

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開2024-20067
(P2024-20067A)

(43)公開日

令和6年2月14日(2024. 2. 14)

(51)Int. Cl.	F I	テーマコード(参考)
H 0 1 F 41/02 (2006. 01)	H 0 1 F 41/02 G	4 K 0 0 1
H 0 1 F 1/057 (2006. 01)	H 0 1 F 1/057 1 7 0	5 E 0 4 0
C 2 2 B 59/00 (2006. 01)	C 2 2 B 59/00	5 E 0 6 2
C 2 2 B 7/00 (2006. 01)	C 2 2 B 7/00 H	
C 2 2 B 1/00 (2006. 01)	C 2 2 B 1/00 6 0 1	

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 11 頁)

(21)出願番号 特願2022-122954(P2022-122954)

(22)出願日 令和4年8月1日(2022. 8. 1)

(71)出願人 000005083

株式会社プロテリアル
東京都江東区豊洲五丁目6番36号

(72)発明者 村田 剛志

東京都江東区豊洲五丁目6番36号 日立
金属株式会社内Fターム(参考) 4K001 AA39 BA22 CA09 CA17 DA05
DB21 GA16 GA17 GA19
5E040 AA04 BD01 CA01 HB17 NN17
5E062 CD04 CG01 CG02 CG03

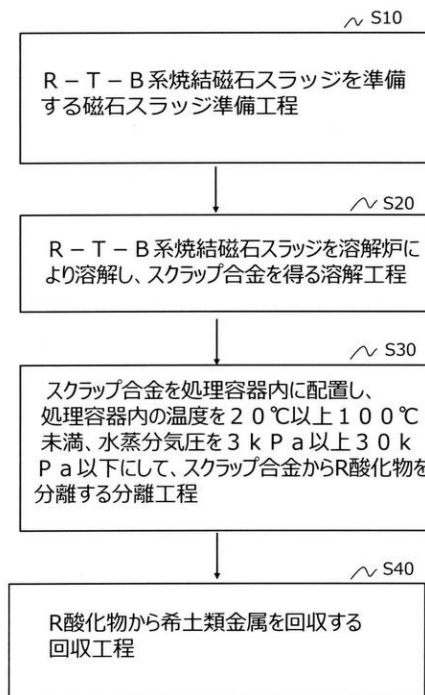
(54)【発明の名称】 R-T-B系焼結磁石スラッジのリサイクル方法およびそれを用いたR-T-B系焼結磁石の製造方法

(57)【要約】

【課題】溶解炉を用いた簡便なR-T-B系焼結磁石スラッジのリサイクル方法およびそれを用いたR-T-B系焼結磁石の製造方法の提供。

【解決手段】本開示のR-T-B系焼結磁石スラッジのリサイクル方法は、R-T-B系焼結磁石スラッジ(Rは希土類元素であり、Nd、PrおよびCeからなる群から選択された少なくとも1つを必ず含み、Tは遷移金属元素のうち少なくとも1種であり、Feを必ず含む)を準備する磁石スラッジ準備工程と、前記R-T-B系焼結磁石スラッジを溶解炉により溶解した溶湯を冷却し、スクラップ合金を得る溶解工程と、前記スクラップ合金を処理容器内に配置し、前記処理容器内の温度を20℃以上300℃以下、水蒸気分圧を3kPa以上500kPa以下にして、前記スクラップ合金からR酸化物を分離する分離工程と、前記R酸化物から希土類金属を回収する回収工程と、を含む。

【選択図】図1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

R - T - B系焼結磁石スラッジ（Rは希土類元素であり、Nd、PrおよびCeからなる群から選択された少なくとも1つを必ず含み、Tは遷移金属元素のうち少なくとも1種であり、Feを必ず含む）を準備する磁石スラッジ準備工程と、

前記R - T - B系焼結磁石スラッジを溶解炉により溶解した溶湯を冷却し、スクラップ合金を得る溶解工程と、

前記スクラップ合金を処理容器内に配置し、前記処理容器内の温度を20以上300以下、水蒸気分圧を3kPa以上500kPa以下にして、前記スクラップ合金からR酸化物を分離する分離工程と、

