

ネオジム磁石スクラップからのレアアースのリサイクル

東京大学 生産技術研究所 岡部 徹 白山 栄*

(*東京大学大学院 工学系研究科大学院生、現(株)IHI 航空宇宙事業本部 技術開発センター 材料技術部)

現在最も高性能な磁石であるネオジム磁石は、電気自動車(EV)のモータや発電機などの用途が急速に拡大しており、日本のハイテク産業や環境技術に欠かせない存在となっている。しかし、ネオジム磁石の原料となるネオジム(Nd)やジスプロシウム(Dy)などのレアアース(希土類元素)の生産は中国に一極化しており、2004年以降の中国政府による輸出規制強化の影響を受けて、レアアース製品の価格はDyなどの重希土類を中心に高騰している。また、最近は、レアアース資源が中国の政治カードに使われるようになり、深刻な供給障害に直面した。日本のように、ハイテク製品を生産する先進国にとっては、資源セキュリティという観点からも、新たな鉱山開発や権益の確保、さらには環境調和型の新しいリサイクル技術の開発によって、レアアースをはじめとするレアメタルを長期的かつ多角的に安定確保することが極めて重要である。

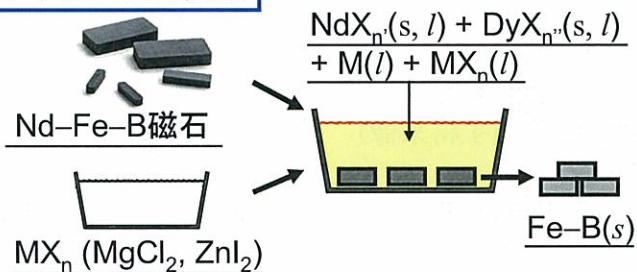
ネオジム磁石からレアアースを回収するプロセスに関する研究には様々なものがあるが、循環型社会の構築という観点からは、宇田らの塩素循環型プロセスや、竹田らの多種の廃棄物を組み合わせたプロセスなどがある^[1]。最近著者らは、塩化物やヨウ化物などのハライド塩を抽出剤として利用し、磁石合金中のレアアースを選択的に効率良く分離・回収することに成功した(図1)。

この新しいタイプのリサイクルプロセスではまず、磁石合金を溶融塩に浸漬することで、レアアースのみを選択的に塩化またはヨウ化して浸出し、合金中の鉄やホウ素を固体として分離する。得られた混合塩は、真空蒸留などにより、抽出剤とレアアース化合物を効率良く分離できる。このリサイクルプロセスでは、スクラップに鉄、アルミニウム、銅、ニッケルなどが混入していても、レアアースのみを選択的に抽出することが可能である上に、蒸気圧の差を利用したレアアースハライド塩同士の相互分離・精製も可能である。このため、複雑な形状を有する製品スクラップに対しても、気相を介してハロゲン化物を供給し、レアアースハライド塩を抽出すると同時に分離回収できるので、図2のような新しいプロセスの構築が原理的に可能である。現在行われている、水溶液を利用する湿式のリサイクルプロセスでは、重金属を含む有害な廃液が多量に発生するため、その処理が問題となっている。本手法をはじめとする水溶液を利用しない乾式プロセスは、有害な廃液が発生しないという特長があり、新しいタイプの環境調和型のリサイクルプロセスである。

産業のビタミンともいわれるレアアースの用途や需要は、今後も拡大を続け、その重要性はいつそう高まるだろう。前述の要素技術は、現時点では基礎研究の域を出ないが、革新的なリサイクルプロセスが構築された場合、図3に示すように、現在廃棄されているスクラップがレアアースの資源として再生利用できる。現状では工業製品のスクラップに含まれるレアアースは、リサイクルされずに廃棄されているが、今後は、リサイクルして分離したものについては、再利用せずに、備蓄するという新しいスキームも必要かもしれない。

今後増大が予想されるEVなどの製品スクラップから、レアアースの供給と循環利用ができる安定した資源ルートを確立し、信頼性の高い資源バッファを築き上げることは、循環資源立国を目指す日本にとって重要な課題である。資源小国である日本が、人的資源を活用し、付加価値の高いレアメタルを国内で循環生産することによって、ハイテク産業や環境技術の分野において今後も世界に貢献し続ける意義は大きいと考えられる。

