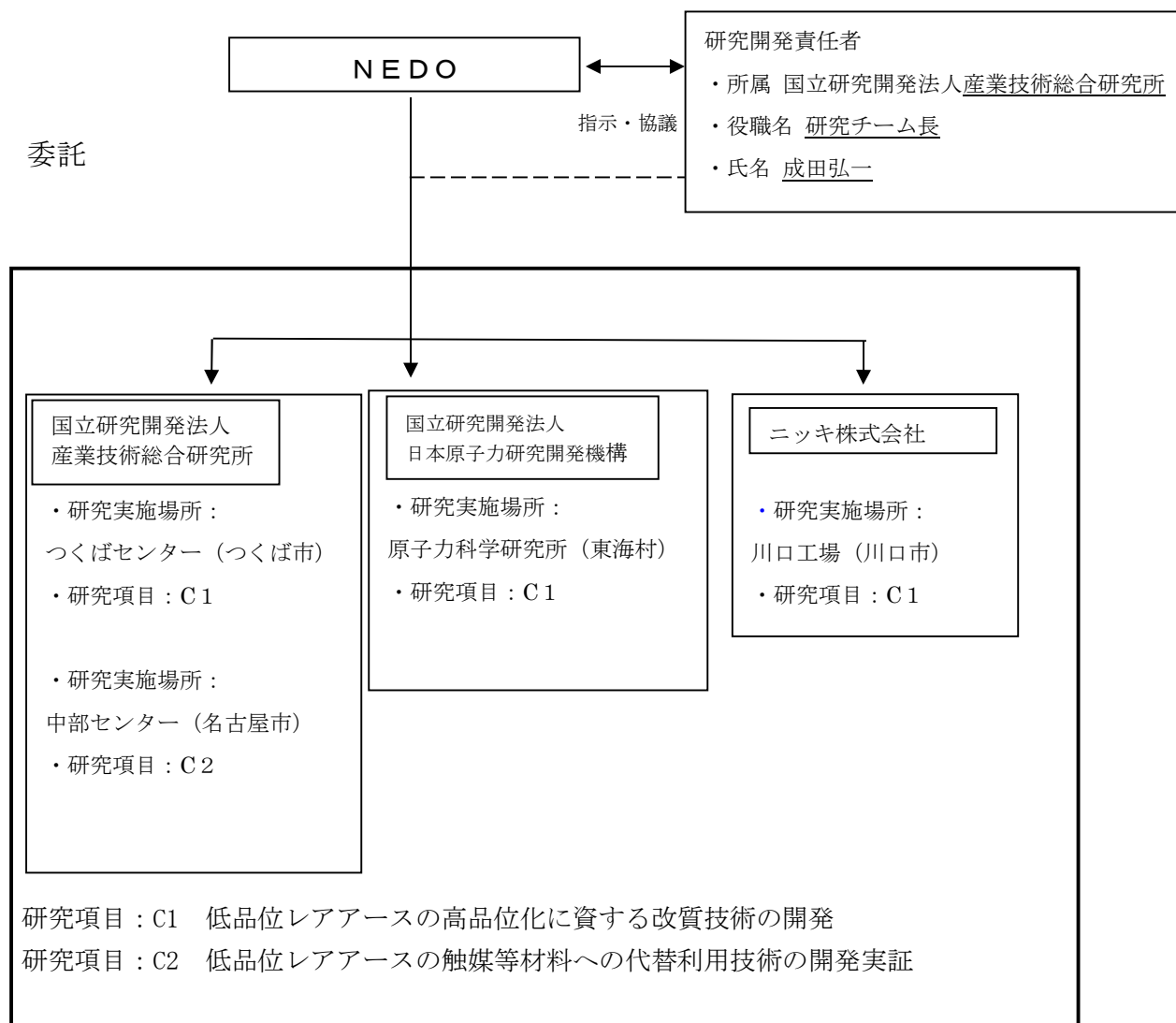


図 2.3 実施体制図

2-4. 技術推進委員会における評価への対応

2-4-1. C1 低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発

表 2.3 第 1 回技術推進委員会コメント

委員コメント	その後の対応
装置の小型化が目的になっておりますので、試験装置のサイズ比較や想定されるプラントサイズ、溶液使用量の従来法との比較を記載された方が説得力が高いと思います。大幅な設置面積低減かと思えます。	エマルションフロー装置規模と従来型のミキサーセトラのそれとを比較して、具体的な低減率を提示した。
100ppb 以外の濃度でも試験して頂き、効率よく抽出できる条件を確定し、最適条件を決定できればと思う。	高金属濃度の条件でも試験を行い、セリウムの抽出分離に適した条件を求めた。
今、実用化されているエマルジョンフローリアクターの特徴を解析し、本プロジェクトの成果を実用化につなげていってほしい。 セリウムは、余剰かつ安価、さらに他の分離法もあるので、本技術の展開はセリウムの精製にこだわる必要はないのではないかと思います。	エマルションフローの実用化へ向けて、細管束ノズルや pH メーター付装置を導入し検討した。 セリウムの他に重レアアースの抽出挙動の検討をトリアミドアミン型抽出剤により行った。
エマルションフローが実用化でこれまであまり適用されなかった課題があるかもしれないので、研究を加速してエマルションフローの実用化に対する課題を見つけ出して早めに対策を講じた開発を進めてください。	模擬液等を用いた試験を行い生じた問題点に関して、細管束ノズル等を導入し試験を行った。
エマルジョンフロー法の有効性に期待するところ大ですが、Ce 以外の希土類抽出も見据えて、そのメーカーニズムに関する基礎研究も視野に入れておくことを望みます。	セリウムの他に重レアアースの抽出挙動の検討をトリアミドアミン型抽出剤により行い、抽出挙動解析から分離メーカーニズムを推定した。

2-4-2. C2 低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証

表 2.4 第 1 回技術推進委員会コメント

委員コメント	その後の対応
自動車用三元触媒以外への応用先を今から考えておいた方がよろしいかと存じます。	三元触媒以外の応用先として、工業用バーナーの未燃焼の炭化水素の浄化等を検討。
低品位セリア原料に実在する不純物が存在する状況での触媒活性を測定し、今後の触媒の改善に活かして頂きたい。	低品位セリア原料を想定して、La 以外の Nd, Pr を加えたセリアージルコニア担体を合成し、触媒活性を測定し、これまでの触媒と比較検討した。
<p>表面ポリオール還元法の特徴や既存技術との差異が今一つ理解できませんでした。</p> <p>現在、自動車触媒の PGM 担持に実用化されている手法も、PGM 化合物を還元剤で還元して微粒子を作成しているので、広い意味では同じではないのでしょうか？</p> <p>現在実用化されている手法も、有機物を添加する場合があるので、ポリオール法のようなメーカーニズムが進行しているのではないのでしょうか</p>	<p>表面ポリオール還元法の場合、ポリオール還元剤量を担体細孔容積以下に限定し、貴金属ナノ粒子が還元析出と同時に担体表面に保持されるため、貴金属ナノ粒子の合成法である液相還元法において貴金属ナノ粒子凝集防止に必須である表面保護剤の添加が必要無いこと等の特徴について説明した。</p>
自動車は EV への移行が進んでいるので、自動車以外の実用化対象物を考えて、それを考慮して研究開発を進めてください。	三元触媒以外の応用先として、工業用バーナーの未燃焼の炭化水素の浄化等を検討。
触媒反応の機構は複雑で、性能向上のためには担体や貴金属がどうであればいいのかなど未解明な点が多いと思います。本テーマでも、表面ポリオール還元法がなぜ低品位セリア原料に対して有効なのか（高品位セリアに対してはどうか）などについて（私のような素人に）クリアな説明がなされていないように思われます。本テーマを足がかりに触媒反応に関する研究が大きく進展することを期待します。	従来の含浸法触媒に比較して、より大きな貴金属ナノ粒子が担持される表面ポリオール還元法は、貴金属と CZ の界面量が少なく、触媒活性が低い結果となり、貴金属の複合化による効果も顕著でないため、低品位セリア材料の使用による性能低下をアルミナ担体触媒の触媒性能向上に有効なセリア添加と、耐熱性が高い触媒が作製できる表面ポリオール還元法を適用することを説明した。

3. 研究開発成果について(テーマ C)

3-1. 研究開発目標及び研究開発成果と達成度

3-1-1. 研究開発目標

レアアースは機能性材料元素に分類され、環境に配慮した先端産業には欠かせないものとなっている[1]。一方、銅、亜鉛等のベースメタルと比べて市場が小さいことから、需給バランスの僅かな変化で価格動向に大きな影響を及ぼす。この様に産業への供給リスクが高いことは、2009年に起こった中国によるレアアース輸出制限による価格高騰からも明らかである。これらの事態を受けて、レアアース調達先の多様化のために、オーストラリア、ベトナム、インド、カザフスタン等の権益を日本企業は確保しており[1]、レアアース輸入の中国依存度は2009年の85%から2018年では58%と大幅に低下した[2]。しかしながら、中国におけるレアアース分離精製技術の高度化が進んでおり、その他の国からの輸入品では品質の点で中国製より劣るためその使用を見合わせる事が多く、調達先の多様化が達成されたとは言い難い[3]。

レアアースの中でもセリウムは最も需要が高い元素であり、その用途は多岐にわたる[2]。中でも、セリア(CeO_2)を含んだ水性スラリーは材料表面の塩基性サイトと化学的に反応することが可能なため、機械的研磨よりも研磨速度を高められることから、化学機械研磨(Chemical Mechanical Polishing: CMP)材として、半導体のウェハー、電子ディスプレイ用ガラス基板、眼鏡レンズ等の研磨に用いられている[4]。スマートフォン、タブレットPC、ノートPC等に代表される電子機器の、さらなる小型化・高性能化へ向けた半導体デバイスの微細化・多層化に伴い、半導体製造に必要なCMP材に要求される特性も多様化している[5]。また、セリアは自動車排ガス浄化用触媒の助触媒としても不可欠である。国際的な排ガス規制の強化により、自動車排ガス浄化用触媒の需要増加が予想されていることから[6]、その主要成分であるパラジウム、白金、ロジウムと共にセリアの安定供給の必要性も高まっている。

以上の状況を鑑みると、将来的なセリウムの供給ひっ迫や価格高騰の可能性は否めず、現時点からその資源リスクの回避、つまり特定の軽希土類元素の産地に限定されず多様なサプライチェーンを活用することが求められる。しかしながら、上記の様に中国以外で生産されるセリウムは純度の面で不十分である。ゆえに国内での高純度化を可能にする技術や低純度のセリウムでも一定の性能を発揮する材料の開発が行えれば、これらの問題を解決することができる。

本研究では、低純度のセリウム化合物からCMP材として使用可能な純度(忌避元素0.01%以下)へ従来装置の1/2以下の規模で成し遂げる溶媒抽出技術の開発(開発項目C1)及び低純度セリウム化合物の使用で十分な性能が得られる自動車排ガス浄化用触媒の助触媒の開発(開発C2)を行う。

参考文献

- [1] レアメタルの最新動向、監修 岡部徹、野瀬勝弘、シーエムシー出版 (2012).
- [2] JOGMEC、鉱物マテリアルフロー2019.
- [3] 企業ヒアリング.
- [4] E. J. Schelter, *Nat. Chem.*, **5**, 348 (2013).
- [5] 野部ら、日立化成テクニカルレポート, **55**, 17 (2013).
- [6] International Energy Agency, *Energy Technology Perspective 2017*.

3-1-2. 研究開発目標達成度(テーマ C)

表 3-1 に示すとおり、両項目とも目標値を達成した。

表 3-1 研究開発成果の目標達成度

研究開発項目	目標	成果	達成度
C1 低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発	セリウム溶媒抽出における選択性向上：忌避元素残存率 0.01%以下 分離プロセスの高効率化：従来型ミキサーセトラー比で装置規模 1/2 (同等能力運転)	ジグリコールアミド酸型抽出剤を導入したエマルションフロー装置を用いた押し出し法による分離プロセスにより、ランタン、セリウム、プラセオジウム、ネオジウム混合溶液から、セリウム純度 99.997%の水溶液を得ることに成功した。また、その際の装置規模は従来型ミキサーセトラーと比較して、約 1/3 であった。	○
C2 低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証	①触媒の構成成分の見直しと適材配置を提案：実用触媒同等性能／プロピレン浄化率 50%の温度 300℃以下 ②低品位原料の触媒部材の利用割合最適化：低品位原料の利用比(重量比) 50%以上	低品位セリア原料の使用を想定したセリア系触媒と少量のセリアを添加したアルミナ系触媒からなる触媒でプロピレン浄化率 50%の温度 300℃以下の触媒性能を得た。また、その触媒の低品位セリア原料の使用率は 50%であった。	○

※◎ 大きく上回って達成、○達成、△一部未達、 X未達

3-2. 研究開発成果(テーマ C)

3-2-1. 研究開発項目②-1「低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発」

(テーマ C1)

レアアースは元素間の性質が極めて類似していることから、その相互分離は、金属精錬において最も困難な技術の一つである。今回、分離対象となる 3 価セリウム(Ce^{3+})も原子番号が隣の 3 価ランタン(La^{3+})及び 3 価プラセオジウム(Pr^{3+})とのイオン半径の差は、いずれも 0.017 \AA であり、アルカリ金属の Na^+ と K^+ のその差が 0.33 \AA であることから、極めて小さな差である[5]。

また、工業的なレアアースの相互分離工程のほとんどが、ミキサーセトラを用いた溶媒抽出法によって行われている。前述の様に、化学的性質の類似した希土類元素の精製分離には多段の分離操作を行わなければならない、分離槽を稼働させるランニングコスト、広大な設置床面積、多量の有機溶媒を必要とすることなどから、国内における実施は極めて困難である。これら諸問題の打開には、分離装置規模のダウンサイズと、 Ce^{3+} に対し高い選択性を持つ抽出剤の導入の二点が重要になる。

そこで本研究項目においては、ミキサーセトラに替わる新規抽出分離装置として、エマルションフロー装置(図 3-1)の導入を検討した。また、実工程液を用いたエマルションフロー装置による分離データを取得し、実操業に向けた課題の抽出を行った。従来型工業用抽出剤ジ-2-エチルヘキシルリン酸(D2EHPA)及び(2-エチルヘキシル)ホスホン酸モノ-2-エチルヘキシル(EHEHPA, 商品名:PC88A 大八化学)に加え、ジ-2-エチルヘキシルジグリコールアミド酸(D2EHDGAA, 商品名:ジェネプライト 2 信越化学工業)についても検討し(図 3-2)、La、Ce、Pr、Nd 混合液から、Ce の高純度化を目指した。さらに、全レアアースに関する抽出特性をトリアミドアミン型抽出剤により調べた。

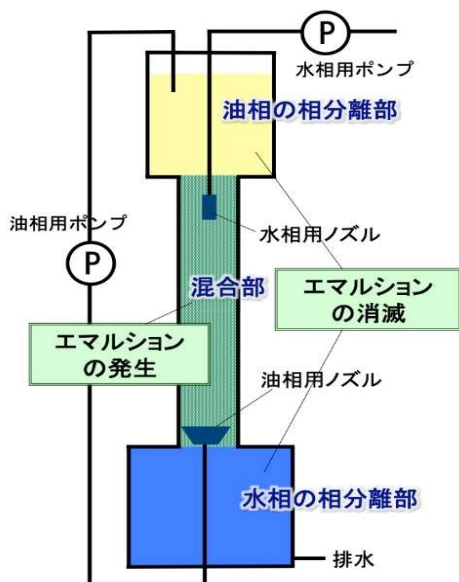


図 3-1 エマルションフロー装置の概要

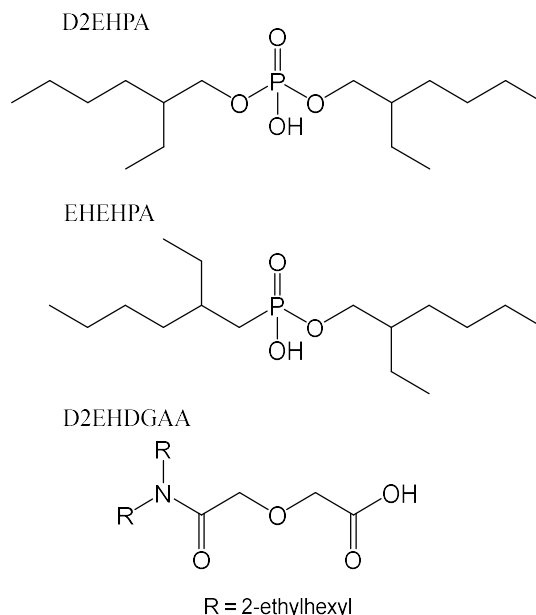


図 3-2 抽出剤の構造

3-2-1-1. バッチ試験による Ce³⁺の抽出選択性の把握(実施先:産総研、ニッキ(株))

(1) D2EHPA、EHEHPA 及び D2EHDGAA 単独系及び協同抽出系による La Ce, Pr, Nd 抽出挙動

抽出剤の希釈剤としてケロシンを用い、希塩酸系水溶液中の La Ce, Pr, Nd(各 10⁻⁴ M)の抽出特性を調べた。D2EHPA、EHEHPA 及び D2EHDGAA の単独系においては、いずれも短時間(10分程度)で抽出平衡に達することが分かった。また既報のようにいずれも陽イオン交換型の反応であることが示された。また、La³⁺、Ce³⁺、Pr³⁺、Nd³⁺の分離挙動の比較では、いずれの抽出系も正抽出の大きさは La³⁺ << Ce³⁺ < Pr³⁺ ≤ Nd³⁺であったが、D2EHPA は元素間の差異が小さかった。

協同抽出系の試験では、0.5 M EHEHPA(希釈剤:クロロホルム)溶液に、表 3-2 記載の抽出剤を 0.25 M になるように溶解したものを、抽出有機相として用いた。N-2-ethylhexyl-bis(N-di-2-ethylhexyl-ethylamide)amine 及び 2-acetamide pyridine を添加した際、抽出後の平衡 pH が高くなったが、元素間の分離係数に変化はほとんどなかった。