前記R酸化物から希土類金属を回収する回収工程と、
を含む、R - T - B系焼結磁石スラッジのリサイクル方法。

10

【請求項 2】

前記水蒸気分圧は3kPa以上200kPa以下である、請求項1に記載のR - T - B系焼結磁石スラッジのリサイクル方法。

【請求項 3】

前記溶解炉はアーク溶解炉である、請求項1または2に記載のR - T - B系焼結磁石スラッジのリサイクル方法。

【請求項 4】

前記分離工程における前記処理容器内の温度は、30以上80以下である、請求項1または2に記載のR - T - B系焼結磁石スラッジのリサイクル方法。

20

【請求項 5】

前記水蒸気分圧は3kPa以上20kPa以下である、請求項1または2に記載のR - T - B系焼結磁石スラッジのリサイクル方法。

【請求項 6】

請求項1または2に記載のR - T - B系焼結磁石スラッジのリサイクル方法により得られた希土類金属を含むR - T - B系磁石用合金を粉碎してR - T - B系磁石用合金粉末を準備する工程と、

前記R - T - B系磁石用合金粉末から焼結体を作製する工程と、
を含む、R - T - B系焼結磁石の製造方法。

30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明はR - T - B系焼結磁石スラッジのリサイクル方法およびそれを用いたR - T - B系焼結磁石の製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

R - T - B系焼結磁石（Rは希土類元素であり、Nd、PrおよびCeからなる群から選択される少なくとも1つを必ず含み、Tは遷移金属元素のうち少なくとも1種であり、Feを必ず含む、必ずFeを含む、Bはホウ素である）は、 $R_2Fe_{14}B$ 型結晶構造を有する化合物の主相と、この主相の粒界部分に位置する粒界相および微量添加元素や不純物の影響により生成する化合物相とから構成されている。R - T - B系焼結磁石は、例えば、R - T - B系合金粉末を準備する工程、前記R - T - B系合金粉末を成形することによって成形体を作製する工程、前記成形体を焼結する工程を経て製造される。このようなR - T - B系焼結磁石は、高い残留磁束密度 B_r （以下、単に「 B_r 」と記載する場合がある）と、高い保磁力 H_c （以下、単に「 H_c 」と記載する場合がある）を示し、永久磁石の中で最も高性能な磁石として知られている。

40

【0003】

このため、R - T - B系焼結磁石は、電気自動車（EV、HV、PHV）等の自動車分野、風力発電等の再生可能エネルギー分野、家電分野、産業分野等のさまざまなモーター

50

に使用されている。R - T - B系焼結磁石は、これらモーターの小型・軽量化、高効率・省エネルギー化（エネルギー効率の改善）に欠かせない材料である。また、R - T - B系焼結磁石は、電気自動車用の駆動モーターに使用されており、内燃機関エンジン自動車から電気自動車へ代替されることで、二酸化炭素等の温室効果ガスの削減（燃料・排ガスの削減）による地球温暖化防止にも寄与している。このように、R - T - B系焼結磁石は、クリーンエネルギー社会の実現に大きく貢献している。

【0004】

R - T - B系焼結磁石は、特に電気自動車用モーター向けなどで需要が今後大きく拡大することが予想されている。そのため、R - T - B系焼結磁石に使用されている貴重な希土類元素をリサイクル（再利用）することが求められている。例えば、R - T - B系焼結磁石の製造工程中（例えば加工工程）で発生したR - T - B系焼結磁石スラッジ（R - T - B系焼結磁石を切削加工した時などに生じるR - T - B系焼結磁石の切削粉）をリサイクルすることが考えられる。

10

【0005】

リサイクル方法として、例えば、前記R - T - B系焼結磁石スラッジに対して、酸を用いて溶解した後、化学的処理により希土類をフッ化物または酸化物として回収し、Ca還元や熔融塩電解で希土類金属を得る湿式処理によるリサイクル方法がある。湿式処理によるリサイクル方法は、高価な希土類金属を効率的に回収できるが、湿式処理を行う前に多量の酸を使用することや廃酸の処理が困難という問題がある。さらにR - T - B系焼結磁石スラッジは希土類金属以外にも多くの遷移金属元素やその他不純物を多く含有しているため、湿式処理におけるリサイクル工程が複雑になるといった問題がある。

20

また、R - T - B系焼結磁石のリサイクル方法として、高周波溶解、アーク溶解、プラズマ溶解等で溶解して磁石合金を得る方法がある。

特許文献1には、希土類金属を含有する合金スクラップをアーク溶解炉等の溶解炉の加熱部に投入しながら溶解し、下部から凝固した合金を徐々に引き下げて合金を回収するリサイクル方法が提案されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0006】