レアアースの抽出



レアアースハライド塩の分離

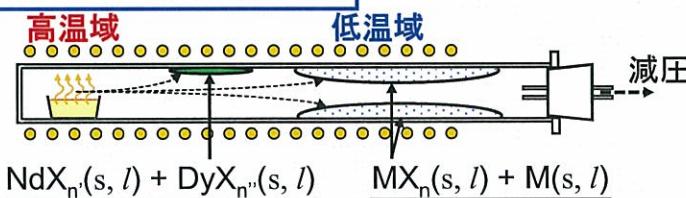


図1 ハライド塩を利用した磁石スクラップのリサイクル

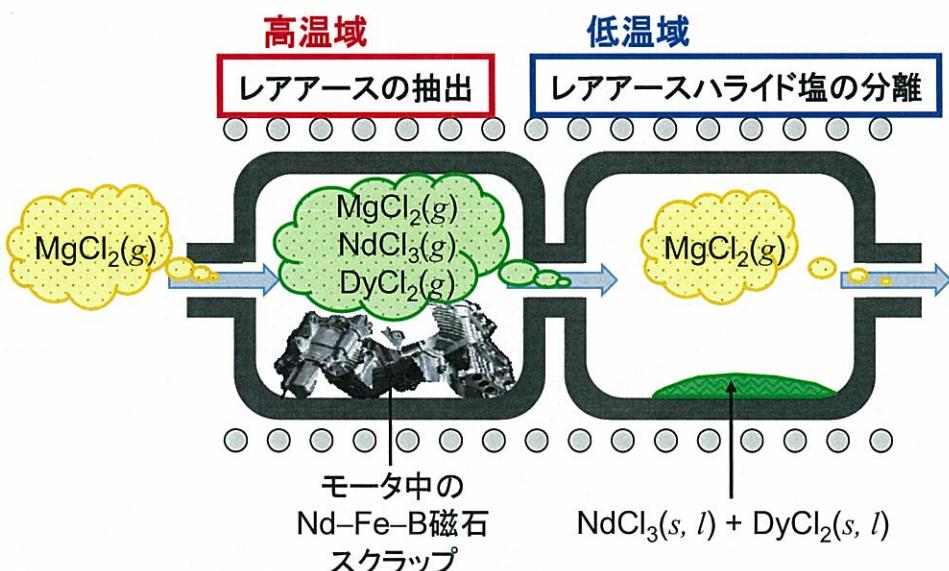


図2 気相を介した反応を利用した高効率リサイクルプロセスの提案

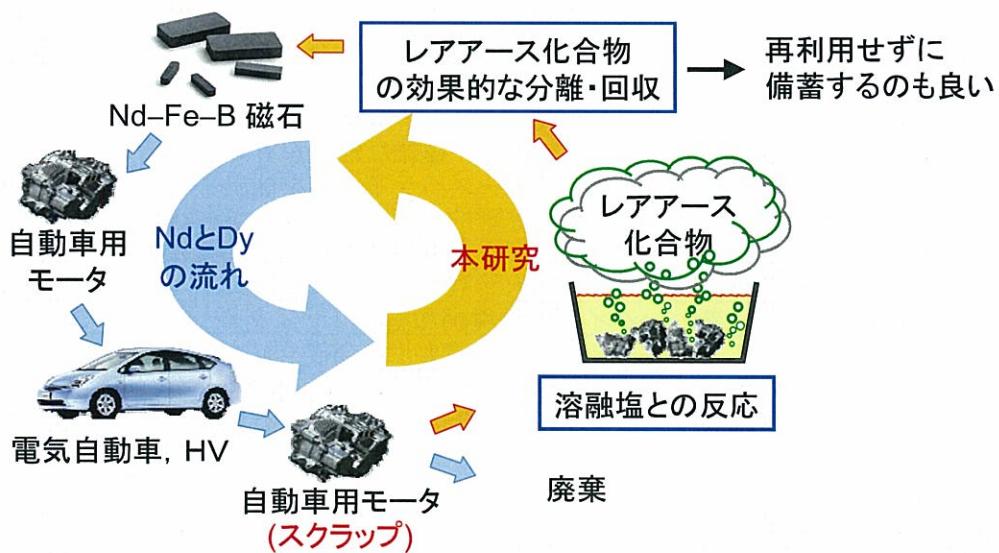


図3 製品スクラップからのレアアースのリサイクル
(現在のレアアースの流れと、研究が目指す将来像)

参考文献 :

- [1] 白山 栄, 岡部 徹: 希土類磁石の現状と乾式リサイクル技術, 溶融塩および高温化学, Vol. 52, No. 2, pp. 71-82, (2009).