表 3-2 協同抽出系における使用抽出剤

O ドナー系	N,N-dioctyl-butylamide, dibutyl carbitol
O, N ドナー系	N-2-ethylhexyl-bis(N-di-2-ethylhexyl-ethylamide)amine, 2-acetamide pyridine, Acorga CLX50
N ドナー系	2,2':6',2''-terpyridine, 4,4'-di-tert-butyl-2,2'-bipyridyl, 4,4'-dinonyl-2,2'-dipyridyl
O, S ドナー系	N,N,N',N'-tetra2-ethylhexyl-thiodiglycolamide

(2) トリアミドアミン型抽出剤による全レアアースの抽出特性

全レアアース(ここでは La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu 及び Y)の抽出挙動を調べるため、トリアミドアミン型抽出剤トリス(N,N-ジ-2-エチルヘキシル-エチルアミド)アミン(DEHTAA, ケミクレア製純度 96.4%) (図 3-3)をケロシンに希釈した有機溶媒を用いて抽出実験を行った。DEHTAA は、アミド基及びアミノ基を有していることから、比較的高濃度の酸溶液からの抽出が可能で、原料の浸出液から中和操作なしでの抽出が期待できることから検討を行った。

水溶液にはレアアースを各 10⁻⁴ M 含有した塩酸又は硝酸溶液を用いた。塩酸系においては、0.5 M DEHTAA において、塩酸濃度を広範囲に変化させても、いずれのレアアースもほとんど抽出されなかった。一方、硝酸では、特に軽レアアースにおいて顕著な抽出特性を示した。

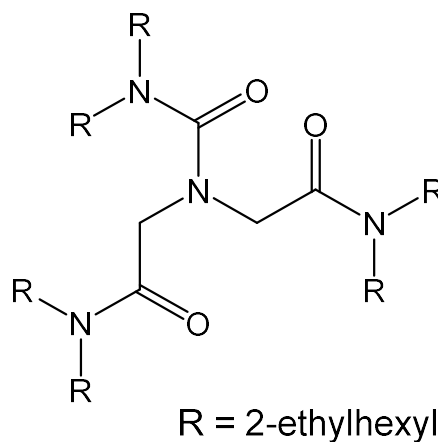


図 3-3 DEHTAA の構造

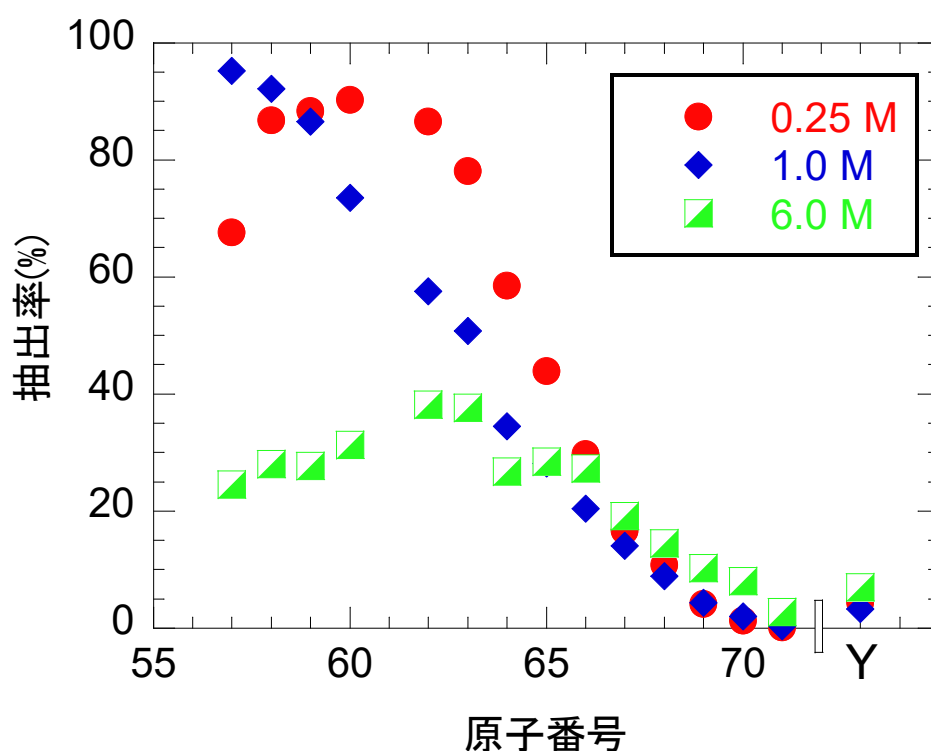


図 3-4 DEHTAA-硝酸系におけるレアアース抽出率と原子番号との関係

図 3-4 に、0.50 M DEHTAA による硝酸濃度 0.25 M、1.0 M 及び 6.0 M におけるレアアースの抽出率と原子番号との関係 (ランタノイドパターンと呼ぶ) を示す。重レアアースに関してはいずれの硝酸濃度においても原子番号の増加とともに抽出率も減少しているが、軽レアアースについては硝酸濃度により大きく変化した。硝酸濃度 0.25 M では Nd^{3+} 付近まで抽出率が増加し、その後急激に減少した。一方、硝酸濃度 1.0 M においては、抽出率は、 La^{3+} が最も抽出率が高く、原子番号の増加に伴い減少した。硝酸濃度が 6.0 M になると、抽出率は、緩やかではあるが Sm^{3+} 付近まで増加し、その後減少した。

DEHTAA はハードドナーである酸素原子を有する抽出剤であるので、3価レアアースでは、より原子番号が大きいイオンと高い親和性を示す。一方で水相中でのレアアースイオンと水分子との親和性も同じ傾向を示す。金属イオンの有機相への移動には、完全又は一部の脱水和反応が必要となるため、両者のバランスによってランタノイドパターンは決まる。さらにサイズ認識効果などにより抽出剤と特定のイオンサイズのレアアースが高い親和性を有する場合は、それも影響する。DEHTAA 系においては、重レアアースにおける原子番号の増加に伴う抽出率減少は、脱水和反応の影響を大きく受けていることが予想される。硝酸濃度 0.25 M において見られる Nd^{3+} 付近のピークは、DEHTAA の配位部位のサイズと Nd^{3+} のサイズの適合が予測される。また、硝酸濃度 6.0 M での緩やかな抽出率の増加は、硝酸濃度の増加による水の活量の低下により、脱水和反応の影響が低減したとも推測できる。ここでの3種類の硝酸濃度においては、抽出メカニズムが異なると考えられることから、0.5 M DEHTAA による硝酸抽出特性を調べたところ、硝酸濃度 0.25 M 及び 1.0 M では DEHTAA \cdot HNO₃ 錯体を、6.0 M では DEHTAA \cdot (HNO₃)₂ 錯体を形成することが示された。また、硝酸濃度 0.25 M ではフリーの DEHTAA 分子も多く存在していることから、

DEHTAA のサイズ認識効果が生じやすい環境にいたと考えられる。硝酸濃度 6.0 M での低抽出率からは、DEHTAA·(HNO₃)₂ 錯体の低い抽出能力が伺える。

硝酸濃度 1.0 M における抽出メカニズムを調べるために、抽出分配比の抽出剤濃度、H⁺、NO₃⁻濃度依存性等を調べたところ、プロトン化した DEHTAA とフリーの DEHTAA がそれぞれ 1 分子ずつ関与した M(NO₃)₃DEHTAA(DEHTAA·HNO₃) (M: レアアース) 錯体で抽出されていることが示唆された。

溶媒抽出後の水相中への DEHTAA の流出に関して、油分濃度計(HORIBA)により測定したところ、その値は従来型工業用抽出剤とほぼ同程度であり、実用的な点でも優れていることが示された。

(3) 実工程液の一次精製方法の検討

後述の抽出試験における模擬液調整のために、低品位原料(塩化混合レアアース溶液 A、金属濃度 332 g/L)を使用した(表 3-2)。

表 3-2 低品位原料(塩化混合レアアース溶液)の組成

	TREO 中レアアース酸化物の割合(%)
La ₂ O ₃ /TREO	23.5
CeO ₂ /TREO	53.5
Pr ₆ O ₁₁ /TREO	3.0
Nd ₂ O ₃ /TREO	14.5
Sm ₂ O ₃ /TREO	1.6
Gd ₂ O ₃ /TREO	1.3
Y ₂ O ₃ /TREO	1.7

TREO : total rare earth oxides

溶液 A に析出物がみられたため、イオン交換水で希釈後、塩酸を加え、ろ過を行った(東洋濾紙、ADVANTEC 定量濾紙 No.5C)。その後、イオン交換水で約 50 g/L に希釈した。この液を攪拌しながら、過酸化水素水と 1 M NaOH 水溶液を交互に加えた。液は濃赤の析出物で懸濁した。しばらく攪拌した後、一晚静置し沈降させた。そしてデカンテーションにより上澄みを除去し、ろ過を行った(東洋濾紙、ADVANTEC 定量濾紙 No.5A)。水洗工程として、濾物に脱塩水を加え、1 時間攪拌後、再度ろ過を行った。

この実験では、NaOH 添加量が異なる 2 種類のサンプルを作製した。溶液 A 中の Ce 全てが Ce(OH)₄として沈殿すると仮定し、必要量の①1.14 倍、②0.54 倍の 1 M NaOH を加えた。また、得られた生成物は、塩酸中での溶解性を確認した。生成物を塩酸中で加熱攪拌しながら、過酸化水素水を添加した後、目視により液の状態を確認した。

沈殿分離操作後の、溶液の組成の変化を表 3-3 に示す。Ce 純度は、95.6%に上昇した。また、生成物の塩酸中での溶解性を確認したところ、Ce 金属濃度 81 g/L の条件で無色透明の溶液が得られた。実工程では、この再溶解させた塩酸溶液を抽出工程に使用することを想定している。

表 3-3 沈殿濃縮操作後のレアアース組成

	沈殿物中 TREO 中レアアース酸化物の割合 (%)
La ₂ O ₃ /TREO	1.6
CeO ₂ /TREO	95.6
Pr ₆ O ₁₁ /TREO	0.4
Nd ₂ O ₃ /TREO	1.7
Sm ₂ O ₃ /TREO	0.4
Gd ₂ O ₃ /TREO	0.1
Y ₂ O ₃ /TREO	1.6

TREO : total rare earth oxides

以上より、後述の実験では表 3-4 の組成比を有する水溶液を模擬液として扱う。

表 3-4 模擬液のレアアース組成比

	組成比(%)
La	2.0
Ce	95.0
Pr	0.5
Nd	2.5

(4) 模擬液を用いたバッチ法による Ce³⁺高選択抽出分離条件の検討

有機相に用いる抽出剤は、前述の実験において軽レアアースの分離が期待できた、D2EHDGAA と EHEHPA を検討した。水相は、表 3-4 の組成比を有し、金属濃度や pH を調整した水溶液を用いた。

まず、工業的な応用に即した模擬液濃度として Ce 金属濃度 50 g/L、有機相 0.5 M での抽出を行ったが、Ce の抽出率が 10%程度にとどまった。そのため、抽出前の水相 pH と抽出剤濃度を上げることで抽出率の向上を目指した。しかしながら金属濃度が高いため、pH2.5 以上では沈殿物が生じやすくなった。pH3 以上に調整するにはアルカリ添加時に細かな操作が必要であり、またそのような操作を行っても抽出率を十分上げるのに効果的ではなかった。抽出剤濃度についても、抽出剤の粘性の点から、希釈剤と抽出剤を均一に混合させるには 1.5 M 程度が上限だと考えられる。そこで、抽出前 pH については、比較的調整が容易な pH2.35 とし、抽出剤濃度 1.5 M において検討を行った。振とう時間を 10, 30, 60 分と変化させた際の抽出率の変化を調べたところ、抽出率の差は見られなかったため、その後の実験では、振とう時間を 15 分に固定した。また、Ce/Pr の分離係数(β)は、EHEHPA でおよそ 2、D2EHDGAA でおよそ 3 となった。模擬液の Ce 金属濃度を 0.5~50 g/L の範囲で変化させた際の抽出率を図 1-5 に示す。0.5~5 g/L では全金属イオンの抽出率が高く、分離に適さないと考えられる。10 g/L のとき、La の抽出率が比較的 low、Ce/Pr/Nd の抽出率が高い。また、20~50 g/L のときは、全金属イオンの抽出率が低かった。この結果から、金属濃度を 10 g/L に設定することで、La を水相に残しながら Ce/Pr/Nd が有機相に抽出されるため、La/Ce 間の分離が期待できる。

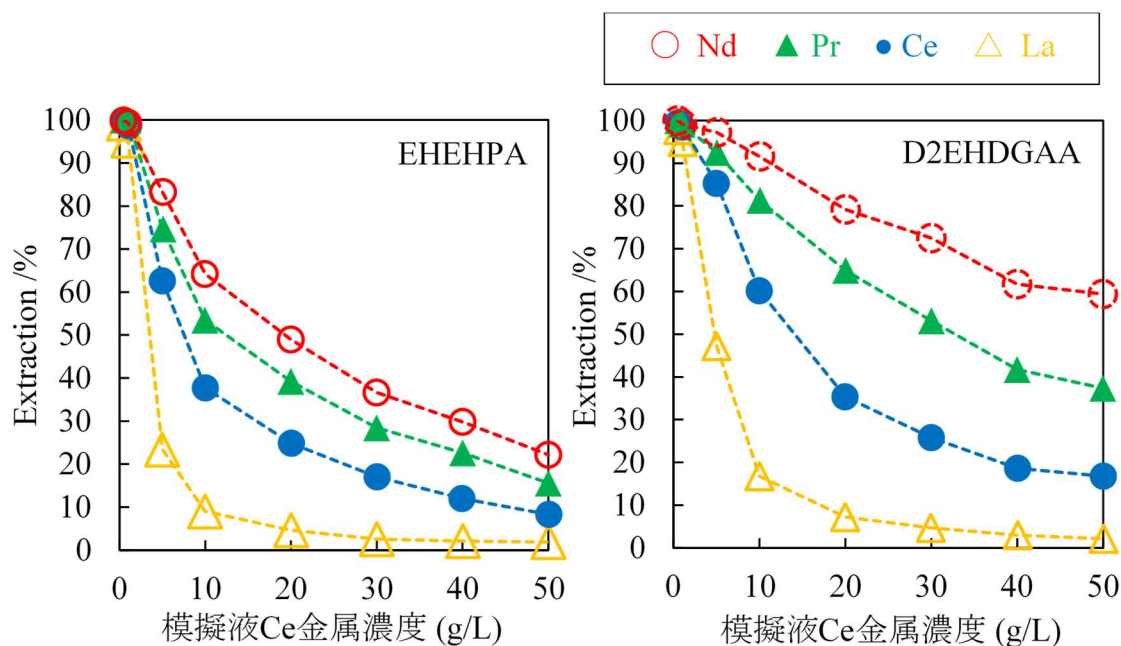


図 3-5 抽出率の Ce 金属濃度依存性

続いて逆抽出時の塩酸濃度依存性について調べた。まず、正抽出時の条件は、模擬液 Ce 金属濃度 10 g/L、抽出前の水相 pH2.35、抽出剤濃度 1.5 M とした。逆抽出時の水相の塩酸濃度を 0.2~0.9 M の範囲で変化させた。逆抽出後の水相中の金属純度の変化を図 3-6 に示す。特に D2EHDGAA においては、逆抽出時にも元素間で抽出率に差がみられ、逆抽出によって元素間の分離が期待できることが明らかになった。Ce/Pr の分離には低濃度塩酸が適していた (D2EHDGAA: <0.6 M、EHEHPA: <0.4 M)。

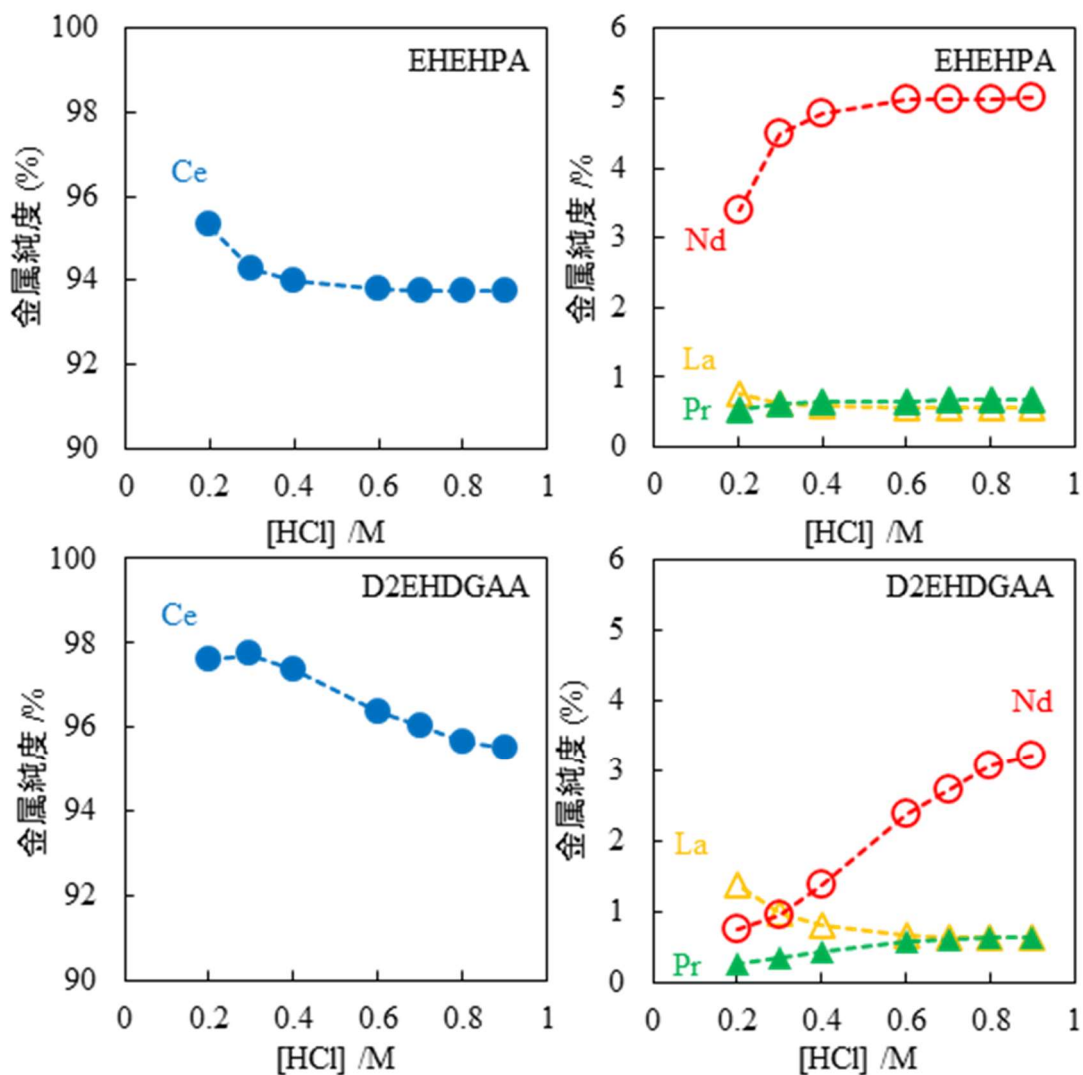


図 3-6 逆抽出後水溶液中の金属純度

(5) バッチシミュレーション

EHEHPA 及び D2EHDGAA に関しては、バッチシミュレーションを行い、連続抽出における金属の濃縮について調べた。正抽出における操作手順を図 3-7 に示す。今回、Aq fresh は Ce 金属濃度 10 g/L の模擬液、Org fresh は 1.5 M 抽出剤である。各段の出口となる、A6, 9, 12, 15 の金属濃度を比較し、濃度に変化がなくなるまで抽出操作を続けた。EHEHPA 及び D2EHDGAA 系での水相金属濃度と金属純度の結果を表 3-5 及び 3-6 にそれぞれ示す。金属純度は、Aq fresh は水相中(フィード液)の値であり、その他は有機相中の値である。