【特許文献1】特開平11-241127号公報

30

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

特許文献1に記載の方法は、凝固した合金を徐々に引き下げる必要があるため、製造や管理が複雑になり、コストの増大を招く。また、R - T - B系焼結磁石スラッジをリサイクルする方法についての具体的な記載はない。

そこで、本開示の実施形態は、溶解炉を用いた簡便なR - T - B系焼結磁石スラッジのリサイクル方法およびそれを用いたR - T - B系焼結磁石の製造方法を提供する。

【課題を解決するための手段】

【0008】

40

本開示のR - T - B系焼結磁石スラッジのリサイクル方法は、例示的な実施形態において、R - T - B系焼結磁石スラッジ（Rは希土類元素であり、Nd、PrおよびCeからなる群から選択された少なくとも1つを必ず含み、Tは遷移金属元素のうち少なくとも1種であり、Feを必ず含む）を準備する磁石スラッジ準備工程と、前記R - T - B系焼結磁石スラッジを溶解炉により溶解した溶湯を冷却し、スクラップ合金を得る溶解工程と、前記スクラップ合金を処理容器内に配置し、前記処理容器内の温度を20以上300以下、水蒸気分圧を3kPa以上500kPa以下にして、前記スクラップ合金からR酸化物を分離する分離工程と、前記R酸化物から希土類金属を回収する回収工程と、を含む。

【0009】

50

ある実施形態において、前記水蒸気分圧は3 k P a以上200 k P a以下である。

【0010】

ある実施形態において、前記溶解炉はアーク溶解炉である。

【0011】

ある実施形態において、前記分離工程における処理容器内の温度は、30以上80以下である。

【0012】

ある実施形態において、前記水蒸気分圧は3 k P a以上20 k P a以下である。

【0013】

本開示のR - T - B系焼結磁石の製造方法は例示的な実施形態において、上述のR - T - B系焼結磁石スラッジのリサイクル方法により得られた希土類金属を含むR - T - B系磁石用合金を粉碎してR - T - B系磁石用合金粉末を準備する工程と、前記R - T - B系磁石用合金粉末から焼結体を作製する工程と、を含む。

10

【発明の効果】

【0014】

本開示の実施形態によれば、溶解炉を用いた簡便なR - T - B系焼結磁石スラッジのリサイクル方法およびそれを用いたR - T - B系焼結磁石の製造方法を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0015】

【図1】図1は本開示の実施形態におけるR - T - B系焼結磁石スラッジのリサイクル方法の工程例を示すフローチャートである。

20

【図2】図2は、スクラップ合金10の例を示す説明図である。

【図3】図3は、分離工程によりFeを主成分とする合金に付着していたR酸化物を分離させた状態の例を示す説明図である。

【図4】図4は、Feを主成分とする合金に付着していたR酸化物が分離されていることを示す写真である。

【発明を実施するための形態】

【0016】

本発明者は検討の結果、R - T - B系焼結磁石スラッジを溶解炉により溶解し、得られた溶湯を冷却して得られたスクラップ合金に対して、特定の条件で分離工程を行うことにより、スクラップ合金からR酸化物を分離することができることを見出した。本開示の方法は、溶解時に複雑な製造や管理を行う必要がなく、さらに分離工程においても複雑な製造や管理を行う必要がない。さらにR酸化物として分離しているため湿式処理を行う前の酸を用いた溶解は不要である。さらに、スクラップ合金から分離したR酸化物を使用するため、R - T - B系焼結磁石スラッジを湿式処理する場合と比べて不純物量が抑えられる。そのため、R酸化物に公知の湿式処理を行うことで希土類金属を効率的に回収することができる。

30

【0017】

本開示におけるR - T - B系焼結磁石スラッジとは、R - T - B系焼結磁石の製造工程中に発生したスラッジ（例えば、R - T - B系焼結磁石を切削加工した時などに発生するR - T - B系焼結磁石の切削粉）のことを言う。前記スラッジを溶解炉に投入するための前処理として、スラッジを乾燥させたり、焼結させたりしてもよい。また、スラッジに対して成形および焼結を行うことでスラッジの焼結体を準備してもよい。これらの前記前処理を行ったスラッジおよび前記スラッジの焼結体も本開示のR - T - B系焼結磁石スラッジに含む。

40

また、本開示におけるR酸化物とは、希土類元素と酸素の化合物であり、 R_2O_3 やROなどがありうる。また、希土類元素と遷移金属元素の複合酸化物（ RTO_3 、 RT_2O_4 など）もありうる。一部に遷移金属の酸化物（ T_2O_3 、 T_3O_4 など）を含有してもよい。