★本研究の一部は、循環型社会形成推進科学研究費補助金(環境省)（環境省科学研究費）（研究代表者：岡部 徹、東京大学・教授、研究期間：平成21年度&22年度、研究課題名：磁石合金スクラップから希土類元素を抽出・分離する新技術の開発）により行われたものである。

関連特許 :

- '希土類元素の回収方法および回収装置', 発明者: Toru H. Okabe, Sakae Shirayama (岡部 徹, 白山 栄), 国際出願 PCT/JP2009/056079 (国際出願日2009年3月26日) (国際公開番号WO 2009/119720 国際公開日2009年10月1日)
- '希土類元素の回収方法', 発明者: 岡部 徹, 特願2008-080577 (平成20年3月26日出願) (上記、国際出願につき取り下げ擬制)
- '希土類元素の回収方法', 発明者: 白山 栄, 岡部 徹, 特願2009-021953 (平成21年2月2日出願) (上記、国際出願につき取り下げ擬制)

2010年10月26日(火)
記者会見用プレゼン配布資料
(抜粋)

資料②

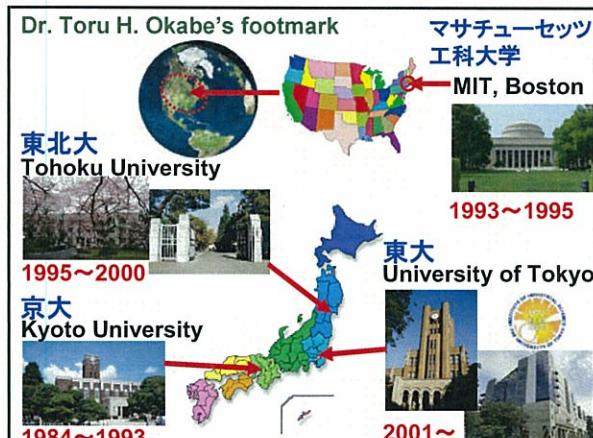
**ネオジム磁石スクラップからの
レアアースのリサイクル**

東京大学 生産技術研究所 岡部 徹 白山 栄*

(* 東京大学大学院 工学系研究科大学院生、現(株)IHI 航空宇宙事業本部 技術開発センター 材料技術部)

記者会見:
2010年10月13日(火) 10:30~
東京大学生産技術研究所 大会議室(An301)