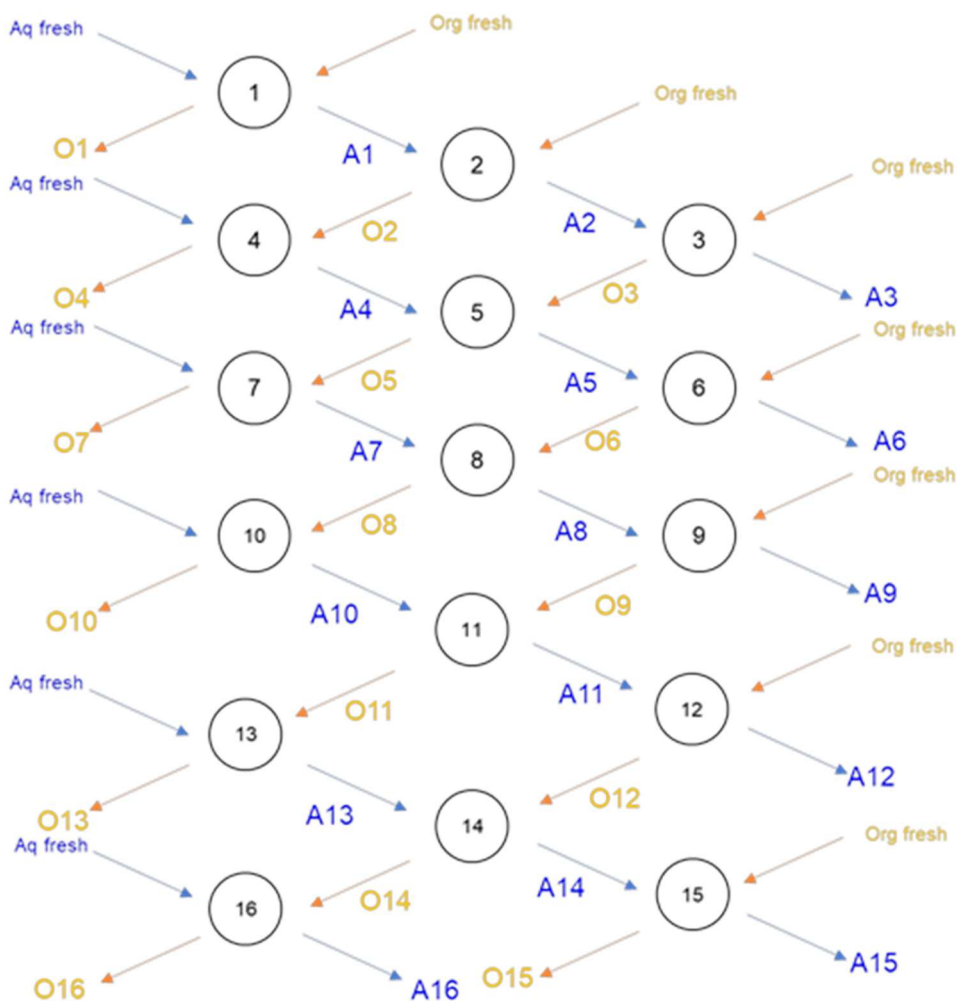


図 3-7 バッチシミュレーション操作図(正抽出)

EHEHPA については、A9、D2EHDGAA については A15 で定常状態に至ったと判断した。また、Ce 金属純度に関しては、EHEHPA では 94.99%→95.04%と 0.05%上昇したのに対して、D2EHDGAA では 95.08%→96.17%と 1.09%上昇した。

表 3-5 バッチシミュレーション結果(EHEHPA・正抽出)

試料名	pHeq	水相 金属濃度 /ppm				金属純度 /%			
		La	Ce	Pr	Nd	La	Ce	Pr	Nd
Aq fresh						2.03	94.99	0.49	2.49
O1, A1	1.107	184.8	5751	23.41	83.62	0.56	94.74	0.63	4.07
O2, A2	1.000	171.9	4165	14.51	40.82	0.79	96.08	0.54	2.59
O3, A3	0.885	163.0	3269	9.813	23.46	0.96	96.66	0.51	1.87
O4, A4	1.112	192.7	6189	25.28	86.35	0.53	94.94	0.62	3.91
O5, A5	1.003	181.5	4723	14.29	44.42	0.82	96.13	0.64	2.41
O6, A6	0.925	172.2	3679	10.36	24.58	0.86	96.93	0.37	1.84
O7, A7	1.209	193.5	6340	24.91	86.26	0.58	94.99	0.67	3.76
O8, A8	1.036	187.4	4951	15.41	43.87	0.61	96.39	0.53	2.47
O9, A9	0.929	175.3	3751	10.79	23.15	0.98	96.97	0.37	1.67
O10, A10	1.233	196.4	6512	24.99	87.91	0.46	95.04	0.65	3.85

表 3-6 バッチシミュレーション結果(D2EHDGAA・正抽出)

試料名	pHeq	水相 金属濃度 /ppm				金属純度 /%			
		La	Ce	Pr	Nd	La	Ce	Pr	Nd
Aq fresh						1.96	95.08	0.48	2.48
O1, A1	1.049	163.2	3778	8.09	21.08	0.55	95.03	0.67	3.75
O2, A2	0.962	134.9	1443	2.19	1.59	1.19	97.75	0.25	0.82
O3, A3	0.951	102.7	517	1.13	0.18	3.34	96.40	0.11	0.15
O4, A4	1.086	185.0	4469	8.03	18.21	0.52	95.66	0.60	3.23
O5, A5	0.949	178.0	2156	2.02	1.42	1.19	98.05	0.21	0.55
O6, A6	0.921	149.9	850	0.86	0.06	2.10	97.71	0.09	0.10
O7, A7	1.092	195.1	4775	7.65	17.05	0.49	95.94	0.58	3.00
O8, A8	0.952	190.8	2448	1.63	1.13	0.88	98.46	0.19	0.47
O9, A9	0.917	152.7	958	1.14	0.00	2.49	97.40	0.03	0.07
O10, A10	1.117	194.2	5030	8.91	21.33	0.41	96.15	0.55	2.89
O11, A11	0.96	186.4	2598	1.91	1.66	1.15	98.14	0.19	0.52
O12, A12	0.91	155.1	1013	0.87	0.00	1.93	97.90	0.06	0.10
O13, A13	1.121	191.2	5471	11.36	35.31	0.62	96.03	0.54	2.82
O14, A14	0.76	186.9	2526	1.22	1.19	0.77	98.21	0.24	0.78
O15, A15	0.684	154.5	1011	0.23	0.04	2.09	97.78	0.06	0.07
O16, A16	0.886	190.8	5095	8.38	19.90	0.44	96.17	0.55	2.84

(6) 二段階抽出試験

続いて、正抽出を異なる pH 条件で 2 回行い、その後逆抽出を行った。ここでは、「Ce/Pr 間を分離する正抽出(La, Ce の抽出率が低い条件)」、「La/Ce 間を分離する正抽出(La の抽出率が低い条件)」、「逆抽出による Ce の回収」の順に行うことで Ce の高純度化を試みた。模擬液の Ce 金属濃度 10 g/L、抽出剤濃度 1.5 M に設定し、pH 及び逆抽出時の塩酸濃度については、バッチの 1 回抽出試験の結果から次の値に設定した。

- ・1 回目抽出前 pH0.7
- ・2 回目抽出前 pH0.8
- ・逆抽出塩酸濃度 0.2 M(EHEHPA 系)、0.3 M(D2EHDGAA 系)

1 回目の正抽出においては、Nd、Pr を有機相に抽出し除去することを目的とした。高 pH になると、95%以上を占める Ce の抽出量が増え(回収率が下がり)、また、次段階の La/Ce 分離が困難になるため、pH は低く設定した。Pr、Nd の除去率も下がるため、バッチで全量に近い量を除去することはできないと予想されたが、逆抽出で更に Pr、Nd の除去が見込まれたため、このような条件を採用した。

2 回目の正抽出では、Ce を有機相に抽出することを目的としているが、同時に La の抽出を抑える必要があるため、pH は 1 回目より少し高い程度にすることとした。

そして逆抽出では、Ceの回収と同時に、2回目の正抽出終了時に有機相に残っているPr、Ndの除去も行う必要があり、塩酸濃度を低くすることで、Nd、Prを有機相に残しながらCeを抽出することが期待できたため、塩酸濃度0.2~0.3 Mに設定した。

各抽出段における目的相の金属純度を図3-8に示す。すなわち、1回目の抽出後は水相に残るCe、2回目抽出後は有機相に抽出されたCe、逆抽出では水相(塩酸)に得られるCeが目的物である。正抽出2回目のpHを下げることで、Ceの回収率は下がるが、La抽出が抑制された。また、逆抽出時の塩酸濃度を下げることで、Pr、Ndの水相への移動が抑制された。EHEHPAではCe純度が95.07%から94.58%に変化し、変化はほとんど見られなかった。D2EHDGAAでは、95.07%から98.36%へと向上した。

以上、バッチ試験の結果からは、Ce³⁺の高純度化にはD2EHDGAAが適していることが示された。

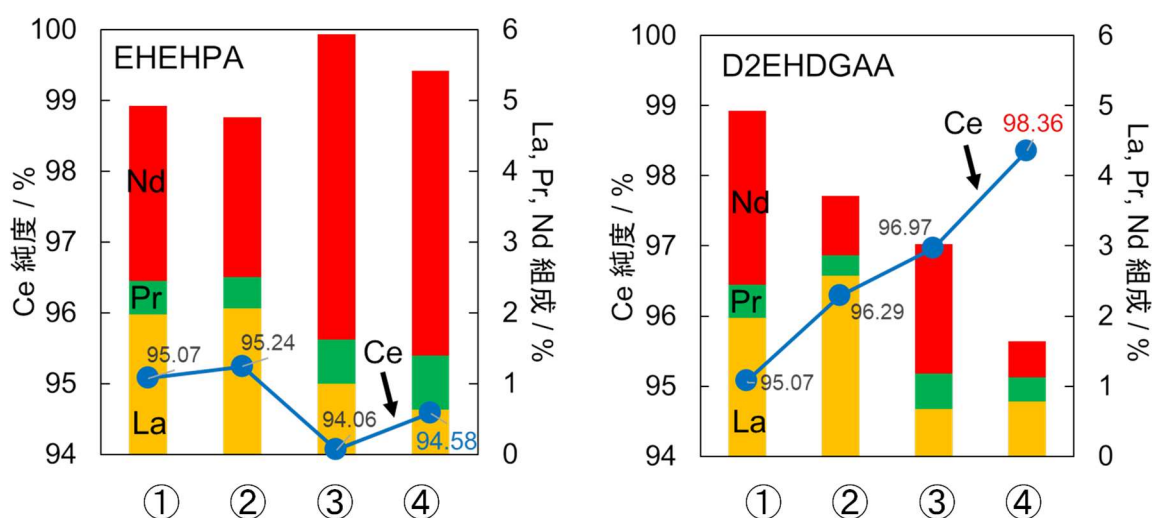


図 3-8 2 段抽出の各段階における金属組成変化

- ①抽出前水相
- ② 1 回目正抽出後水相
- ③ 2 回目正抽出後水相
- ④逆抽出後水相

3-2-1-2. エマルションフロー装置による Ce³⁺の高純度化(実施先:原子力機構)

(1) ラボ試験用 EF 装置の設計・導入

レアアース分離精製のためのラボ試験用エマルションフロー (EF) 装置を設計した。具体的には、高濃度のレアアースを含む実液を扱うために必要な pH メーターの設置とその容器構造、固形成分の析出の可能性を考慮した新型ノズル(細管束ノズル)などを設計した。また、高濃度のレアアースを含む実液では、塩基性物質を添加して行う pH 調整時において局所的に大量の固形成分が発生することで、従来の EF (液滴噴出式 EF) が利用できない場合がある。すなわち、界面からの液滴の積層に基づく相混合を原理とする液滴噴出式 EF では、局所的な固形成分の大量発生が液滴の積層を阻害することで、水相と油相を乳濁混合状態にできない場合がある。そこで、液滴積層を相混合の原理としない機械攪拌式 EF の装置を設計・製作した。

(2) 有機リン系抽出剤による La/Ce/Pr/Nd の EF 抽出試験

レアアースに対する一般的な抽出剤として知られる有機リン系抽出剤 PC-88A (EHEHPA と同様の成分) を用いて、Ce を La 及び Pr・Nd から分離するための EF 抽出試験を行なった。水相として 100 ppb の La³⁺、Ce³⁺、Pr³⁺、Nd³⁺ を含む pH2 の HCl 水溶液を用い、油相として 250 mM の PC-88A を含む D70 (アルカン系溶媒) を用いたが、上述の反応促進剤として、10 vol% の 2-エチルヘキサノール (2-EHOH) を添加した場合と添加しない場合とで比較した。まずは、以下に示すバッチ試験により、基礎データを取得した。縦振り振とう器を用いて体積比 1:1 の両相を振とうし、振とう時間に対する各レアアースの抽出率の関係を調べた。その結果、全てのレアアースに対して、2-EHOH 添加による反応速度の向上が確認できた。その効果は、軽よりも重レアアースの方が顕著であり、2-EHOH 添加により、抽出率はやや減少した。

上記の結果を踏まえ、2-EHOH を添加した系に対して、EF 抽出試験を行なった。装置としては液滴噴出式 EF を用い、正抽出と逆抽出が同時進行するシステムにて試験を行なった (図 3-9)。

水相と油相の条件は、前述した通りである。正抽出塔及び逆抽出塔には、それぞれ水相と油相を 1:1 の体積比で設置した。また、水相の送液速度は一定にして、油相の送液速度を変化させた。その結果、油相の送液速度を上げるほど、各レアアースの抽出率が上がることがわかった。また、水相の送液速度に対して油相の送液速度を 1.5 倍に増加させると、各レアアースの抽出率は、上記のバッチ試験での値よりも大きくなった (図 3-10)。すなわち、2-EHOH の添加によって反応が加速された系においては、EF で得られる抽出率は、バッチ試験での抽出率を超えることがわかった。このことは、抽出反応が加速されたことで、化学平衡に至るまでに必要な両相の接触時間を短くできたことに起因すると考えられる。

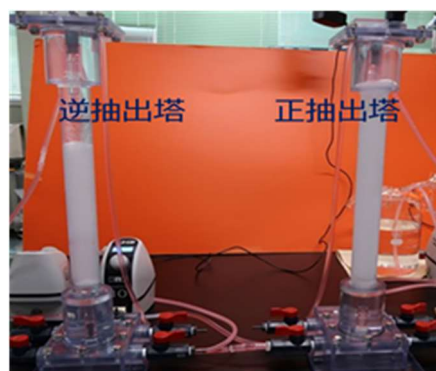


図 3-9 正抽出と逆抽出が同時進行するシステム

(3) D2EHDGAA による La/Ce/Pr/Nd の EF 抽出試験

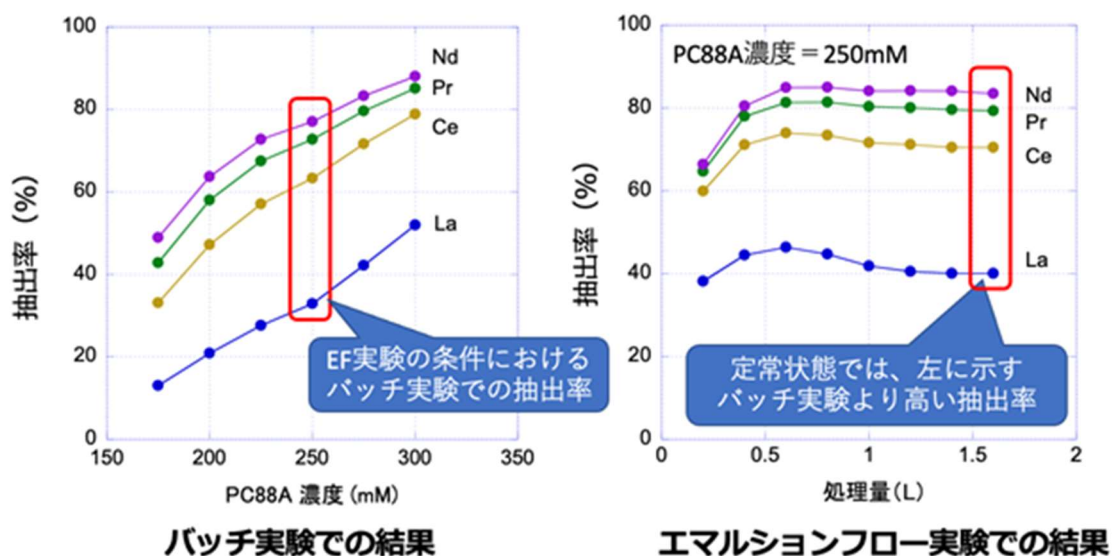


図 3-10 バッチ実験と EF 実験での各レアアースの抽出率の比較

D2EHDGAA によるレアアース抽出系で用いた EF に基づく装置システムの1例を以下に示す。図 3-11 は、Ce/La 分離で用いた機械攪拌式 EF 装置システムである。この図に示す多段システムは、日本原子力研究開発機構 (JAEA) において独自に開発した多段 EF (特願 2021-69670) から新たに派生した構造であり、JAEA 発ベンチャーの株式会社エマルションフローテクノロジーズにおいて、顧客企業に対する技術実証 (PoC) の中で同社が独自に発明したもので (特願 2022-49852)、本事業の課題にも適用した。