50

また、これらの中にC、N、B、Fなどの軽元素が含まれることもある。

【0018】

以下、本開示によるR-T-B系焼結磁石スラッジのリサイクル方法の実施形態を説明する。図1は本開示の実施形態におけるR-T-B系焼結磁石スラッジのリサイクル方法の工程例を示すフローチャートである。図1のフローチャートに示すように、

- ・R-T-B系焼結磁石スラッジを準備する磁石スラッジ準備工程(S10)と、
 - ・R-T-B系焼結磁石スラッジを溶解炉により溶解した溶湯を冷却し、スクラップ合金を得る溶解工程と(S20)と、
 - ・スクラップ合金を処理容器内に配置し、前記処理容器内の温度を20以上300以下、水蒸気分圧を3kPa以上500kPa以下にして、スクラップ合金からR酸化物を分離する分離工程(S30)と、
 - ・R酸化物から希土類金属を回収する回収工程(S40)と、
- を含む。

10

以下、これらの各工程をより詳細に説明する。

【0019】

各工程の説明の前に、まず本開示のR-T-B系焼結磁石の組成について説明する。

本開示のR-T-B系焼結磁石は、例えば以下の組成を有する。

- R: 26.5 mass %以上35 mass %以下、
- B: 0.80 mass %以上1.20 mass %以下、
- Ga: 1.0 mass %以下(0 mass %を含む)、
- Cu: 0.5 mass %以下(0 mass %を含む)、
- T: 60 mass %以上を含有する。

20

【0020】

(R: 26.5 ~ 35 mass %)

Rは希土類元素であり、Nd、PrおよびCeからなる群から選択された少なくとも1つを必ず含む。Rが26.5 mass %未満では焼結過程で液相が十分に生成せず、焼結体を十分に緻密化することが困難になる可能性がある。一方、Rが35 mass %を超えると焼結時に粒成長が起こり、 H_{cJ} が低下する可能性がある。Rの含有量は、好ましくは29.5 ~ 33.0 mass %である。Rがこのような範囲であれば、より高い B_r を得ることができる。

30

【0021】

(B: 0.80 ~ 1.20 mass %)

Bが0.80 mass %未満であると、 H_{cJ} が低下する可能性がある。一方、Bが1.20 mass %を超えると H_{cJ} が低下する可能性がある。Bの含有量は、好ましくは0.88 ~ 0.90 mass %である。Bがこのような範囲であれば、より高い H_{cJ} が得られる。

【0022】

(Ga: 0 ~ 1.0 mass %)

Gaの含有量は、0 ~ 1.0 mass %が好ましく、より好ましくは、0.2 ~ 0.7 mass %である。Gaがこのような範囲であれば、より高い H_{cJ} が得られる。

40

【0023】

(Cu: 0 ~ 0.5 mass %)

Cuの含有量は、0 ~ 0.50 mass %が好ましく、より好ましくは0.05 ~ 0.30 mass %である。Cuがこのような範囲であれば、より高い H_{cJ} が得られる。

【0024】

(T: 60 mass %以上)

Tは遷移金属元素のうち少なくとも1種であり、Feを必ず含む。

焼結磁石中のTの含有量が60 mass %未満であると、磁気特性が大幅に低下する可能性がある。Tの含有量は61.5 ~ 69.5 mass %が好ましい。また、Tの全量を100 mass %としたとき、その10 mass %以下をCoで置換できる。例えば、T

50

の全量の85~95mass%がFeであり、15~5mass%がCoであり得る。また、Tの全量(100mass%)をFeにしてもよい。Coを含有することにより耐食性を向上させることができるが、Coの置換量がFeの10mass%を超えると、高い B_r が得られない可能性がある。

本発明の焼結磁石は、任意のその他の元素を更に含んでよい。

【0025】

次にR-T-B系焼結磁石の製造方法の例について説明する。

【0026】

まず、R-T-B系焼結磁石用合金を準備した後、この合金を例えば水素粉砕法などによって粗く粉砕する。

【0027】

上述した組成となるように事前に調整した金属または合金を溶解し、鋳型に入れて凝固させるインゴット鋳造法により合金インゴットを得ることができる。また、上述した組成となるように事前に調整した金属または合金の溶湯を単ロール、双ロール、回転ディスク、または回転円筒鋳型等に接触させて急冷し、急冷凝固合金を作製するストリップキャスト法によって合金を作製してもよい。また、遠心鋳造法など、他の急冷法によってフレーク状の合金を製造してもよい。