Institute of Industrial Science



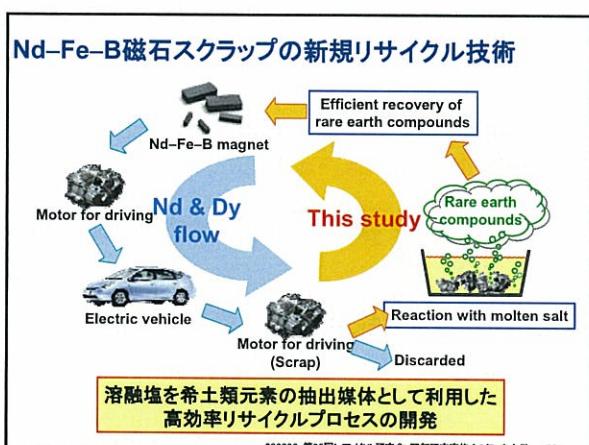
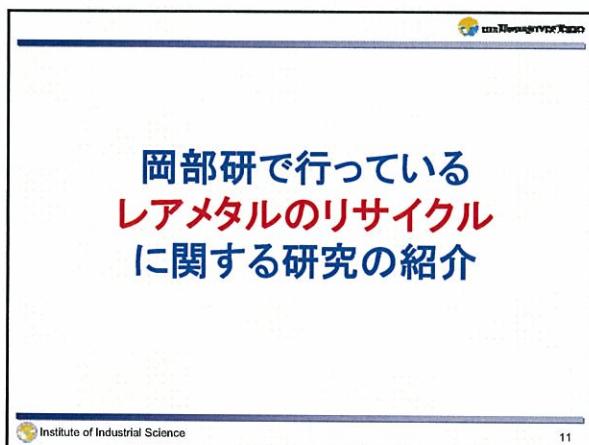
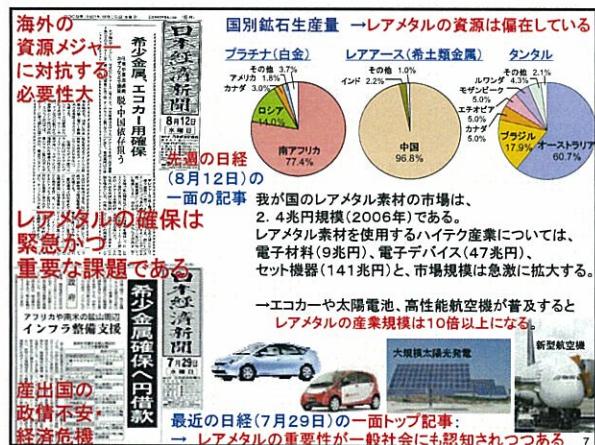
1984～1993 京大(学生)	20年以上、ひたすら レアメタルの研究を行ってきた (レアメタル オタク)。
B: Ti	
M: Ti	
D: Nb, Ta, (Ti, Y, ...)	
1993～1995 マサチューセッツ工科大学(ポストドク)	
Ta, (Al, ...)	
1995～2000 東北大(助手)	
早稲田研: Ti, Nb, Ta, REMs (La, Pr, Dy, Tb...)	
梅津研: Mo, Re, Ag, Cu, Ti, REMs (Nd),	
2001～ 東大(助教授・准教授)	
初期: Nb, Ta, PGMs (Pt, Rh)	
現在: Ti, Sc, V, PGMs (Pt, Rh, Ru, Ir, ...)	
Nb, Ta, REMs (Nd, Dy, ...)	



レアメタルとは

- ①資源的に、稀少な金属(賦存量が少ない元素)
→PGMs, In, Ga, Ta, Dy, ...
- ②資源的に豊富でも、メタルを得るのが困難な金属
→Ti, Si, Mg, ...
- ③資源的に豊富でも、鉱床の品位が低い金属
→Sc, V, ...





気相を介した希土類化合物の回収

- MgCl₂を気相で供給し、装置内に温度差を設けて希土類塩化物を分離・回収

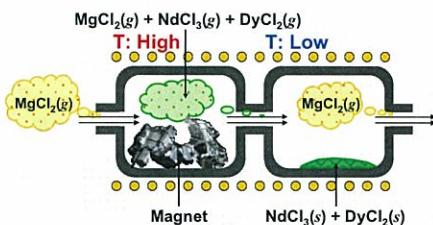


Fig. Schematic illustration of novel recycling process for magnet scrap.
090206 第35回レアメタル研究会_岡部研究室修士2年_白山栄 13

将来的には、
廃液等を発生せずに、

磁石のスクラップから、
ネオジム(Nd)やジスプロシウム(Dy)を
選択的に効率良く、分離・回収できる
環境調和型の
画期的なリサイクルプロセスを開発したい

Institute of Industrial Science

14

高度循環社会の確立を 目指した材料工学

循環資源立国への挑戦 (その2) Rare Metals

レアメタルの環境調和型 リサイクル技術の開発

15

現在、岡部研で研究を進めている課題：

気相を介してコレクターメタルを供給し、
PGMを合金化(・抽出)後、
気相を介して酸化(塩化)剤を供給し、
易溶性の白金化合物に変換する
新しいリサイクルプロセス