図 3-11 Ce/La 分離での機械攪拌式 EF 装置システム

高濃度のレアアースを扱う場合に避けられない塩基性物質の添加によって、局所的な固体析出物が発生し、液滴の噴出によって起こる界面からの液滴の積層が阻害される現象が確認されたことから、そのリスクを回避するために、液滴噴出式に代えて機械攪拌式を採用した。なお、機械攪拌式 EF も液滴噴出式 EF と同様に水相と油相を相混合しながら相分離を同時進行させる仕組みであり、溶媒抽出を代表する装置であるミキサーセトラ (MS) と比較して、相分離の能力が圧倒的に優れている。ゆえに、相混合領域 (ミキサー部に相当) に対する相分離領域 (セトラ部に相当) の体積比を大幅に小さくすることができる。以下、その詳細を述べる。

MS では、ミキサー部よりもセトラ部の方がずっと体積が大きく、通常、セトラ部はミキサー部の 3 倍から 4 倍である。一方、図 3-11 が示すように、機械攪拌式 EF では、MS とは逆に、ミキサー部に相当する相混合領域の方がセトラ部に相当する相分離領域よりもずっと体積が大きい。すなわち、相分離領域は相混合領域の 1/2 以下の体積である。また、求められる処理能力に対して必要とする相混合領域 (MS でのミキサー部) の体積は、MS と機械攪拌式 EF で同程度であることがわかっている。ここで、ミキサー部または相混合領域の体積を MS と機械攪拌式 EF で

共通して1とすると、MS では装置体積は 4 から 5、機械攪拌式 EF では 1.5 以下となる。よって、機械攪拌式 EF は、MS に対して、おおよそ 1/3 以下の装置体積である。加えて、MS が横長の装置形状であるのに対して、機械攪拌式 EF は縦長である。ゆえに、設置床面積は、1/5 以下にできることがわかった。ここにおいて、本事業の目標の1つである、「ミキサーセトラを用いて同様の Ce 純度を得るために必要な装置規模の 1/2 以下にすること」は、十分に達成された。

以下、機械攪拌式 EF の多段システムによって、D2EHDGAA による Ce /Pr・Nd 分離及び Ce/La 分離を行なった結果について具体的に述べる。模擬液における濃度比である Ce 純度 95%から出発し (La: 2%, Pr: 0.5%, Nd: 2.5%)、Ce /Pr・Nd 分離を行った後、その処理後の水相に対し Ce/La 分離を行なった。

Ce /Pr・Nd 分離では、「押し出し効果 (crowding out effect)」を利用した。以下、押し出し効果について説明する。油相にあらかじめ高濃度の Ce を負荷しておくことで、水相中の少量成分である Pr、Nd が油相中の Ce と置き換わる。それによって、水相中の Ce の純度を効率的に向上させることができる。水相中の不純物 (Pr 及び Nd) が、油相に負荷された目的成分 (Ce) によって押し出されることから、押し出し効果と呼ばれる。押し出し効果は、粗分離の状態から高精度な精製を行う方法として知られている。なお、油相に負荷する目的成分 (Ce) の濃度は、抽出剤 (D2EHDGAA) の濃度に対して飽和に近い条件を設定している。具体的には、0.01 M の D2EHDGAA に対して 0.0029 M (400 ppm) の Ce が負荷された。ちなみに、油相中には、徐々に不純物が蓄積されるので、頃合いを見て油相を交換する必要がある (交換の頻度は多くはない)。その交換時においては、油相中の全元素を逆抽出によって回収して、フィード (処理対象液) に回すため、目的成分のロスは事実上生じない。

また、押し出し法は、目的成分と不純物成分のイオン交換によって成立するため、抽出反応に水素イオンが関与しないようにすることができる。すなわち、水素イオン濃度に対して負荷する目的成分の濃度を大過剰で設定すれば (pH をできる限り高く設定すれば)、反応に伴う pH 調整は不要になる。そこで、Ce /Pr・Nd 分離では、水相を pH3 に設定した。なお、pH3 という条件は、効率的なイオン交換に十分な抽出率が得られる pH でもある。また、押し出し法では、機械攪拌式 EF の特殊な装置システムを用いた。

図 3-12 に今回試験したエマルジョンフロー装置を用いた抽出フローを示す。初めに押し出し法により Pr と Nd を抽出分離し、La、Ce が濃縮された水相から Ce を中心に抽出し、希塩酸溶液による洗浄工程及び高濃度塩酸溶液による逆抽出工程により、高純度の Ce 溶液を得るというものである。

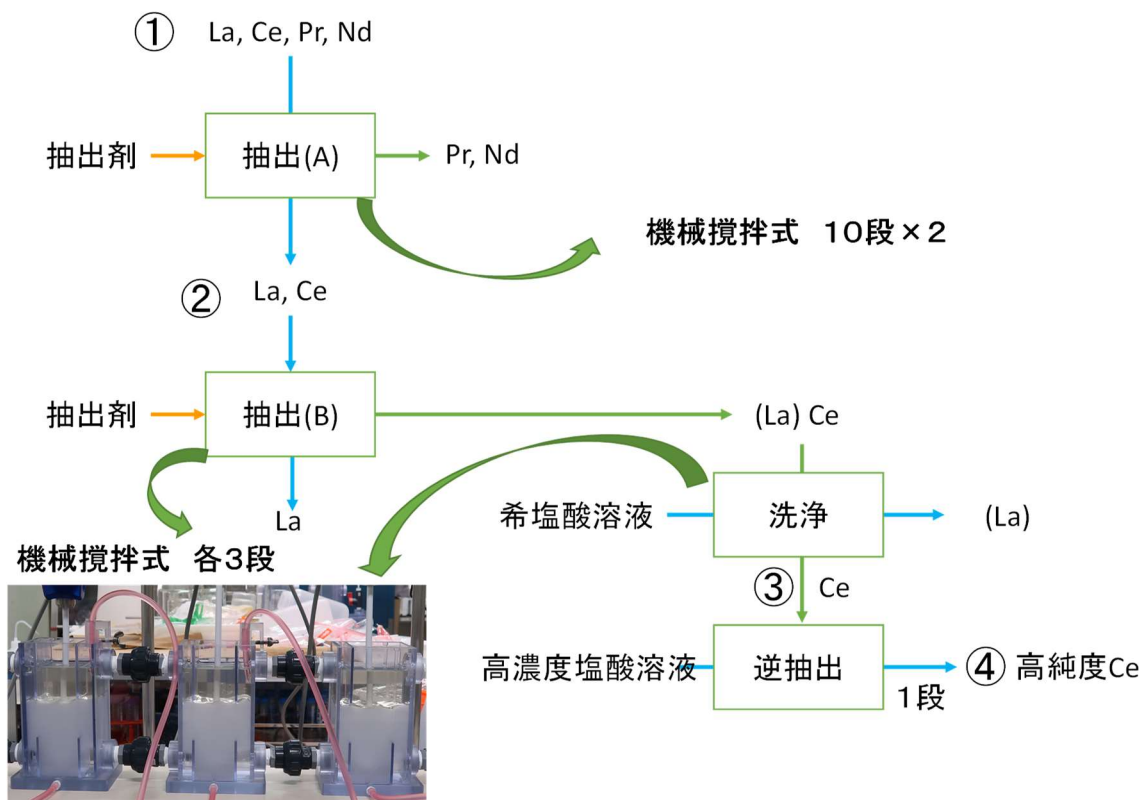


図 3-12 エマルションフロー装置を用いた抽出フロー

押し出し効果を利用した抽出工程 A では、10 段の機械攪拌式 EF 装置を2巡させることで Ce /Pr・Nd 分離を行った。その結果、高純度化の目的成分である Ce の水相での濃度を維持したまま、Pr 存在比率 ($100 \times [\text{Pr}] / ([\text{Ce}] + [\text{Pr}] + [\text{Nd}])$) を 0.0017% に、Nd 存在比率 ($100 \times [\text{Nd}] / ([\text{Ce}] + [\text{Pr}] + [\text{Nd}])$) を 0.0012% まで減少させられることがわかった。これらの値はほぼ検出限界に近いものであり、抽出工程 A で Pr, Nd は除去可能なことが示された。

次に、Pr 及び Nd を除去した水溶液から、Ce /La 分離を行った(抽出 B)。ここでも機械攪拌式 EF を用いたが、Ce/La 間の分離係数はさほど小さくはないため、正抽出と洗浄を組み合わせた通常の方法を選択した。正抽出、洗浄ともに、機械攪拌式エマルションフロー3 段での装置システムを用いた。また、Ce /Pr・Nd 分離では、水相の pH を 1 に設定し、0.25 M の D2EHDGAA を含む油相を用いた。正抽出 3 段×1 で処理した後、同じ装置システムを使って洗浄 3 段×6 で処理した結果、La 存在比率 ($100 \times [\text{La}] / ([\text{Ce}] + [\text{La}])$) を 0.005% まで減少させられた。抽出工程 A でも La 濃度の減少可能なことから、この時点で Ce の純度は 99.99% を優に超えている。また Ce の回収率は約 20% であった。

洗浄後に逆抽出を行うことで、表 3-7 の濃度比の水溶液を得ることが可能であった。このように最終的な Ce の純度は 99.99% を超え、本事業で目標とした 99.99% 以上の純度での回収を達成した。

表 3-7 逆抽出後水相中のレアアース濃度比

	濃度比 (%)
ランタン	<0.005
セリウム	>99.99
プラセオジウム	<0.001
ネオジウム	<0.001

(4) ラボ試験用 EF 装置の改良・最適化

高濃度のレアアースを扱うための改良として、pH メーターを設置した EF 装置を設計・製作した。また、上述の塩基性物質の添加による pH 調整においては、局所的にレアアースの水酸化物や硫酸ナトリウム(芒硝)が大量に発生することで、液相噴出ノズルの目詰まり・狭窄が懸念される。そこで、従来のガラス焼結板(多孔質板)を用いたノズルを改良した細管束ノズルを設計・製作した。さらに、塩基性物質の添加による影響として、局所的な固体析出物の発生により、液滴の噴出によって起こる界面からの液滴の積層が阻害される現象が確認されたことから、液滴噴出式に代わる EF 技術として、機械攪拌式を検討した。これらの技術及び知見は、ニッキ(株)における試験に提供した。

3-2-1-3. 実工程液による分離試験及びプロセス評価

より実作業に近い条件でのエマルションの発生具合、相分離性を確認するために、スケールアップした EF 装置(図 3-13)を導入して油水分離試験を行った。

装置の素材は PVC を使用した。エマルション発生部(図 3-14)は多孔質ガラスで出来ており、そこから液を噴出することによりエマルションを発生させた。

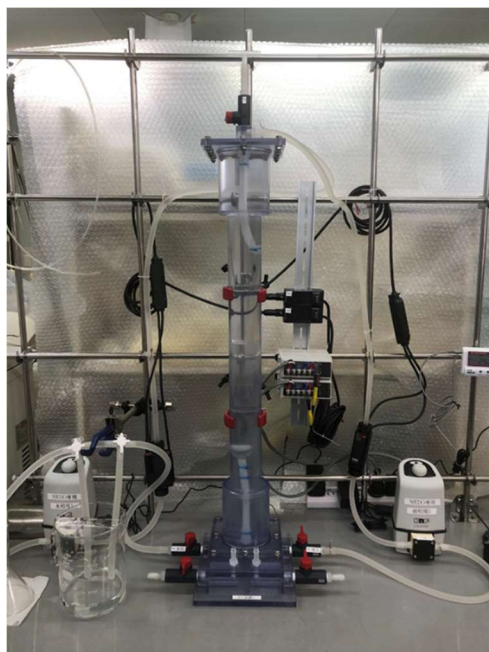


図 3-13 EF 装置外観

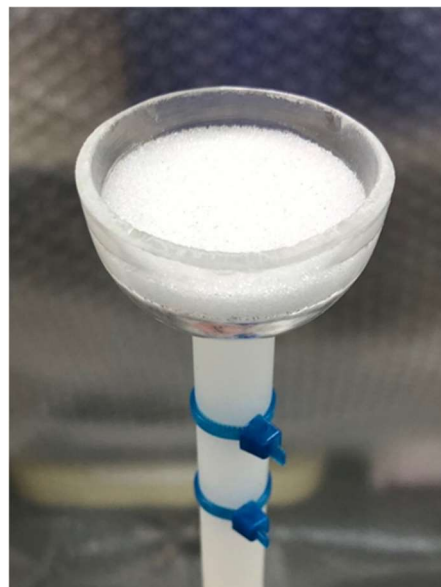


図 3-14 エマルション発生部

適切なエマルションの発生には、噴出口の孔径と噴出速度が大きな影響を与える。そこで、これら2点について、バッチ試験と同濃度の抽出剤および希塩酸を用いて、エマルション発生条件の確認を行った。

・噴出口の孔径

水相噴出口は下向きに噴出されることから、エマルションは中央部分に集中しやすく、帯状に連なって噴出されやすい。最終的に、チューブに 2 mm のポンチで開けた穴から噴出させるのが最も均一に噴出された(図 3-15)。

油相噴出口は上向きに噴出されるため、噴出面に均等に圧力がかかり、安定した液滴を生成する。理想的な液滴の形状は、粒径が均一かつ小さいものである。液滴を小さくするには噴出口の孔径を小さくすればよいが、孔径 10 μm 以下では噴出に相応の圧力が必要になり、配管内の圧力が高まることによる液漏れの可能性が生じる。対処方法として、抽出剤濃度を下げ、粘度を低くすることで噴出に必要な圧力を下げる方法が考えられるが、これは抽出効率低下につながる可能性がある。一方で、孔径 40 μm 以上では噴出された抽出剤が球形にならない、球形にはなるものの粒子が大きすぎるといった様子が確認された。大きすぎる粒径は相分離の進行に悪影響を与え(図 3-15)、また、比表面積の低下による水相と油相の接触時間低下等の問題が生じた。

以上の結果から、水相噴出口は 2 mm (2000 μm)、油相噴出口は 10~35 μm の範囲内において、粒径が均一であり、迅速な相分離が安定して行われる良質なエマルションが発生することが分かった(表 3-8)。

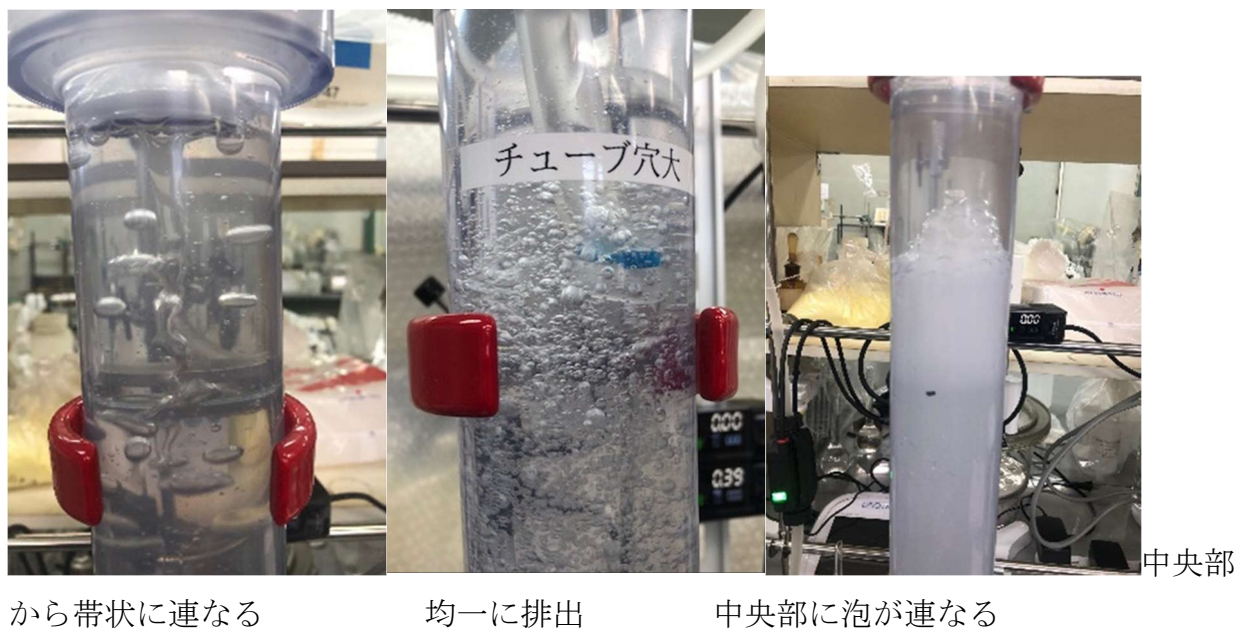


図 3-15 水相噴出孔付近の状態

表 3-8 孔径とエマルションの状態

孔径 (μm)	水相噴出 (上部)	油相噴出 (下部)
2000	エマルション大	---
1200	多分散 (不均一)	---
800	多分散 (不均一)	---
100~160	带状に連なる	带状に連なる
40~100	带状に連なる	多分散 (不均一)
20~35	目詰まり・使用不可	エマルション大
10~20	---	エマルション小
5~10	---	目詰まり・使用不可

・噴出速度

次に適切な噴出速度について調べた。噴出速度が速ければ速いほど、時間当たりの処理量が増えるが、速度に応じて相分離の位置が変化する。互いの相が混入しないよう、液の吸い込み口と相分離の位置は十分な距離を開ける必要がある。そこで噴出速度と相分離の位置について、油相(図 3-16)、水相(図 3-17)のそれぞれで検討を行った。