【0028】

本開示の実施形態においては、インゴット法と急冷法のどちらの方法により製造された合金も使用することが可能であるが、ストリップキャスト法などの急冷法により製造された合金を用いることが好ましい。急冷法によって作製した合金の厚さは、通常0.03mm~1mmの範囲にあり、フレーク形状である。得られた合金を水素粉砕することで、水素粉砕粉(粗粉砕粉)のサイズを例えば1.0mm以下とすることができる。このようにして得た粗粉砕粉を、例えばジェットミルにより粉砕する。

【0029】

ジェットミル粉砕は、窒素等の不活性雰囲気中で粉砕を行う。粉砕は、例えば加湿雰囲気中のジェットミルで粉砕を行ってもよい。

【0030】

R-T-B系焼結磁石の作製に用いる微粉末は、前記の各条件を満たしていれば、一種類の原料合金(単一原料合金)から作製してもよいし、二種類以上の原料合金を用いてそれらを混合する方法(ブレンド法)によって作製してもよい。

【0031】

好ましい実施形態では、プレスによって上記の微粉末から粉末成形体を作製した後、この粉末成形体を焼結する。プレスでは酸化抑制の観点から不活性ガス雰囲気中によるプレスまたは湿式プレスによって粉末成形体を形成する方が好ましい。特に湿式プレスは粉末成形体を構成する粒子の表面が油剤などの分散媒によって被覆され、大気中の酸素や水蒸気との接触が抑制される。このため、プレス工程の前後あるいはプレス工程中に粒子が大気によって酸化されることを防止または抑制することができる。このため、酸素含有量を所定範囲内に制御しやすい。磁場中湿式プレスを行う場合、微粉末に分散媒を混ぜたスラリーを用意し、湿式プレス装置の金型におけるキャビティに供給してプレス成形する。

【0032】

次に、成形体を焼結してR-T-B系焼結磁石素材を得る。成形体の焼結は、好ましくは、 0.13 Pa (10^{-3} Torr)以下、より好ましくは 0.07 Pa ($5.0 \times 10^{-4}\text{ Torr}$)以下の圧力下で、温度 1000 以上 1150 以下の範囲で行なう。焼結による酸化を防止するために、雰囲気中の残留ガスは、ヘリウム、アルゴンなどの不活性ガスにより置換され得る。得られた、焼結体(R-T-B系焼結磁石)に対しては、熱処理を行ってもよい。熱処理温度、熱処理時間などの熱処理条件は、公知の条件を採用することができる。なお、R-T-B系焼結磁石は上述した成形などを行わず、例えば特開2006-19521などに記載されているPLP(Press-Less Process)法など、公知の方法を用いて準備してもよい。

10

20

30

40

50

【 0 0 3 3 】

(R - T - B系焼結磁石スラッジを準備する磁石スラッジ準備工程)

上述した R - T - B系焼結磁石の製造工程中に発生した R - T - B系焼結磁石スラッジを準備する。R - T - B系焼結磁石スラッジは典型的には加工スラッジ (R T B系焼結磁石の加工工程中に発生した切削粉) である。上述したように R - T - B系焼結磁石スラッジを乾燥させたり、焼結させたりして準備してもよく、成形および焼結を行うことでスラッジの焼結体を準備してもよい。スラッジの焼結体を準備することにより比較的多くのスラッジを効率よく溶解炉に投入することができる。成形は上述した R - T - B系焼結磁石の製造方法にて使用するものと同じプレス機を使用してもよいし、他の公知の成形機を用いても良い。スラッジがバルク (かたまり) として形成されていればよく、成形圧力等も任意である。得られた成形体を焼結することによりスラッジの焼結体を準備できる。焼結温度は、例えば 8 5 0 ~ 1 2 0 0 である。

10

【 0 0 3 4 】

(R - T - B系焼結磁石スラッジを溶解炉により溶解し、スクラップ合金を得る溶解工程)

準備した R - T - B系焼結磁石スラッジを溶解炉により溶解する。溶解した溶湯を冷却して得られたスクラップ合金を後述する分離工程により前記スクラップ合金から R 酸化物を分離させる。