→基本的にガス反応を利用するので
複雑な形状をしたスクラップからの
貴金属の粗取りなどに適している。

16

将来的には、
大型のプラントを必要とせず、

塩水や塩酸などで簡単に
貴金属(Au, Pt, Rh...)が溶かせるような、
環境調和型の
画期的なリサイクルプロセスを開発したい

Institute of Industrial Science

17

レアメタルの環境調和型 リサイクル技術の開発

本研究室では、国内に蓄積されているレアメタルを
新しいリサイクル技術により有効利用し、資源セキュリティー
の安定性の向上を目指した基礎的な研究を展開している。
具体的には、PGMs(Pt, Rh)、REMs、Ta, In, W、Li、Ti、
Siなどのレアメタルの環境調和型リサイクル技術の開発を行っている。



さらに、本研究分野の国際連携を推進し、本所がレアメタルのプロセス技術の世界の研究コアとして発展し、世界をリードすることを目指している。

**ネオジム磁石スクラップからの
ニアースのリサイクル**

東京大学 生産技術研究所
岡部 徹
白山 栄*

(* 東京大学大学院 工学系研究科大学院生、
現(株)IHI 航空宇宙事業本部 技術開発センター 材料技術部)

記者会見:
2010年10月xx日 (?)
東京大学生産技術研究所 大会議室

Institute of Industrial Science 19

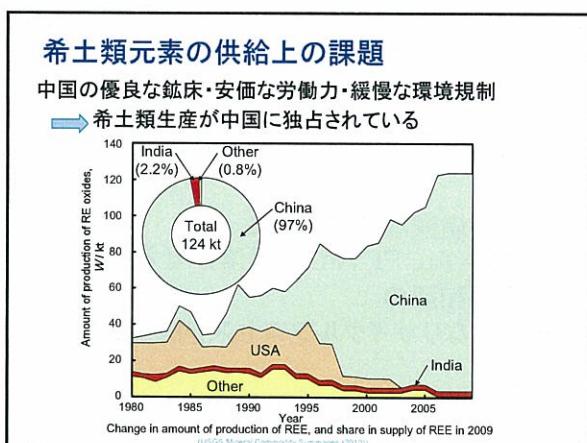
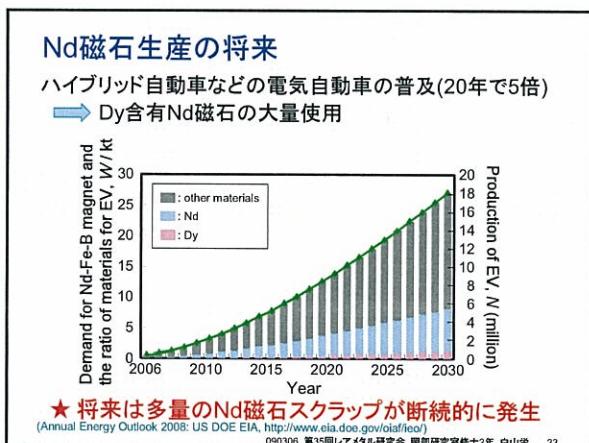
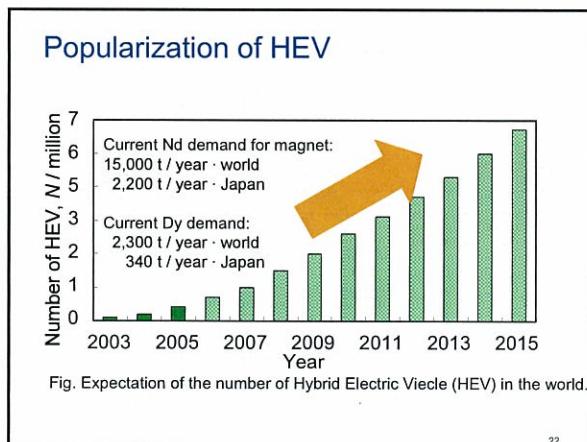
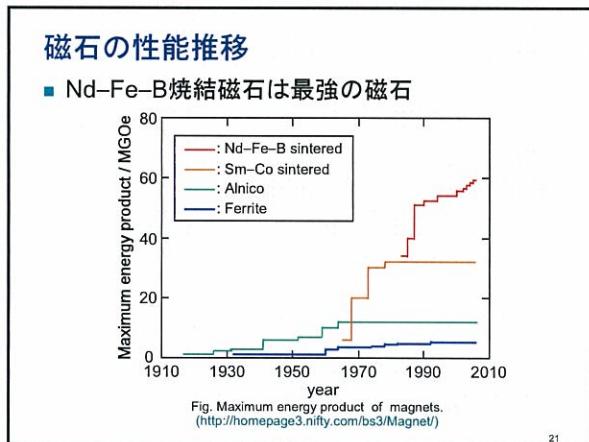
レアメタルの用途別の分類