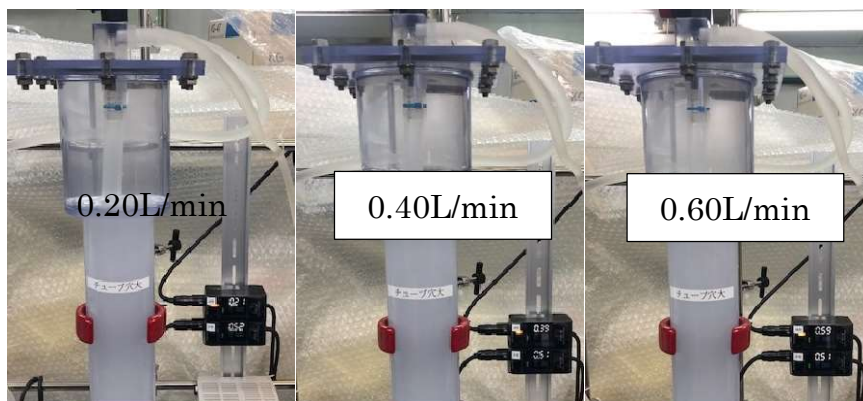


図 3-16 油相噴出速度比較（水相噴出速度 0.50 L/min 固定）

油相は噴出速度が速くなるにつれ、相分離の位置が上昇した。今回の条件においては、0.60 L/min が速度の上限である。この速度以上になると、ポンプの出力を上げても流量はそれほど増えず、配管内の圧力が高まることで接続部分が外れる可能性が生じる。よって油相噴出速度を比較した結果、0.20 L/min～0.40 L/min が最適とした。

水相は、噴出速度の上昇とともに相分離の境界面が下降したことから、管径の増大と相分離の境界面がほぼ一致している 0.50 L/min が最適とした。水相は抽出剤が混入しないよう、安全マージンを多めにとっておいたほうが良いと考えられる。



図 3-17 水相噴出速度比較（油相噴出速度 0.40L/min 固定）

・エマルションフロー装置稼働試験

上記試験からエマルション発生部の孔径、噴出速度を決定し、希塩酸を塩化レアアース溶液に変更して抽出試験を行った。エマルションフロー装置 2 基 (抽出剤濃度 1.35 mol/L) と塩化レアアース溶液 (レアアース濃度 10 g/L) を循環させてデータを採取した。

抽出の進行については pH の推移で確認し、正抽出及び逆抽出を行った。

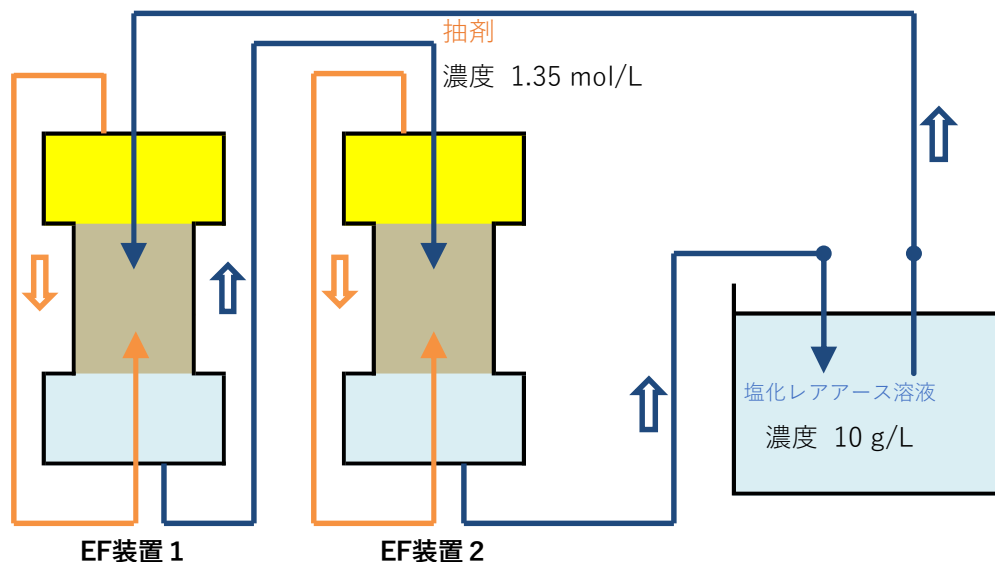


図 3-18 エマルションフロー装置概略

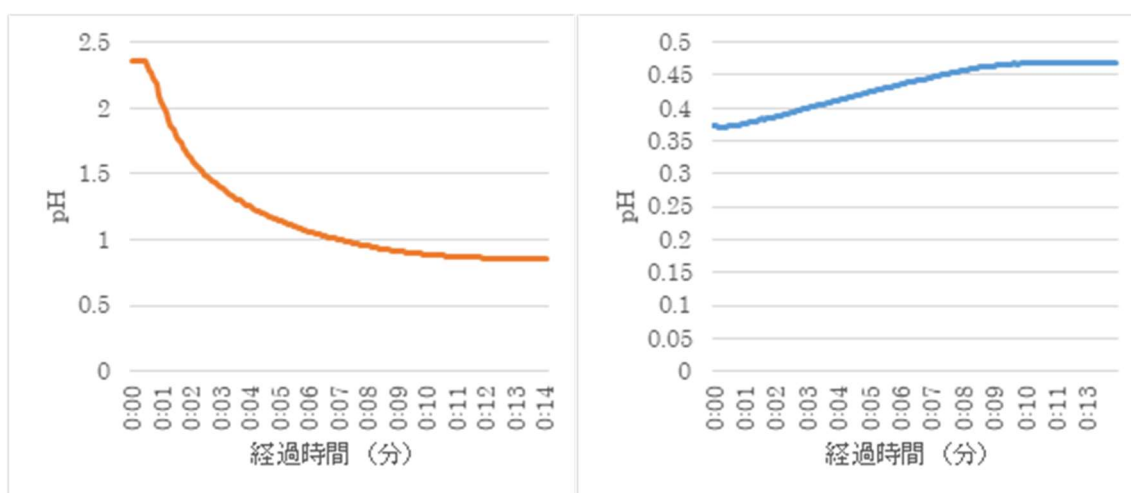


図 3-19 正抽出時 (左図) 及び逆抽出時 (右図) の時間経過と pH 推移

pH 推移から判断した結果、塩化レアアース溶液(濃度 10 g/L)2L に対し、正抽出は約 10 分、逆抽出は約 9 分で抽出が完了した。通常の抽出工程の場合、相分離に時間がかかることを考えると迅速と言える。

一方、抽出前に塩化レアアース溶液にアルカリ溶液 (NaOH 等) を添加し pH 調整を行うが、塩化レアアース溶液の濃度が高い場合、アルカリ溶液添加時に析出物が見られることがあった。この析出物は原料の組成によって異なるが、局部的に pH が高まることで発生したレアアース水酸化物である可能性が高い。攪拌を続ければ時間経過とともに再溶解するが、その前にエマルション発生部に送られた場合、目詰まりの原因になる可能性がある。発生部に目詰まりが生じた場合、エマルションの発生不良が起きたり、送水ポンプより先の内圧が高まることで液漏れの危険性が増す。そして一度析出物の層が出来てしまうと、再溶解も困難となる。局部的に pH が高まることで発生原因であるため、pH 調整に使用するアルカリ溶液の濃度を下げる、添加時の速度を遅くする等の方法が考えられるが、それらの方法は稼働効率の低下を伴う。また、析出物の発生を完全に抑制するものではない。

そこで新たな対策として、析出物の発生しやすい初段に関しては、析出物の影響を受けない機械攪拌式を用いることにした(図 3-20)。また、二段目以降の噴出口にはキャピラリーノズルを採用した(図 3-21)。これは細い管が束ねられた形状をしており、目詰まりが起きにくくなる。

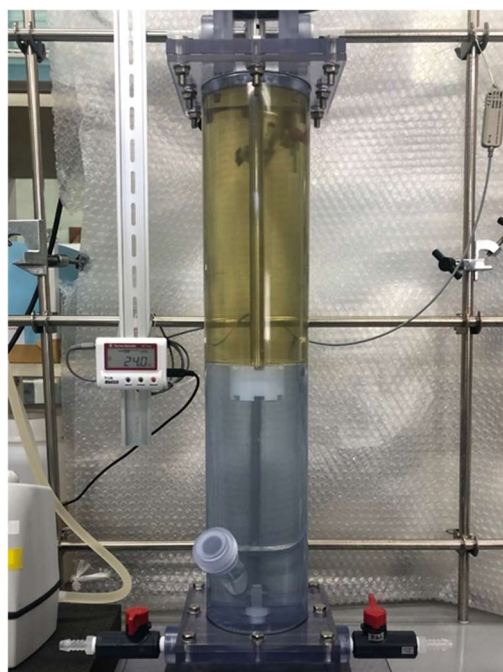


図 3-20 導入した機械攪拌式 EF 装置

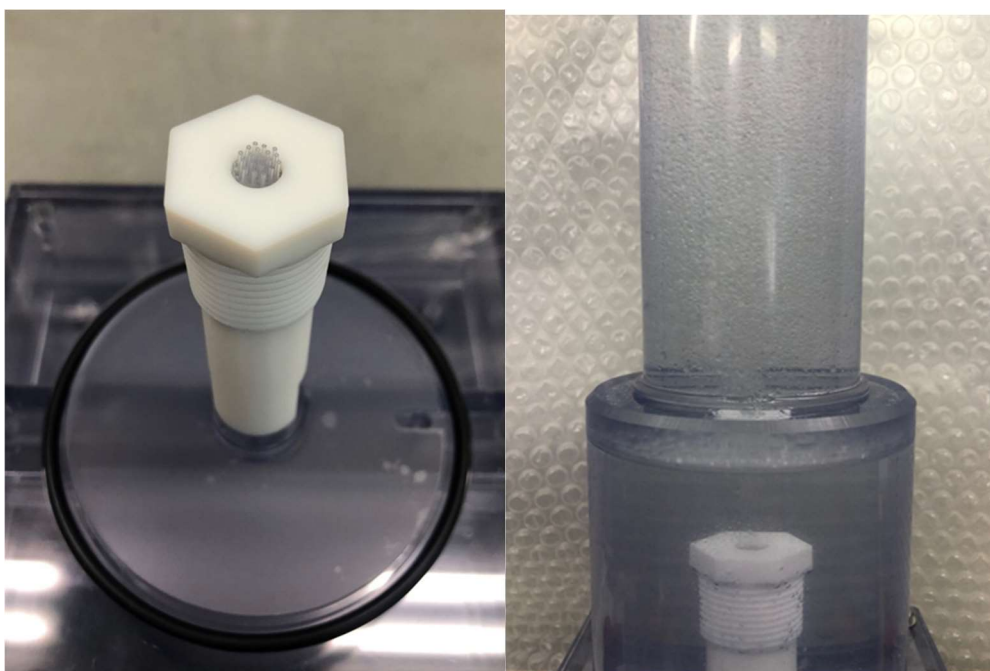


図 3-21 導入したキャピラリーノズル

上記の改善点の他に、pH 電極をエマルションフロー装置の管内に差し込めるよう改良を行った(図 3-21 参照)。それまでの pH 管理は抽出の前と後で行っていたのに対し、装置管内の pH が測定可能となったことで、より正確に段毎の管理が行えるようになった。

3-2-1-4. まとめ

本研究では、溶媒抽出法によるセリウムの高純度化及び分離規模の低減を目指し、バッチ法による抽出剤及び最適分離条件の探索と、エマルションフロー(EF)装置を利用した分離試験を行った。はじめに、代表的なレアアース抽出剤である有機リン系化合物 D2EHPA 及び EHEHPA に加え、アミド-カルボン酸系化合物 D2EHDGAA を用い、 La^{3+} 、 Ce^{3+} 、 Pr^{3+} 及び Nd^{3+} を含む塩酸系溶液からの、各金属イオンの抽出挙動を調べた。いずれも陽イオン交換反応によりレアアースを抽出するが、相互分離の点では D2EHPA が劣っていた。また、全レアアースの抽出挙動に関しても、トリアミド-アミン系抽出剤 DEHTAA により調べた。塩酸系ではほとんどレアアースを抽出しなかったが、硝酸からは特に軽レアアースに対し高い抽出率を示した。硝酸濃度によって、明らかに抽出メカニズムが変化しており、有機相中の硝酸錯体の作成によるものと推測された。硝酸濃度 1.0 M での主要な抽出錯体は $\text{M}(\text{NO}_3)_3\text{DEHTAA}(\text{DEHTAA}\cdot\text{HNO}_3)$ (M: レアアース)であることが示唆された。

模擬液による抽出試験のために、低品位原料の一次濃縮を一般的な手法により行いレアアース含有溶液を得た。この溶液中のレアアース濃度を基に、模擬液の金属組成比を決定した(La: 2.0%, Ce: 95.0, Pr: 0.5%, Nd: 2.5%)。Ce 濃度 10 g/L の模擬液を用いて、EHEHPA 及び D2EHDGAA による正抽出3段のバッチシミュレーションを行ったところ、D2EHDGAA 系においては Ce 純度が約 1%上昇した。また、正抽出2回・逆抽出1回のバッチ試験も EHEHPA 及び D2EHDGAA を用いてそれぞれ行ったところ、Ce の純度は、EHEHPA 系で 95.07%→94.58%に劣化したのに対し、D2EHDGAA 系では 95.07%→98.36%へと上昇した。

EF 装置による試験を、D2EHDGAA 抽出剤を用いた、機械攪拌式の多段システムによって行った。Ce/Pr&Nd 分離工程、Ce/La 分離工程、洗浄工程及び逆抽出工程を経て、最終精製溶液を

得た。Ce/Pr, Nd 分離においては、あらかじめ高濃度の Ce を負荷した油相を用いる「押し出し法」を採用した。その結果、最終精製溶液中の Ce 純度は>99.99%であった。また、使用した機械攪拌式 EF は従来型分離装置であるミキサーセトラーに比べて、およそ 1/3 の装置体積であることから、目標である、装置規模従来比 1/2 以下でセリウム純度 99.99%以上を達成した。

実用化のための評価として、実工程液を用いた EF 装置による分離試験を行ったところ、pH 調整時に析出物が発生する問題が生じた。よって、目詰まり対策としてキャピラリーノズル及び機械攪拌式 EF 装置を導入した。また pH 電極対応型 EF 装置も導入することで、多段化の際に pH 調整を容易にした。

3-2-2 研究開発項目②-2 低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証 (テーマ C2)

3-2-2-1. 緒言

ガソリンエンジン車用の自動車排ガス浄化触媒(三元触媒)において、セリアは助触媒成分として使用されており、理論空燃比近傍での排気ガス組成変動を緩和する酸素貯蔵能、触媒活性成分である貴金属の耐熱性向上等の機能を持つことから、必要不可欠な材料である。現在では、助触媒としての機能を高めるため、セリア単一成分では無くセリア-ジルコニア固溶体の形で使われている。また、セリアとジルコニアの組成比によって特性が変わるため、最適組成で使用されている。したがって、低品位セリア原料を用いてセリア-ジルコニア固溶体を調製した場合、不純物の影響により触媒性能の低下が懸念される。

現行のガソリン車用自動車排ガス触媒(三元触媒)は、コーゼライト等のセラミックスハニカムの内壁に触媒粉末(触媒活性成分+助触媒+担体)をコーティングした構造になっている。現在よく使われている触媒粉末の構成は、Pd 金属を担持したセリア系材料粉末と Pd 金属を担持したアルミナ系材料粉末を 50:50 で混合したものである。本研究においては、低品位セリア原料利用による触媒性能低下を補うため、これら触媒の構成成分の見直しや触媒構造の最適化等により高性能化を図り、現行の実用触媒と同等の浄化性能を目指した。本研究の目標値は模擬排ガスを用いた三元触媒性能評価におけるプロピレン浄化率 50%の温度(T_{50})が 300°C以下、かつ低品位セリア原料の利用率が重量比で 50%以上とした。

3-2-2-2. セリア-ジルコニア担体の調製

セリア-ジルコニア(CZ)担体の調製への低品位セリア原料の使用による触媒性能等への影響を検討するため、セリア純度が異なる CZ 担体を調製した。CZ 担体の調製は図 3-22 のフローチャートに示すように、硝酸セリウムおよび硝酸ジルコニル等の硝酸塩混合水溶液にアンモニア水を滴下し、水酸化物を沈殿させる共沈法により行った。不純物としては、ランタン、ネオジム、プラセオジムを添加した。生成した沈殿は、遠心分離操作により母液と分離し、純水による洗浄、乾燥、粉碎、仮焼、焼成を経て CZ 担体とした。調製した CZ 担体の Ce 純度は、 CeO_2 と ZrO_2 をモル比 1:1 とした場合の CeO_2 を 100%として、77.5%、55%とした。Ce 純度 55%は精製前の低純度希土類溶液中の Ce 純度を参考に決め、Ce 純度 77.5%は Ce 純度 55%のセリア原料を重量比 50%使用して調製した CZ 担体を想定したものである。

調製した各 CZ 担体の BET 比表面積は、23.5~51.6 m^2/g 程度であり触媒担体として使用可能な比表面積を有していた。図 3-23 に示すように調製した CZ 担体の酸素貯蔵能を調べるため、 H_2 -TPR(水素昇温還元スペクトル)を測定し、その面積値から酸素貯蔵容量を算出した。Ce 純度 55%の CZ 担体は還元ピークが高温側にシフトし、600°Cまでの還元における酸素貯蔵容量も Ce 純度の高い CZ 担体に比べて半分以下と大きく下回り、CZ 担体の Ce 純度が酸素貯蔵能に影響することが確認された。