【 0 0 3 5 】

図 2 は、R - T - B系焼結磁石スラッジを溶解炉により溶解し、溶解した溶湯を冷却して得られたスクラップ合金 1 0 の例を示す説明図である。R - T - B系焼結磁石スラッジは、溶解することで Fe を主成分とする合金の液相と R 酸化物に分かれる。そして凝固して得られた合金を 2 0 0 以下に冷却することにより図 2 に示すような Fe を主成分とする合金 1 と R 酸化物 2 を含むスクラップ合金 1 0 が得られる。スクラップ合金 1 0 の大きさは例えば、直径 1 ~ 2 0 mm 程度の球状である。図 2 に示すように、スクラップ合金 1 0 は、Fe を主成分とする合金 1 と R 酸化物 2 とに分かれているものの、互いに接触 (付着) している。典型的には、スクラップ合金 1 0 は、Fe を主成分とする合金 1 の表面が R 酸化物 2 に覆われた状態である。このように、スクラップ合金 1 0 は、Fe を主成分とする合金 1 に R 酸化物 2 が付着している。

20

【 0 0 3 6 】

R - T - B系焼結磁石スラッジを溶解する方法は、特許文献 1 などに記載の公知の方法を用いることができる。溶解する加熱温度は、例えば 1 0 0 0 以上 2 5 0 0 以下の範囲で設定する。好ましくは、R - T - B系焼結磁石スラッジを R - T - B系焼結磁石スラッジに含まれる R 酸化物の融点以上の温度に加熱して溶解する。R 酸化物の融点以上に加熱し溶解することで、より確実に Fe を主成分とする合金の液相と R 酸化物の液相に分かれる。R - T - B系焼結磁石スラッジに含まれる R 酸化物の融点以上の温度は、R - T - B系焼結磁石スラッジの酸素量や組成などによるが、例えば 1 8 0 0 以上 2 5 0 0 以下である。

30

【 0 0 3 7 】

R - T - B系焼結磁石スラッジは、上述した温度で加熱できる炉であれば特に問わないが、例えば高周波溶解炉、アーク溶解炉、プラズマ溶解炉などにより溶解すればよい。好ましくは、アーク溶解炉である。より確実に R - T - B系焼結磁石スラッジを R - T - B系焼結磁石スラッジに含まれる R 酸化物の融点以上の温度に加熱できる。溶湯を冷却する方法は特に問わない。大気中に放置することで自然冷却してもよい。例えば、凝固して得られた合金を 2 0 0 以下に冷却溶湯を 2 0 0 以下まで冷却すればよい。

40

【 0 0 3 8 】

(スクラップ合金を処理容器内に配置し、前記処理容器内の温度を 2 0 以上 3 0 0 以下、水蒸気分圧を 3 k P a 以上 5 0 0 k P a 以下にして、スクラップ合金から R 酸化物を分離する分離工程)

得られたスクラップ合金を処理容器内に配置して処理容器内の温度を 2 0 以上 3 0 0

50

以下、水蒸気分圧を3 k P a以上5 0 0 k P a以下にすることにある。これにより、スクラップ合金におけるR酸化物とF eを主成分とする合金とを分離することができる。すなわち、スクラップ合金からR酸化物を分離する。

【0039】

図3は、分離工程によりF eを主成分とする合金1からR酸化物2を分離させた状態の例を示す説明図である。図3に示すように、F eを主成分とする合金1に付着していたR酸化物2がF eを主成分とする合金1から剥がれ落ちてF eを主成分とする合金1の周辺にR酸化物2'のように粉末として落ちている。本開示の分離工程を行うことにより、F eを主成分とする合金1に付着していたR酸化物2がF eを主成分とする合金から分離される。すなわち、R酸化物2がF eを主成分とする合金1に接触していない(付着していない)状態となる。本発明者の検討によると、F eを主成分とする合金に付着したR酸化物は強固に付着しており、ハンマー等を使用しても分離は困難であった。また、F eを主成分とする合金に付着したR酸化物を無理に分離しようとするF eを主成分とする合金も一緒に割れてしまうため分離が困難であった。また、溶解の段階で分離しようとする特許文献1に記載の方法のようにすると製造や管理が複雑になる。本開示の方法により、ハンマー等を用いたり、複雑な製造や管理を行ったりしなくても、簡便にF eを主成分とする合金に付着していたR酸化物を分離することができる。