- ① 電子材料レアメタル
 - 半導体(Si, Ge, GaAs)
 - 各種電子材料(In, Ta, Li, Ba, Sr, ...)
- ② 合金用レアメタル
 - 工具用特殊合金(W, Co, Ta, ...)
 - 鉄鋼添加用(V, Cr, Mo, Nb, ...)
- ③ 航空・宇宙材料用レアメタル(空飛ぶレアメタル)
 - 航空機材料(Ti, Ni基超合金, Al-Sc合金, ...)
- ④ 自動車用レアメタル(走るレアメタル)
 - 合金添加元素(Mo, V, Nb, Ti, ...)
 - 磁石材料(Nd, Dy, Sm, Co)
 - 鉱媒(Pt, Pd, Rh, ...)
- ⑤ 原子力用レアメタル
 - 原子炉用材料(Zr, Hf, 特殊合金...)
 - 放射性廃棄物(PGMs...)
- ⑥ 医療・生体用レアメタル
 - 生体材料(Ti, Nb, Ta, ...)
 - 医薬品・健康食品

今後、一層発展する
レアメタル

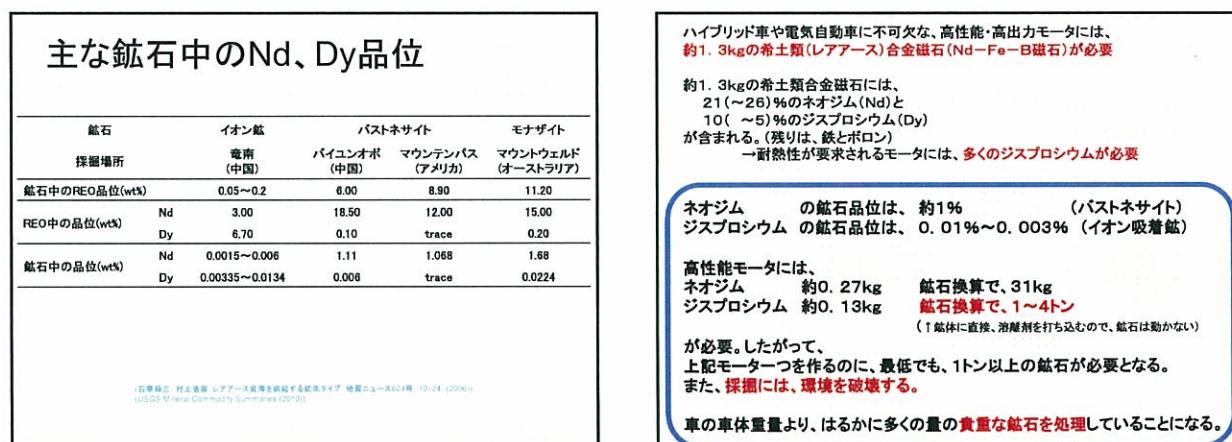
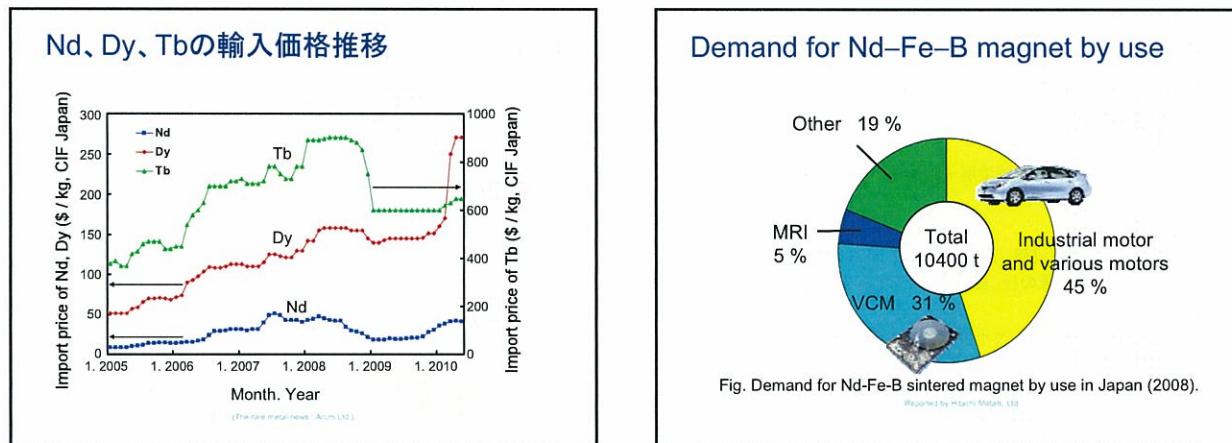
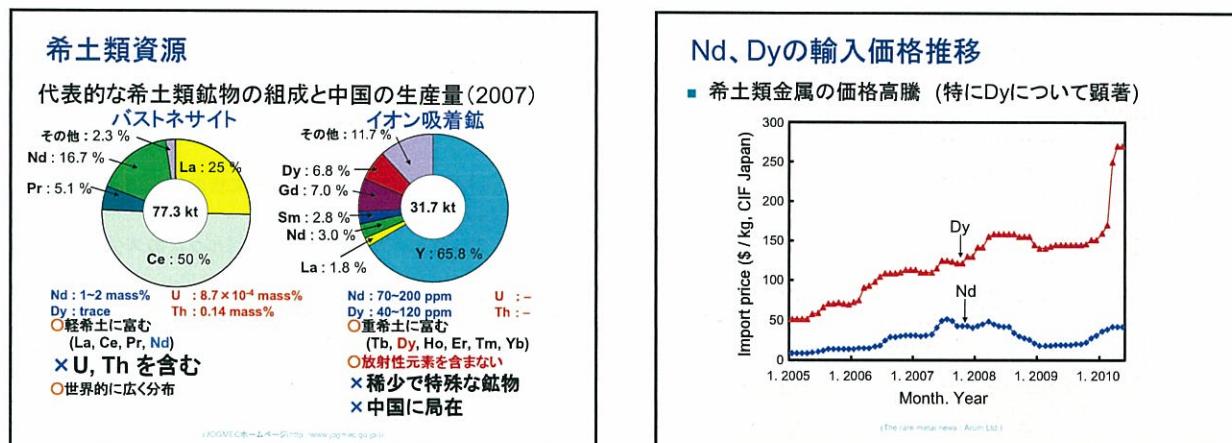