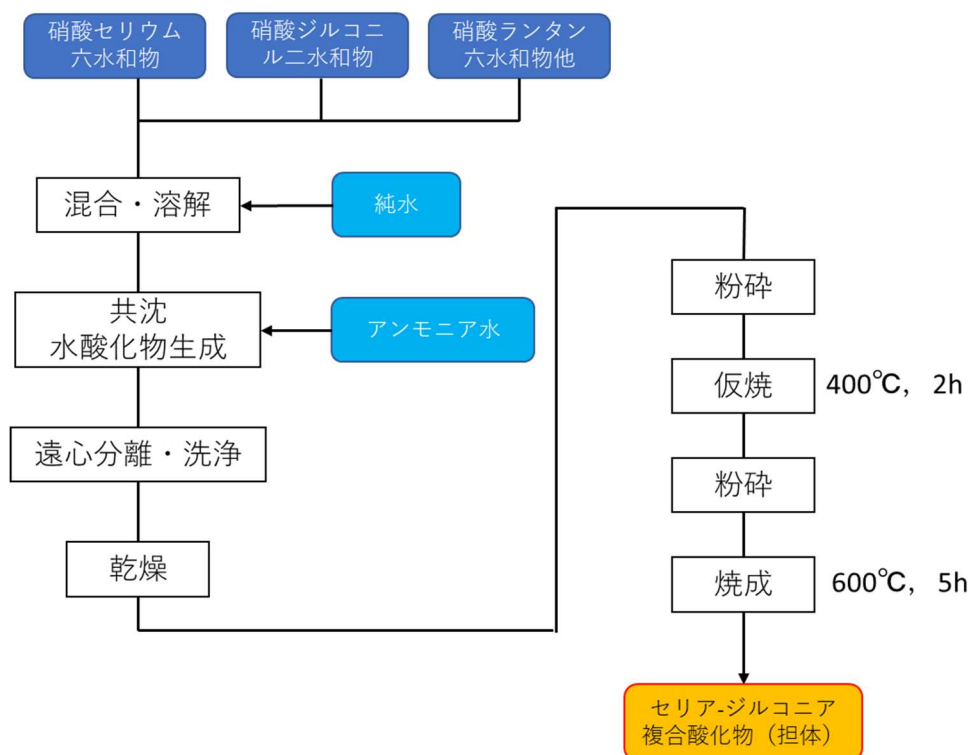


図 3-22 セリアージルコニア (CZ) 担体調製フローチャート

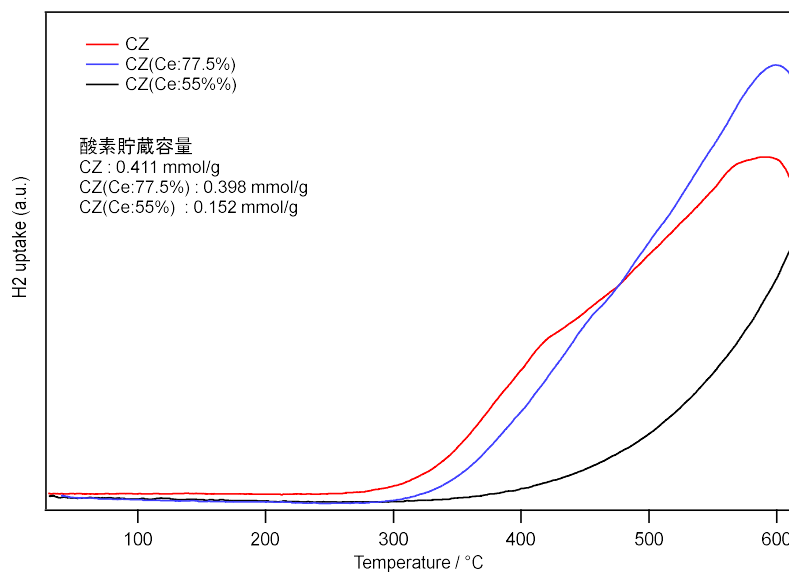


図 3-23 調製したセリアージルコニア (CZ) 担体の H₂-TPR スペクトル

3-2-2-3. セリアージルコニア担持貴金属触媒の評価

調製した CZ 担体への貴金属の担持は、従来法である含浸法および表面ポリオール還元法により行った。含浸法は担体を貴金属塩水溶液に含浸させた後、蒸発乾固し焼成する方法であり、表面ポリオール還元法は図 3-24 に示すように担体に貴金属塩を含浸させる際に、少量のポリオール還元剤を添加し、蒸発乾固後の粉末を窒素等の不活性ガス気流中で加熱することによりポリオール還元を誘起し、貴金属ナノ粒子を担体表面上に還元析出させる方法である。どちらの

方法においても 600°C 空气中 5 時間焼成を行い触媒とした。貴金属担持量は 2wt% とした。担持された貴金属の粒子径は、CO パルス吸着法を用いた金属分散度測定から算出した。

CZ 担体に Pd と Pt を複合した貴金属を担持した触媒を調製し、ガソリンエンジン排ガスを模したモデルガスによる三元触媒性能評価を行った。三元触媒反応評価は、固定床流通式反応装置を使用し、触媒粉末=50mg、NO=0.15%、CO=0.35%、C₃H₆=0.1%、O₂=0.25%、H₂O=10%、N₂ バランス、500mL/min 条件で、600°C までのライトオフ特性を測定した。

貴金属中の Pt の割合とプロピレン、NO、CO の浄化率 50% の温度 T₅₀ との関係を図 3-25 にプロットした。プロピレン浄化においてはどちらの調製方法の触媒も Pt の複合化割合に影響されず T₅₀ が大きく変化せず、NO 浄化においては Pt の複合化割合の増加によりわずかに T₅₀ が高くなり、CO 浄化においては Pt の複合化割合の増加により T₅₀ が低くなることが分かった。一方、調製方法の比較では、表面ポリオール還元法よりも含浸法により調製した触媒の T₅₀ が低く、より触媒活性が高いことが分かった。図 3-26 に反応評価前後の CO パルス測定法により測定した金属分散度から算出した貴金属粒子径を示した。反応前の貴金属粒子径は含浸法触媒の方が小さく貴金属表面積が大きいことから、表面ポリオール還元法の触媒よりも含浸法触媒の性能が高くなったと考えられる。一方、反応後の貴金属粒子径はどちらの調製方法においても反応前よりも大きくなっており、反応温度が 600°C に到達することで貴金属のシンタリングが進行していることと考えられる。しかし、Pt の複合率 65% においては、反応後の貴金属粒子径が含浸法よりも表面ポリオール還元法の方が高くなっており、Pt 複合割合の高い領域では表面ポリオール還元法で調製した触媒の耐熱性が高いことを示している。

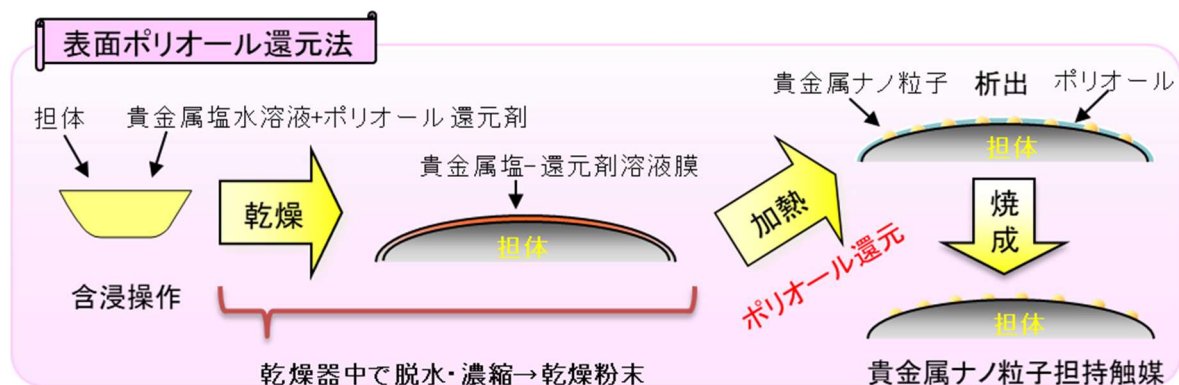


図 3-24 表面ポリオール還元法の概念図

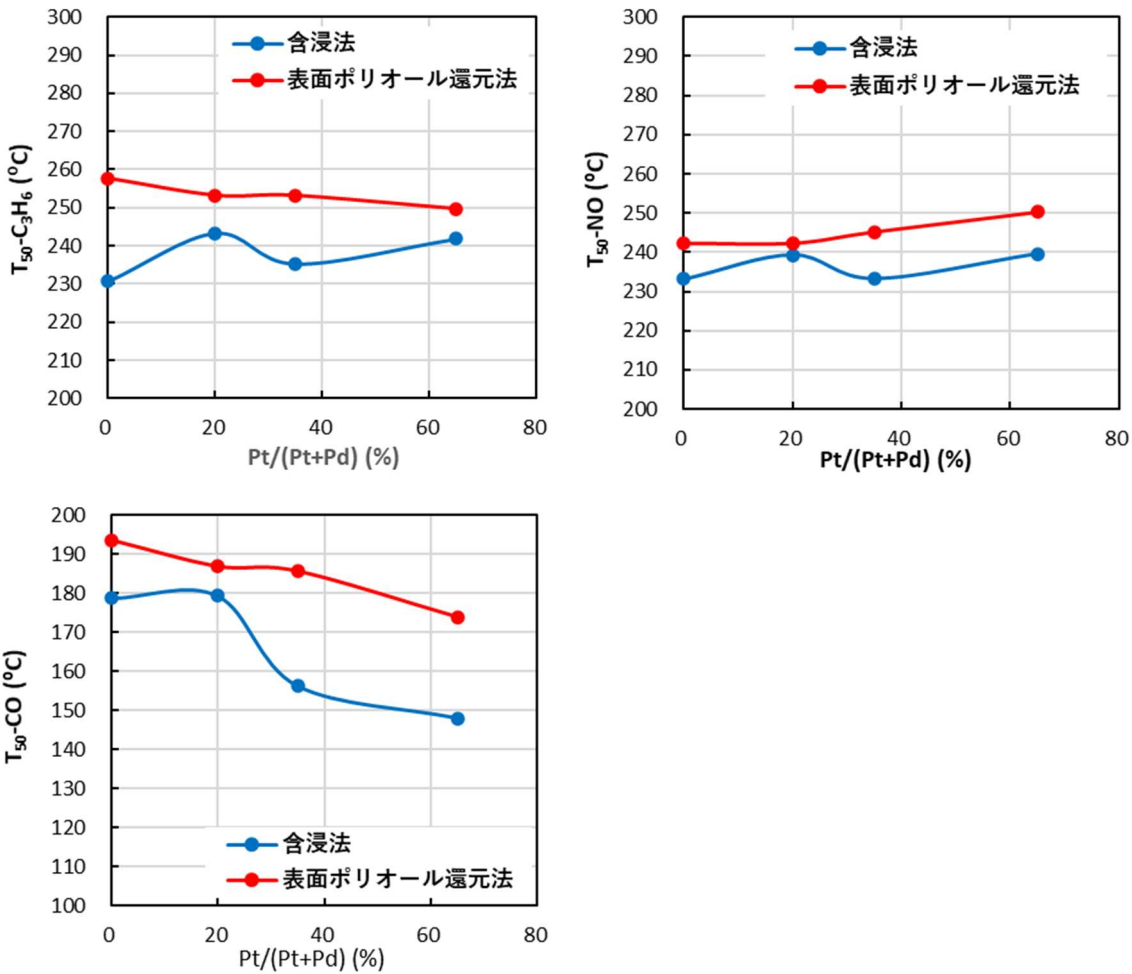


図 3-25 Pd-Pt/CZ 触媒の Pt 複合化割合とプロピレン、NO および CO 浄化率 50% 温度 (T₅₀) との関係

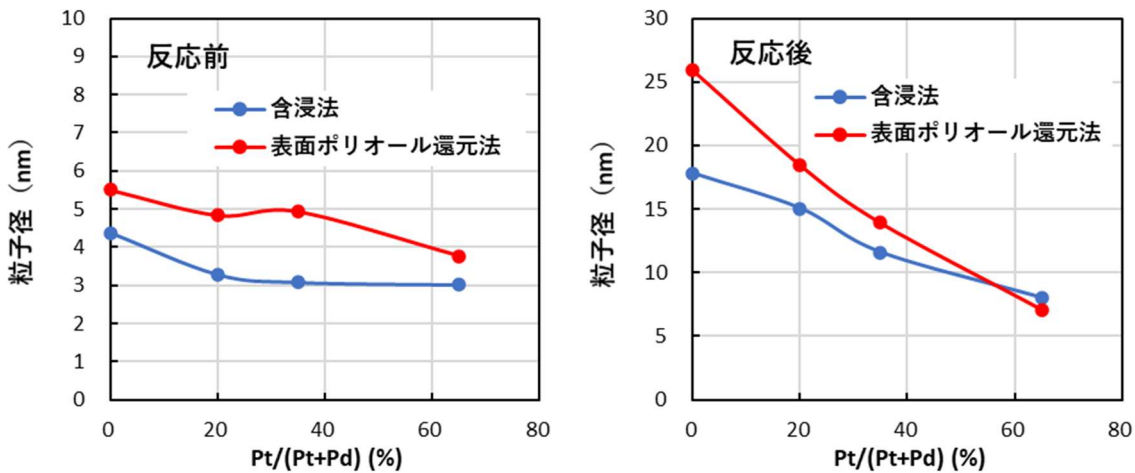


図 3-26 Pd-Pt/CZ 触媒の反応評価前後の貴金属粒子径

図 3-25 の結果から、含浸法により調製した Pd/CZ 触媒のプロピレンおよび NO の浄化特性がもっとも高いこと、現行の実用触媒において Pd/CZ+Pd/Al₂O₃ が使用されていることから、セリア純度の異なる CZ 担体に 2wt% の Pd を含浸法より担持した触媒について三元触媒特性の評価を検討した。基準となる CZ 担体は Ce と Zr のモル比 1:1 とし、この担体の Ce 含有量を Ce 純度 100% として、Ce 純度 55% および 77.5% の担体を調製した。その際、不純物として La, Nd, Pr を所

定の割合で添加した。図 3-27 に Ce 純度の異なる Pd/CZ 触媒のライトオフ特性を示し、表 3-9 にライトオフ特性から得られた各反応物質の浄化率 50% 温度 T_{50} と Pd 粒子径をまとめた。図 3-27 と表 3-9 から Ce 純度が低くなるとともに T_{50} が高くなり、触媒性能が低下することが分かった。Ce 純度 55% の CZ 担体を使用した触媒は、Pd 粒子径が約 23nm であり、Ce 純度 100%, 77.5% の触媒の約 4.5nm と比較してかなり大きく、このことが触媒活性低下の原因と考えられる。Ce 純度 55% の CZ 担体の Pd 粒子径が大きい理由としては、他の担体では約 $51\text{m}^2/\text{g}$ 程度である BET 比表面積が $23.5\text{m}^2/\text{g}$ であり、比表面積が大幅に小さいためと考えられる。

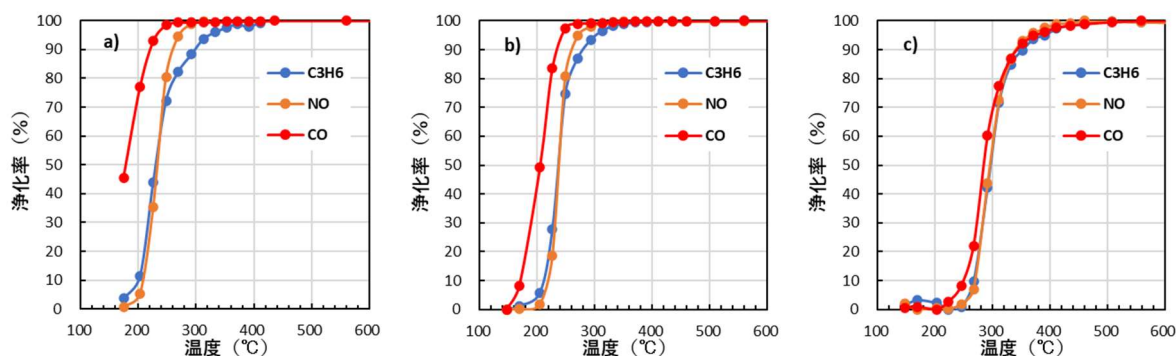


図 3-27 セリア純度の異なる Pd/CZ 触媒のライトオフ特性 a) Ce:100%, b) Ce:77.5%, c) Ce:55%

表 3-9 セリア純度の異なる Pd/CZ 触媒の T_{50} および Pd 粒子径

Ce純度 (%)	T_{50} (°C)			Pd粒子径 (nm)
	C ₃ H ₆	NO	CO	
100	230.7	233.1	178.6	4.4
77.5	236.8	237.5	205.1	4.5
55	296.5	295.6	284.7	22.6

3-2-2-4. アルミナ担体へのセリア添加による触媒特性向上

アルミナ担持貴金属触媒の調製は、担体として市販の水澤化学工業(株)製の GP-20 とこの担体にセリアを 3wt% 担持した担体を使用し、含浸法および表面ポリオール還元法により行った。どちらの調製方法も 600°C 空气中 5 時間焼成を行い触媒とした。貴金属担持量は 2wt% とした。調製方法、アルミナ担体へのセリア添加の有無、Pd と Pt の複合化割合等の差異を有するこれら触媒について、貴金属粒子径および三元触媒性能評価を検討した。

貴金属中の Pt の割合とプロピレン、NO、CO の浄化率 50% の温度 T_{50} との関係を図 3-28 にプロットした。含浸法および表面ポリオール還元法により調製したセリア未添加の触媒においては、プロピレン、NO と CO の T_{50} が、Pt 複合化割合の増加とともに高くなり、浄化性能が低下する傾向を示した。一方、セリアを添加した触媒においては、調製方法および Pt 複合化割合に関わらずプロピレン、NO と CO の T_{50} が低くなり、浄化性能が向上した。これは、アルミナ担体表面上で添加したセリアと貴金属粒子が界面を形成し、この界面形成が触媒性能向上の要因と考えられる。また、プロピレンおよび NO 浄化においてはどちらの調製法の触媒も Pt の複合化割合に関わらず T_{50} の大きな変化は無く、CO 浄化においては Pt の複合化割合の増加により T_{50} が低下することが分かった。調製方法の比較では、表面ポリオール還元法よりも含浸法により調製した触媒の

T_{50} が低く、より触媒活性が高かった。これは図 3-29 に示すように表面ポリオール還元法により調製した触媒の貴金属粒子径が含浸法により調製した触媒よりも大きいことに起因すると考えられる。つまり、同じ貴金属担持量であれば貴金属粒子径が小さいほど、貴金属粒子表面積即ち反応活性サイト数が大きくなり、触媒活性が高くなるためである。