10

【0040】

なお、水蒸気分圧は、設定温度における飽和蒸気圧と、相対湿度の積により算出することができる。相対湿度の測定は、例えば乾球温度計と湿球温度計の測定値より各温度の相対湿度を算出する方法を使用できる。このように処理容器内の温度と水蒸気分圧を管理するだけで簡便にF eを主成分とする合金に付着していたR酸化物を分離することができる。処理容器内の温度が20 以上300 以下、水蒸気分圧を3 k P a以上5 0 0 k P a以下から外れると、R酸化物が分離できなくなったり、製造や管理が複雑になったりする可能性がある。好ましくは、分離工程における処理容器内の温度は、30 以上80 以下である。また、好ましくは分離工程における処理容器内の水蒸気分圧は3 k P a以上2 0 0 k P a以下であり、さらに好ましくは3 k P a以上2 0 k P a以下である。より簡便にF eを主成分とする合金に付着していたR酸化物を分離することができる。なお、温度が20 以上100 以下の範囲にある時は、水蒸気分圧は3 k P a以上1 0 0 k P a以下が好ましい。また、相対湿度は20 %以上が好ましい。さらに好ましくは20 % ~ 90 %以下が好ましい。

20

30

【0041】

処理容器内の温度を20 以上300 以下、水蒸気分圧を3 k P a以上5 0 0 k P a以下にする保持時間は、スクラップ合金の組成や大きさ等によって異なるものの、1時間以上60時間以下であり、好ましくは、5時間以上40時間以下であり、さらに好ましくは、10時間以上30時間以下である。

【0042】

(R酸化物から希土類金属を回収する回収工程)

得られたR酸化物に対して湿式処理を行うことで希土類金属を回収する。湿式処理は公知の方法を適用することができ、例えば、R酸化物に対してC a還元や熔融塩電解を行うことで希土類金属を回収することができる。例えば、特開平2 - 1 4 6 0号公報に記載の方法を適用してもよい。本開示の方法は、スクラップ合金から分離したR酸化物のみ使用するため、R - T - B系焼結磁石スラッジを湿式処理する場合と比べて不純物量が抑えられている。そのため、湿式処理により効率よく希土類元素を回収することができる。

40

【0043】

(本開示のR - T - B系焼結磁石スラッジのリサイクル方法により得られた希土類金属を含むR - T - B系磁石用合金を用いたR - T - B系焼結磁石の製造方法)

本開示のリサイクル方法により得られた希土類金属を含むR - T - B系磁石用合金を用いたR - T - B系磁石の製造方法について説明する。

【0044】

50

まず、本開示のリサイクル方法により得られた希土類金属を含む R - T - B 系磁石用合金を粉砕して R - T - B 系磁石用合金粉末を準備する。前記 R - T - B 系磁石用合金における希土類金属は、本開示のリサイクル方法により得られた希土類金属を溶解することで作製しても良いし、その他のリサイクル方法やリサイクル品でない希土類金属とともに本開示のリサイクル方法により得られた希土類金属を溶解して R - T - B 系磁石用合金を作製しても良い。そして、R - T - B 系磁石用合金を水素粉砕およびジェットミルなどにより粉砕することで R - T - B 系磁石用合金粉末を準備する。次に、得られた R - T - B 系磁石用合金粉末から焼結体を作製することで R - T - B 系焼結磁石を得る。焼結体の作製方法は、上述した R - T - B 系焼結磁石の準備方法と同様のため説明を省略する。このようにして R - T - B 系焼結磁石を得ることにより、R - T - B 系焼結磁石に使用されている貴重な希土類元素をリサイクルして新たな R - T - B 系焼結磁石を製造することが可能となる。

10

【実施例】**【0045】**

実施例によりさらに詳細に説明するが、本開示はそれらに限定されるものではない。

【0046】**実験例 1**

加工工程で発生したスラッジを成形、焼結し、Nd : 22.4 mass %、Pr : 7.5 mass %、Tb : 1.6 mass %、B : 0.81 mass %、Cu : 0.3 mass %、Ga : 0.4 mass %、Co : 1.7 mass %、Al : 0.35 mass %、O : 4.6 mass %、C : 1.5 mass %、残部 Fe の組成を有する R - T - B 系焼結磁石スラッジを準備した。前記 R - T - B 系焼結磁石スラッジをアーク溶解炉にて溶解した溶湯を 200 以下まで冷却し、2.5 g のスクラップ合金を得た。目標の加熱温度を 2000 に設定した。溶解中の温度は直接測定することができないが、溶解中に R 酸化物が溶融している様子が目視で観察されたことから、R 酸化物の融点以上に加熱されていることを確認した。溶解した溶湯を冷却して得られたスクラップ合金は、Fe を主成分とする合金と R 酸化物とが分かれているものの、互いに接触（付着）していることを断面観察により確認した。この R 酸化物を Fe を主成分とする合金から分離後、粉末 X 線回折測定により結晶構造を調べたところ、 R_2O_3 で示される R 酸化物であった。スクラップ合金中の酸素が全て R_2O_3 酸化物になった場合、その質量比は約 32 % となり、残部 (68 %) が Fe を主成分とする合金となる。

20

30

【0047】

次に、得られたスクラップ合金を処理容器内に配置し、表 1 に示す条件で分離工程を行った。なお、保持時間は 3 ~ 24 時間であった。処理後のスクラップ合金を確認したところ、図 3 (又は図 4 の写真) に示す様に Fe を主成分とする合金に付着していた R 酸化物が剥がれ落ちて Fe を主成分とする合金から分離されていることを確認した。R 酸化物を分離する前後での、スクラップ合金の質量減少比率をそれぞれ求めた。結果を表 1 に示す。

【0048】

【表 1】

分離工程条件				重量減少率 (%)	備考
温度 (%)	相対湿度 (%)	水蒸気分圧 (kPa)	時間 (Hr)		
25	80	2.5	24	1.11	比較例
25	90	2.8	24	15.28	比較例
30	80	3.4	24	25.31	実施例
30	90	3.8	24	25.19	実施例
40	80	5.9	24	30.92	実施例
60	50	10.0	16	30.80	実施例
95	20	17.1	24	31.75	実施例
150	75	357.0	3	31.04	実施例

【0049】

上述したように、本実験例においてはスクラップ合金中の酸素が全て R_2O_3 酸化物になった場合、その質量比は約 32% となるため、質量減少比率が含有酸素量から計算される理論値の 32% に近づくほどより分離できていることになる。表 1 に示すように、本発明例は比較例と比べて質量減少比率が大きく、分離ができている。分離できた R 酸化物に対して公知の湿式法を適用することにより希土類金属を回収することができる。

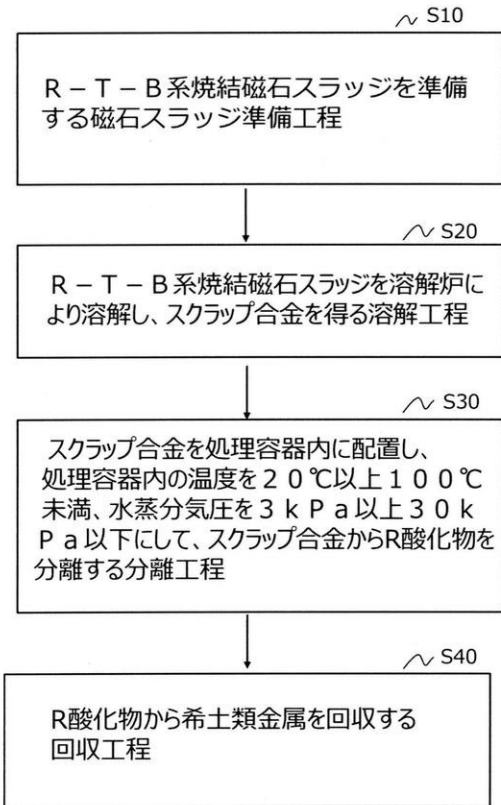
20

【符号の説明】

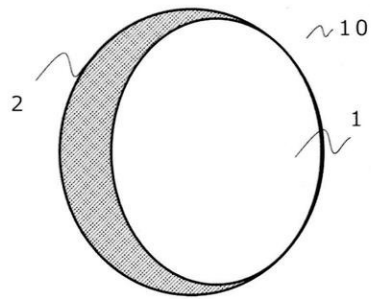
【0050】

1・・・Fe を主成分とする合金、2、2'・・・R 酸化物、10・・・スクラップ合金

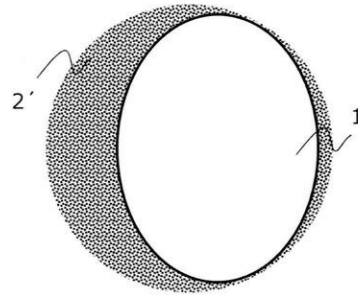
【 図 1 】



【 図 2 】



【 図 3 】



【 図 4 】