新品触媒では含浸法に対して表面ポリオール還元法の優位性が見られなかったことから、触媒の耐熱性について検討した。触媒の耐熱試験は触媒を空气中 800°C 20 時間焼成することにより行い、貴金属粒子径および三元触媒性能評価を行った。耐熱試験後の貴金属粒子径とプロピレン浄化の T_{50} を図 3-30 に示した。耐熱試験後の貴金属粒子径は、Pt の複合化割合の増加とともに大きくなっており、また Pt の複合化割合の高い領域では含浸法よりも表面ポリオール還元法により調製した触媒の貴金属粒子径小さくなる傾向が見られた。特に Pt のみの触媒では特にその傾向が顕著であった。プロピレン浄化性能においては、Pt の複合化割合の増加とともに T_{50} が高くなる傾向が見られたが、調製方法においては表面ポリオール還元法の T_{50} が低く、調製方法によらずセリア添加の触媒の T_{50} が低かった。表面ポリオール還元法は Pt 複合化割合の高い領域で、貴金属粒子の耐熱性ととも触媒性能も顕著に向上させることが分かった。三元触媒はエンジン排ガスが運転状況により高温に曝されるため、実用化に際しては触媒の耐熱性が非常に重要な技術課題であり、表面ポリオール還元法は Pt を主体とする三元触媒の耐熱性改善に対して有効な方法であると考えられる。

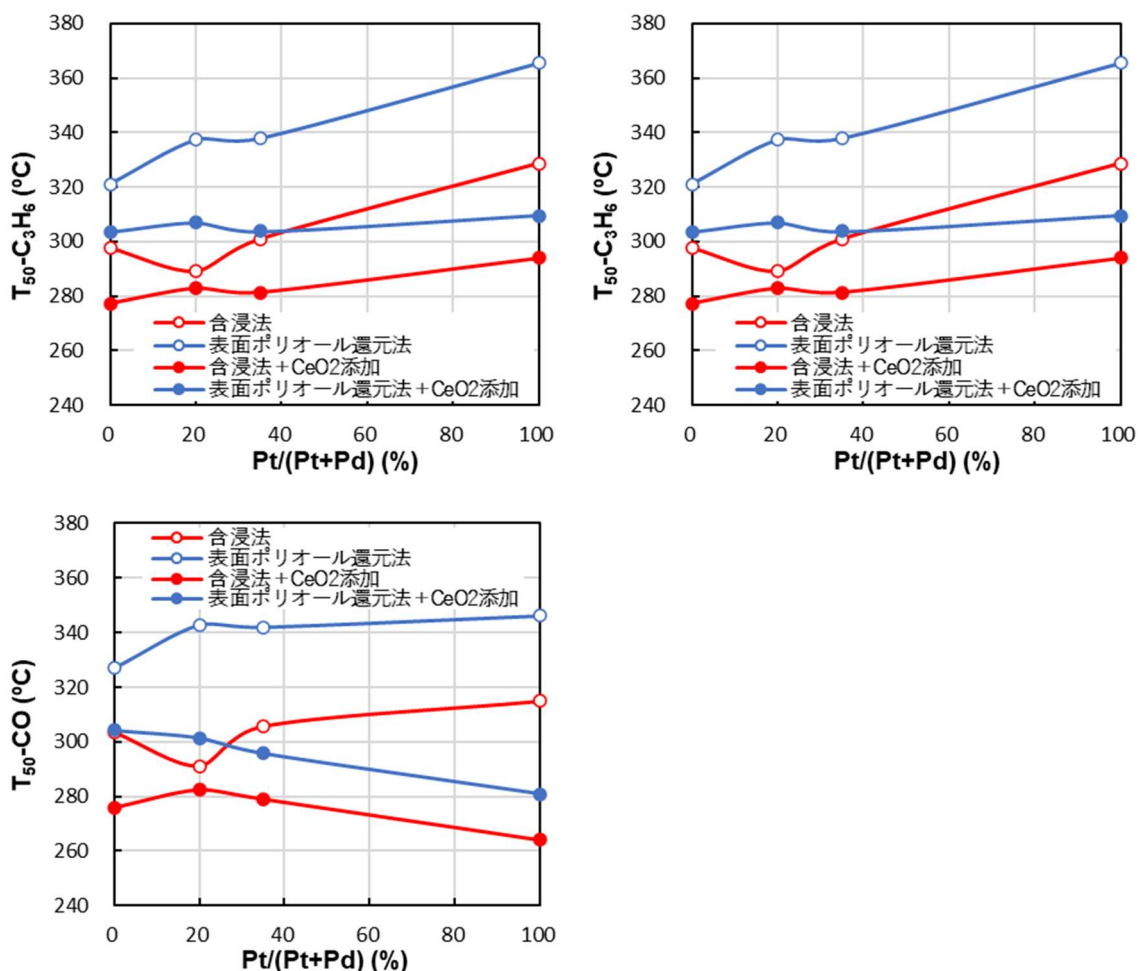


図 3-28 Pd-Pt/Al₂O₃ および Pd-Pt/CeO₂/ Al₂O₃ 触媒の Pt 複合化割合とプロピレン、NO および CO 浄化率 50% 温度 (T_{50}) との関係

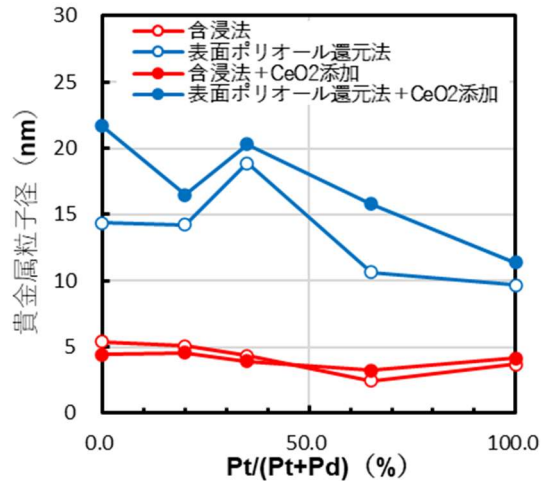


図 3-29 Pd-Pt/ Al₂O₃ 系触媒の Pt 複合化割合と貴金属粒子径との関係

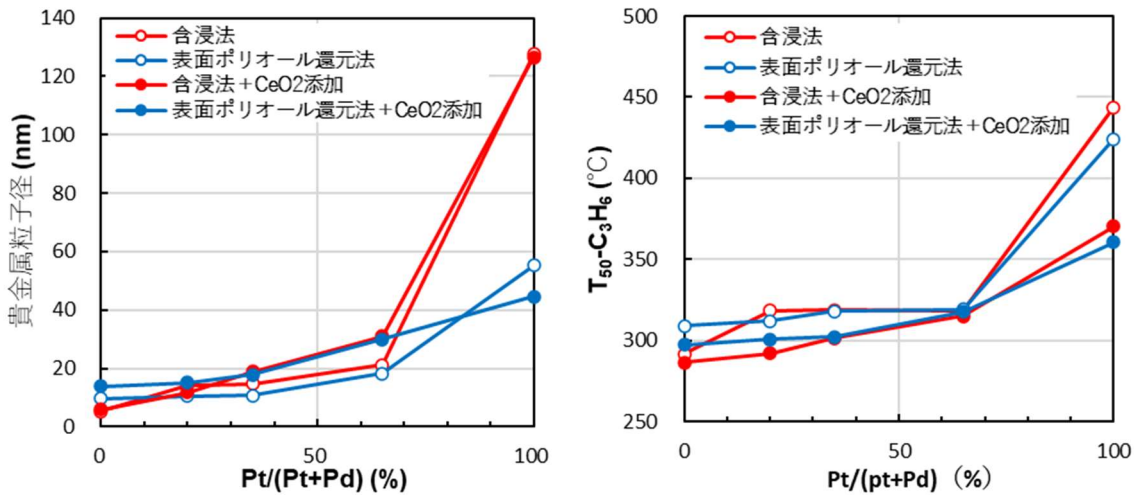


図 3-30 耐熱試験後の Pd-Pt/Al₂O₃ および Pd-Pt/CeO₂/Al₂O₃ 触媒の Pt 複合化割合と貴金属粒子径およびプロピレン浄化率 50% 温度 T₅₀ との関係

3-2-2-5. Pd/CZ と Pd/Al₂O₃ の物理混合系触媒の三元触媒性能評価

Pd/CZ 触媒においては、CZ 担体のセリア純度が触媒性能に影響すること、Pd/Al₂O₃ 触媒においては、Al₂O₃ 担体への少量のセリア添加が触媒性能を向上させることを確認した。そこで、低品位セリア原料から調製した Pd/CZ 触媒の性能低下を Pd/Al₂O₃ 触媒へのセリア添加による触媒性能向上が補えることを確かめるために Pd/CZ と Pd/Al₂O₃ の物理混合系触媒の三元触媒性能評価を行った。この評価にはセリア純度の異なる Pd/CZ 触媒とセリア未添加および添加した Pd/Al₂O₃ 触媒を同重量で混合した触媒を使用した。これら触媒はいずれも Pd 担持量 2wt% とし、含浸法により調製したものを使用した。

図 3-31 に a) Pd/CZ(Ce:100%)+Pd/Al₂O₃, b) Pd/CZ(Ce:77.5%)+Pd/Al₂O₃, c) Pd/CZ(Ce:77.5%)+Pd/CeO₂/Al₂O₃ の組み合わせの物理混合触媒の三元触媒反応におけるライトオフ特性を示し、表 3-10 に各物理混合触媒のライトオフ特性から算出した浄化率 50% 温度 T₅₀ を

示した。a) Pd/CZ(Ce:100%)+Pd/Al₂O₃ 触媒の T₅₀ がもっとも低く、b)Pd/CZ(Ce:77.5%)+Pd/Al₂O₃ 触媒においては 12~20°C程度高温側に T₅₀ がシフトしており、CZ 担体のセリア純度低下による触媒性能低下が反映されている。一方、c) Pd/CZ(Ce:77.5%)+Pd/CeO₂/Al₂O₃ 触媒においては、T₅₀ の高温側シフトが 5~15 程度に抑制されており、Pd/Al₂O₃ 触媒へのセリア添加が有効であることが確認できた。このことから、低品位セリア原料から調製した Pd/CZ 触媒の性能低下を Pd/Al₂O₃ 触媒へのセリア添加による触媒性能向上が補えることが実証された。また、この結果は模擬排ガスを用いた三元触媒性能評価におけるプロピレン浄化率 50%の温度(T₅₀)が 300°C以下、かつ低品位セリア原料の利用率が重量比で 50%以上の本研究の目標値の達成を示すものである。

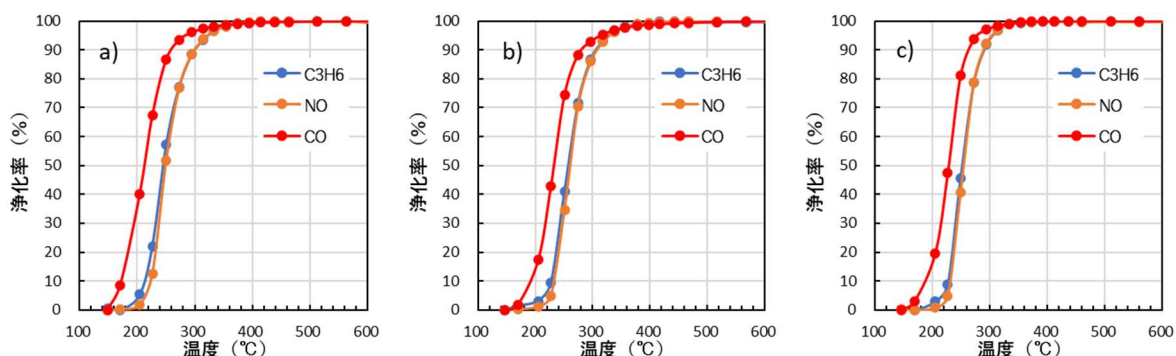


図 3-31 物理混合触媒のライトオフ特性 a) Pd/CZ(Ce:100%)+Pd/Al₂O₃,
b) Pd/CZ(Ce:77.5%)+Pd/Al₂O₃, c) Pd/CZ(Ce:77.5%)+Pd/CeO₂/Al₂O₃

表 3-10 各物理混合触媒の浄化率 50%温度 T₅₀

触媒種	T ₅₀ (°C)		
	C ₃ H ₆	NO	CO
a) Pd/CZ(Ce:100%)+Pd/Al ₂ O ₃	245.5	249.3	212.4
b) Pd/CZ(Ce:77.5%)+Pd/Al ₂ O ₃	257.7	261.0	232.5
c) Pd/CZ(Ce:77.5%)+Pd/CeO ₂ /Al ₂ O ₃	251.4	254.0	227.9

3-2-2-6. ハニカム触媒の調製

ガソリンエンジン排ガスを用いた実機評価を行うため、表 3-11 に示すような仕様のハニカム触媒の作製を行った。ハニカムに担持する触媒は Pd/CZ+Pd/Al₂O₃ および Pd/CZ(Ce:77.5%)+Pd/CeO₂/Al₂O₃ の組み合わせで、それぞれの触媒を同量混ぜ合わせたものを担持した。ハニカムへのウォッシュコートは、表 3-12 に示すような組成のスラリーを調製して、ウォッシュコートによりハニカム担体のセル内壁にコーティングした。ウォッシュコート後、120°Cの乾燥器で乾燥した後、マッフル炉で空气中 600°C30 分焼成し、コーティングした触媒重量が所定量に達するまで、ウォッシュコート→乾燥→焼成を繰り返した。ウォッシュコートに使用した触媒は含浸法により調製し、バインダーとなるベーマイトゾルはゾルゲル法により調製した。

表 3-11 実機試験用ハニカム触媒の仕様

貴金属種	Pd
担持量	2.0 g/L
担体	CZ+Al ₂ O ₃ , CZ(Ce:77.5%)+3%CeO ₂ /Al ₂ O ₃
バインダー	Al ₂ O ₃
ハニカム基材	コーディエライト φ 105.7xL114mm 4.3mil/600cpsi, 1.0L (日本碍子)
レイヤリング	モノレイヤー
ウォッシュコート	触媒 100 g/L + バインダー 10 g/L

表 3-12 ウォッシュコート液の組成

構成要素	材料
触媒	Pd/CZ+Pd/Al ₂ O ₃ , Pd/CZ(Ce:77.5%)+ Pd/3%CeO ₂ /Al ₂ O ₃
バインダー	ベーマイトゾル
添加有機物	トレハロース二水和物

3-2-2-7. ハニカム触媒のテストピースの三元触媒性能評価

ガソリンエンジン排ガスを使用した実機評価の前に、モデルガスを使用した三元触媒性能評価を行うために、小さく切り出したハニカム触媒のテストピースを作製した。テストピースのサイズは5x5セルで幅約6mm長さ23mmとした。テストピースは石英ウールで巻いて石英製反応管内に設置し、触媒粉末と同じモデルガス条件(NO=0.15%、CO=0.35%、C₃H₆=0.1%、O₂=0.25%、H₂O=10%、N₂ バランス 500mL/min)で評価を行った。

図 3-32 に Pd/CZ+Pd/Al₂O₃ および Pd/CZ(Ce:77.5%)+Pd/CeO₂/Al₂O₃ のハニカムテストピースのライトオフ特性を示し、これらライトオフカーブから算出した浄化率 50%温度 T₅₀ を表 3-13 にまとめた。触媒粉末と比較してライトオフ特性が少し高温側にシフトしており、これはハニカムにコーティングしたことにより反応ガスの接触効率が低下したことに起因する。しかし、どちらのテストピースもほぼ同様なライトオフ特性を示し、ハニカム触媒においても CZ 担体の性能低下を Al₂O₃ 担体へのセリア添加により補われることが示された。

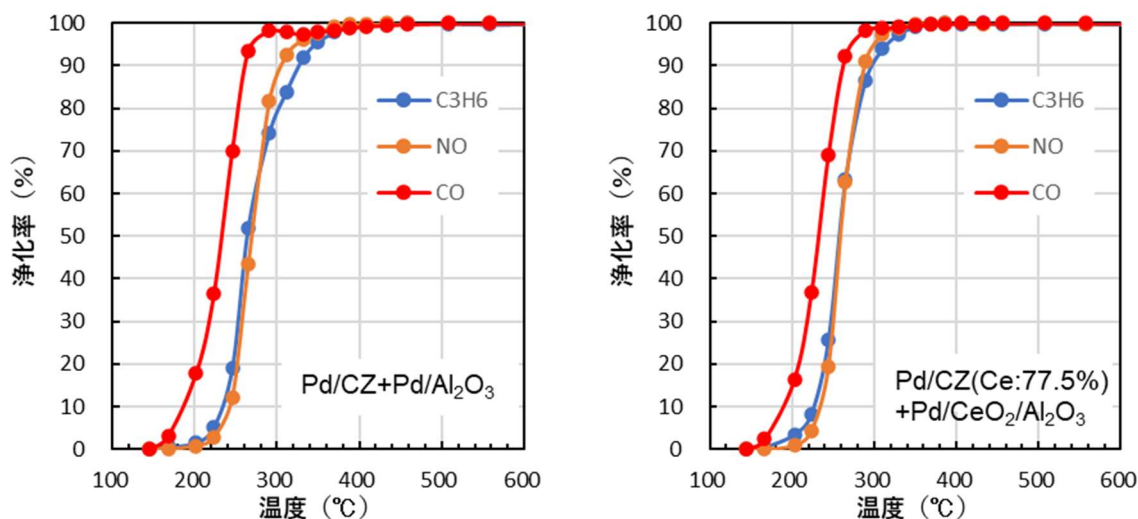


図 3-32 Pd/CZ+Pd/Al₂O₃ および Pd/CZ(Ce:77.5%)+Pd/CeO₂/Al₂O₃ のハニカムテストピースのライトオフ特性

表 3-13 ハニカムテストピース触媒の T₅₀

触媒種	T ₅₀ (°C)		
	C ₃ H ₆	NO	CO
Pd/CZ+Pd/Al ₂ O ₃	263.9	269.4	232.3
Pd/CZ(Ce:77.5%)+Pd/CeO ₂ /Al ₂ O ₃	257.6	258.8	231.9

3-2-2-8. ガソリンエンジン排ガスを用いた実機評価

作製した Pd/CZ+Pd/Al₂O₃ および Pd/CZ(Ce:77.5%)+Pd/CeO₂/Al₂O₃ ハニカム触媒の実機評価を行った。実機評価は写真 3-1 のようにハニカム触媒を約 2400cc のガソリンエンジンを搭載した車両の排気系に装着し、シャシーダイナモ上での NEDC モードで走行を行い、触媒前後の排気ガスを分析した。表 3-14 に実機評価の条件、図 3-33 に NEDC モードの走行条件を示した。

図 3-34 に Pd/CZ+Pd/Al₂O₃ および Pd/CZ(Ce:77.5%)+Pd/CeO₂/Al₂O₃ ハニカム触媒のコールドスタート時のエミッション浄化率を示した。CO 浄化率はハニカム触媒の温度上昇に伴い 200sec から急激に高くなり、どちらの触媒も同等の触媒特性を示した。炭化水素の浄化率も 200sec から急激に高くなり、200~400sec 間で触媒間の差が見られたが、それ以降は概ね同等の触媒特性を示した。NO 浄化率はどちらの触媒においてもあまり高くないがほぼ同等の触媒特性を示した。実機評価で NO 浄化率があまり高くないことは、モデルガスによる三元触媒反応評価において 250°C 以上で高い NO 浄化率を示すことからハニカム触媒の性能によるものではなく、NO を浄化するための反応条件に入っていなかったと考えられる。また、図 3-35 にモード走行時に排出された排気ガスをバックにサンプリングし計測したエミッションの排出量を示した。どちらのハニカム触媒においても各エミッションの排出量は同程度であった。以上の実機評価においてどちらのハニカム触媒も同等の性能を示すことから、CZ 担体の Ce 純度低下に伴う触媒性能低下を Al₂O₃ 担体へのセリア添加により補えることを実証された。



写真 3-1 シャシーダイナモ上の車両と排気系に装着されたハニカム触媒

表 3-14 ハニカム触媒の実機評価条件

触媒	実用触媒同組成触媒	Pd/CZ+Pd/Al ₂ O ₃
	開発触媒	Pd/CZ(Ce:77.5%)+Pd/CeO ₂ /Al ₂ O ₃
評価条件	外気温	25℃
	モード	NEDC (最高速度 90km/h)・80kmh ⁻¹ 定常
	車両状態	COLD/HOT
	燃料	レギュラーガソリン
車両諸元	車両	イステイマ DBA-ACR50W
	排気量	2362cc
測定	ガス温度	触媒入ガス/出ガス
	測定ガス成分	BAG (CO/NO _x /THC/CO ₂ /CH ₄ /NMHC)
	分析計 HORIBA 製 MEXA-ONE	DIRECT (CO/NO _x /THC/CO ₂ /O ₂) ※定常は BAG 値なし

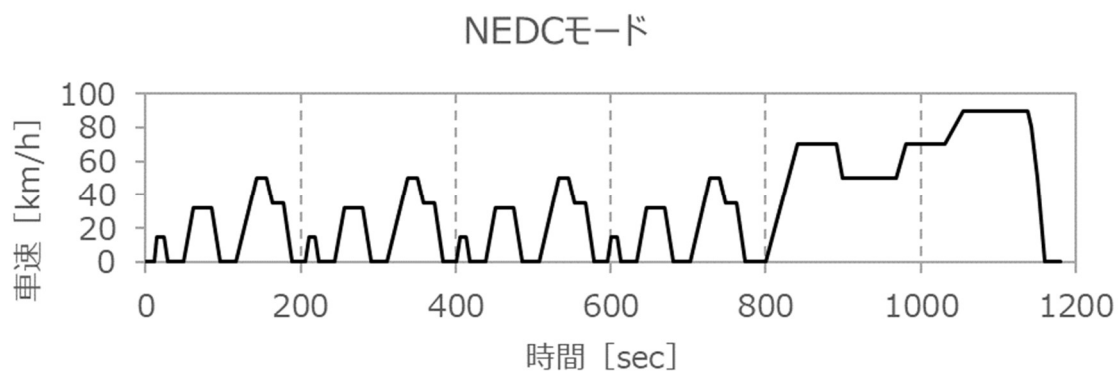


図 3-33 NEDC モード走行条件

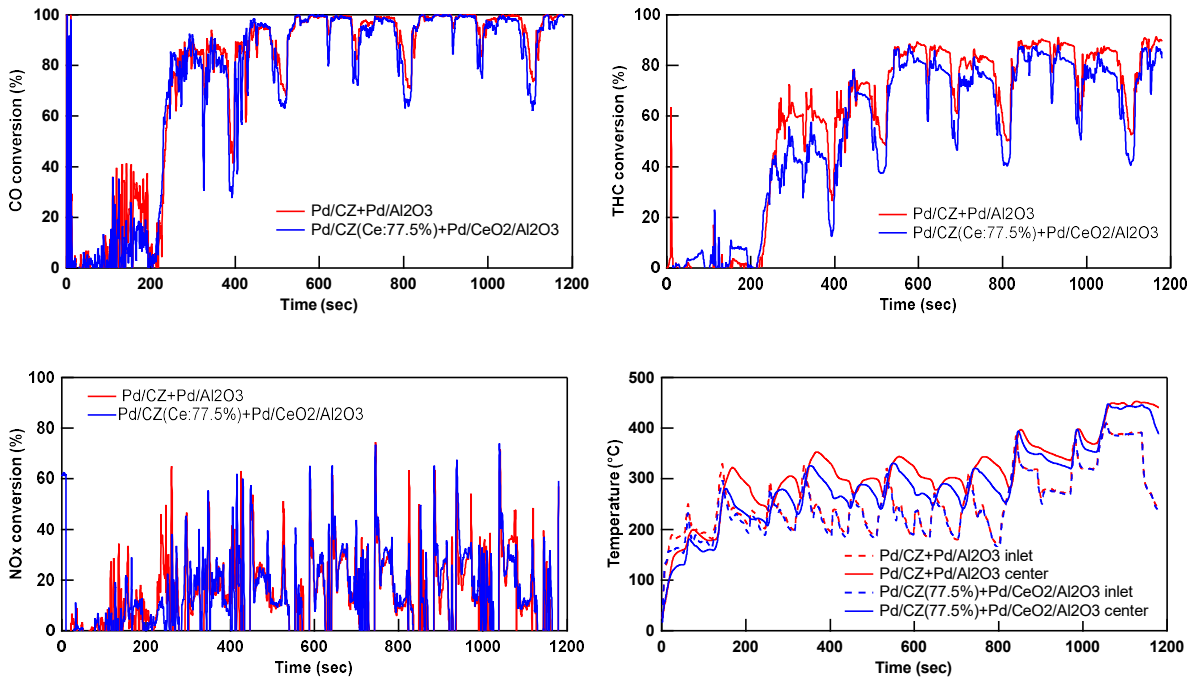


図 3-34 ハニカム触媒の NEDC コールドスタート時のエミッション浄化率および触媒温度

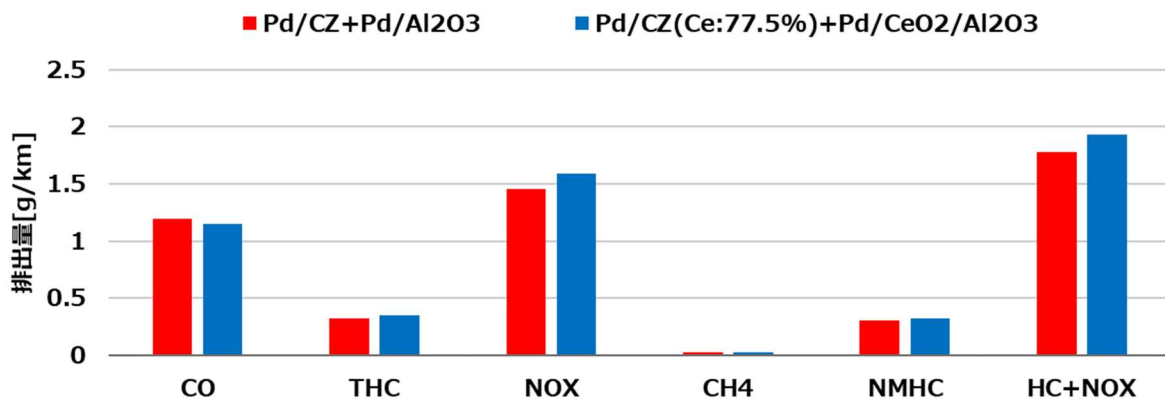


図 3-35 ハニカム触媒のコールドスタート時のエミッション排出量

3-2-2-9. まとめ

本研究ではセリア材料のサプライチェーン強靱化を図るため、低品位セリア原料利用拡大にともない予想される三元触媒の触媒性能低下を触媒成分および触媒構造の最適化による高性能化を行い、現行の実用触媒と同等性能を実現することを目指した。触媒組成および触媒構造の最適化を図るため、セリアージルコニア担体およびアルミナ担体を使用して種々の組成の触媒を含浸法および表面ポリオール法により調製し、調製した触媒のキャラクタリゼーションと三元触媒特性評価を行った。

PdとPtを複合化してCZ担体に担持した触媒では、Ptの複合化割合の増加とともにCO浄化性能が向上したが、プロピレンおよびNO浄化性能は低下した。また、調製方法としては表面ポリオール還元法よりも含浸法により調製した触媒の浄化性能が高かった。低品位セリア原料の使用を想定したCZ担体への不純物添加によってPd/CZ触媒の性能が、セリア純度の低下とともに低下することを確認した。一方、アルミナ担体へのセリア添加は、触媒調製方法およびPdとPtの複合化割合に関わらず、触媒性能と耐熱性を向上させることが分かった。また、表面ポリオール還元法により調製したPt複合化割合の高い触媒において耐熱性の向上が顕著であった。

低品位セリア原料を50%使用したと想定したPd/CZ(Ce:77.5%)とPd/CeO₂/Al₂O₃を同量混合した触媒と実用触媒と同組成のPd/CZとPd/Al₂O₃を同量混合した触媒の三元触媒反応評価において、どちら触媒も同程度の触媒性能を示し、本研究の目標値であるプロピレン浄化率50%の温度(T₅₀)が300℃以下、かつ低品位セリア原料の利用率が重量比で50%以上を達成した。ハニカム触媒においても同様の比較を行ったところ、モデルガスおよびガソリンエンジン排ガスを用いた三元触媒性能評価でほぼ同等の性能を示し、低品位セリア原料から調製したPd/CZ触媒の性能低下をPd/Al₂O₃触媒へのセリア添加による触媒性能向上が補え得ることが実証された。

3-3. 競合技術と比較した優位性

表 3-15 に、本研究における世界初、世界最高水準、新たな技術領域の開拓等、代表的な取り組み及び成果についてまとめた。

表 3-15 世界水準の代表的な取り組み及び成果

C1 低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発	エマルションフローによる金属抽出技術は原子力機構の特許技術であり、国内外に類似技術はないオリジナリティーが高いものである。今回、押し出し法を組み合わせることで、セリウム純度 99.99%以上という極めて高い値が得られており、本事業の装置規模でこの純度を得る抽出技術は国際的にも他に類をみない。
C2 低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証	低品位セリア原料を利用した自動車排ガス浄化触媒の報告例がなく、低品位セリア原料利用による触媒性能低下を触媒の構成要素であるアルミナ系担持触媒の性能向上により補得ことを実証した。

3-4. 成果の普及(テーマ C)

(1) 論文等研究成果の学術的な対外発表

【論文】

・Seiko Uchino, Hirokazu NARITA, Keisuke Kita, Hideya Suzuki, Tatsuro Matsumura, Hirochika Naganawa, Koichi Sakaguchi, and Keisuke Ohto, Extraction Properties of Trivalent Rare Earth Ions from Nitric Acid Using a Triamide-Amine Extractant, Solvent Extraction and Research Development, Japan (2022 年 5 月受理)

・その他、2023 年 3 月末までの口頭発表予定1件

(2) 実用化の戦略に沿った成果普及の取組

① 専門家、関係企業、成果ユーザー等へ情報発信

【政府間会合】

・H. Naganawa: 8th Japan-U.S. Bilateral Meeting on Rare Metals (2020 年 12 月)

3-5. 知的財産権等の確保に向けた取組

C1 低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発において得られた、押し出し法によるレアアース高純度化に関しては、特許化に向けて検討を進めている。

C2 低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証においては、表面ポリオール還元法については特許取得済みであり、今後の取組である触媒の耐熱性の向上において特許化を期待している。

4. 成果の実用化に向けた取り組み及び見通し(テーマ C)

本プロジェクトにおける実用化とは、「当該研究開発に係る成果（装置、システム等の基盤技術）が金属精錬事業者、触媒メーカー、関連装置開発事業者等により利用が開始されること」をいう。

4-1. 成果の実用化に向けた取組(テーマ C)

(1) C1 低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発

本事業では、高純度レアアース塩類の専門メーカーであるニッキ株式会社が研究開発に参画しており、目標値設定や分離回収条件等の決定に関与している。また、エマルションフロー装置関連の特許を有している原子力機構からの本事業への参画者らは、2021年4月に株式会社エマルションフローテクノロジーズを設立しており、実用的な分離装置開発を行っている。

上記より本事業の中では実際の CMP 材の原料に使用可能なセリウムの純度(99.99%以上)を目標値の一つに設定した。また、従来型分離装置に比べて大幅な装置規模の縮小が可能であるエマルションフロー装置を導入することで、国内精錬を困難にしている原因の一つである設置面積を低減すること(従来比 1/2)を目指した。

本事業においてこれらの目標を達成したことより、終了後は、試験研究を3年程度、エマルションフローテクノロジーズ及び産業技術総合研究所の協力を得ながら実施し、その見通しが立った時点でパイロット試験機を導入、2年程度の試験操業を行い、実用に値する成果が得られた時点で、実操業のための装置を導入する。本事業終了後のニッキ株式会社における実用化計画を図4.1に示す。

	2022年度	2023年度	2024年度	2025年度	2026年度
エマルションフロー装置改良 (協力：(株)エマルションフローテクノロジーズ)			装置改良完了▲		
分離プロセスの高度化 (協力：産総研)			導入試薬及び分離条件の決定▲	▲パイロット試験機による試験	

図 4.1 本事業終了後の実用化計画 C1

以下に、実用化に向けた課題と解決法を述べる。

【課題 1】回収率の向上

本事業においてセリウム純度に関しては実用レベルまで向上させることができたが、実操業を考慮すると、1フローでのセリウム回収率を向上させる必要がある。

【解決法】本事業で得られた知見を基に、エマルションフロー装置の多段化、分離条件の最適化等を行う(想定実施者：本プロジェクト参画機関)

【課題 2】実工程液に対する操作性の向上

本事業では、標準溶液によるラボ試験においてセリウム高純度化を達成したが、実工程液でも同程度の高純度化を行うことが必要である。

【解決法】本事業内で実工程液を使用した際の問題点及び解決のための付属装置等を導入しており、これらを用いて分離条件の最適化等を行う（想定実施者：本プロジェクト参画機関）

(2) C2 低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証

本プロジェクトにおいて開発した低品位セリア原料を利用した三元触媒について、高品位セリア原料を利用した触媒と同等性能を有することを、実車を用いた触媒性能試験により実証できた。三元触媒は過酷な条件で長期間（10年以上）使用されるため市場に出荷するためには、高い信頼性と安定性が求められる。したがって、自動車を使用した実機での耐久評価が不可欠であり、2023年度に耐久性に対する課題を克服する。2024年度には、触媒メーカーとの協力体制を構築した上で、触媒材料を少量生産し、試作したハニカム触媒部材を自動車メーカー等にサンプル出荷する。市場での評価を元に販売の継続の可否を判断し、市場での評価が高いようであれば触媒メーカーが主体となって、2025年度下期を目処に触媒材料と触媒部材（ハニカム）の量産化を目指す。

	2022年度	2023年度	2024年度	2025年度	2026年度
耐熱性の向上	触媒の改良	→			
ハニカム部材の耐熱性確認		実機評価	→		
サンプル出荷			→	市場での評価で判断	
量産化					→

図 4.2 本事業終了後の実用化計画 C2

4.2 成果の実用化の見通し(テーマ C)

(1) C1 低品位レアアースの高品位化に資する改質技術の開発

高純度セリア (CeO_2) を原料として使用する CMP 材は、半導体のウエハ、電子ディスプレイ用ガラス基板、眼鏡レンズ等の研磨に用いられているが、スマートフォン、タブレット PC、ノート PC 等に代表される電子機器の、さらなる小型化・高性能化へ向けた半導体デバイスの微細化・多層化に伴い、半導体製造に必要な CMP 材に要求される特性も多様化しており、その必要性は今後増加すると予想される。また、最近の国際状況からも、サプライチェーンの多様化は必須であり、国内精錬を可能にすることで様々な地域のレアアース原料を使用可能にすることが重要になっている。よって、低純度原料からの高純度化は実用性の高い技術開発である。

本事業では、CMP 材の原料となるセリウム塩類の販売において国内を代表する企業であるニッキ株式会社と、エマルションフロー装置の研究開発を行うほぼ唯一の企業である株式会社エマルションフローテクノロジーズが関与していることから、前記の課題の解決を行うことで、早期の実用化が期待できる。

(2) C2 低品位レアアースの触媒等材料への代替利用技術の開発実証

自動車産業は日本の主要産業であり、今後自動車の電動化が進んでもハイブリッド車が中心となり、2050 年においても内燃機関であるエンジン搭載車の販売台数の多数を占めると予想されている。したがって、自動車排ガス浄化触媒(三元触媒)の需要も減らず、新興国の経済発展にともない自動車販売台数が増加するため、三元触媒の世界的な市場規模は今後も拡大すると考えられる。一方、直近のコロナ禍などで三元触媒に必須な酸化セリウムの原料が輸入停止となる等の現実的な供給不安があり、供給停止は自動車産業におけるサプライチェーンに大きく影響する。輸入国の選択肢を増やすことが問題解決の手段の一つであるが、主要輸入国以外ではセリウム原料の純度低いため精製にコストが掛かる等が問題となっている。低品位のセリウム原料を未精製のまま、三元触媒の助触媒であるセリア系材料に適用できれば、サプライチェーン強化できる、低品位セリウム原料使用による性能低下等が予想されるが、触媒調製技術を活用することにより、現行実用触媒と同等性能の三元触媒を開発できる可能性が高く、早期の実用化が期待できる。