20



2010年10月26日(火)
記者会見用プレゼン配布資料
(抜粋)

資料②



磁石スクラップのリサイクルの重要性

- 新しい磁石の発明
 - …未だNd-Fe-B磁石に勝る磁石がない
- Nd-Fe-B磁石の省Dy化、Dyフリー化
 - …信越化学、インターメタリックス、TDKなど
- 新しい鉱床の開発
 - …オーストラリア(Mount Weld)、ベトナムなど

他の軽希土類、重希土類の生産が続く限り、
Nd、Dyの生産も続く

⇒ 余分の希土類や放射性廃棄物が捨てられる

使用済み製品から磁石スクラップを効率よく
リサイクルすることが重要である

31

Nd磁石スクラップのリサイクルの現状

- 磁石製造段階での工程屑はリサイクルされる
 - スラッジ
(切削加工などの際に生じる粉末状の加工屑)
 - 規格外の製品
(品質管理のために除外されるバルク状のスクラップ)
- 製品からの磁石の回収は、MRIなどの大型の
ものを除いて行われていない

32

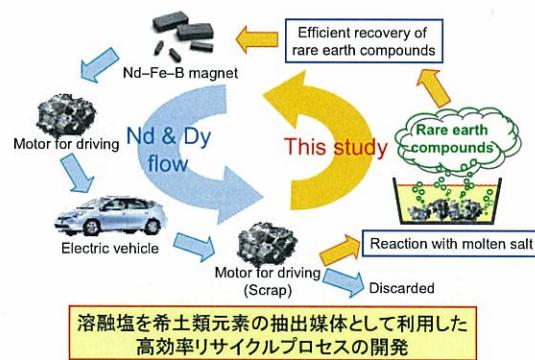
磁石スクラップのリサイクル技術

磁石スクラップの主なリサイクル様式

- 希土類回収法
 - 湿式法
(スクラップを酸化→酸溶解→溶媒抽出→希土類還元工程へ)
 - 乾式法
- 合金再生法
 - 再溶解(高周波溶解、アーク溶解、プラズマ溶解)
 - 種々の脱酸処理の後、磁石合金として再生
- 磁石再生法
 - 大型の磁石を切削して小型の磁石に再利用
(低品位品・別用途への利用)
 - 磁石スクラップ粉に希土類合金粉末を添加して磁石に再生
(焼結磁石・ボンド磁石として)

33

Nd-Fe-B磁石スクラップの新規リサイクル技術



34

気相を介した希土類化合物の回収

- $MgCl_2$ を気相で供給し、装置内に温度差を設けて
希土類塩化物を分離・回収

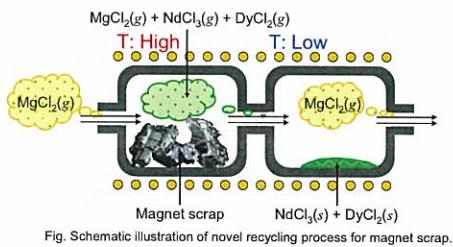


Fig. Schematic illustration of novel recycling process for magnet scrap.

35

希土類合金磁石の新しい乾式リサイクル技術



東京大学 生産技術研究所
白山 栄
岡部 徹

Institute of Industrial Science

36

最近の研究の紹介

磁石スクラップからNd、Dyを直接効率よくリサイクルするプロセスの開発が重要

製品スクラップのリサイクルの際には、スクラップ中の希土類含有量のばらつきや、AlやCuなどの金属元素についても考慮する必要がある

希土類元素の抽出媒体として溶融塩を利用

スクラップ中の希土類元素を選択的に抽出

新しいタイプのリサイクル技術の開発

37

乾式法による希土類のリサイクル-6

Research work by
Sakae Shirayama,
Toru H. Okabe

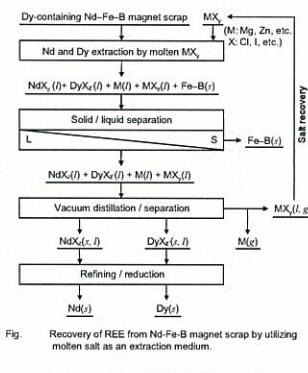
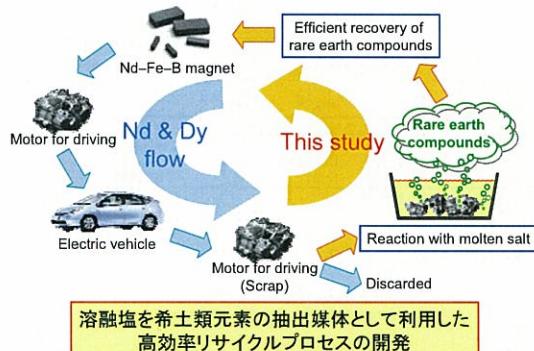


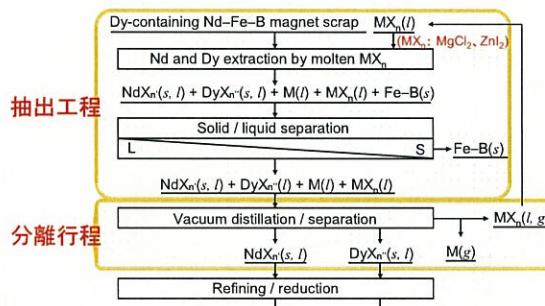
Fig. Recovery of REE from Nd-Fe-B magnet scrap by utilizing molten salt as an extraction medium.

本研究の展望



39

新規リサイクルプロセスのフローチャート



40

実験方法(抽出実験)

- 溶融塩への磁石合金浸漬による希土類元素の選択性的抽出

抽出媒体	MgCl ₂	ZnI ₂
反応温度	1273 K	740 K
反応時間	3 ~ 12 h	12 h

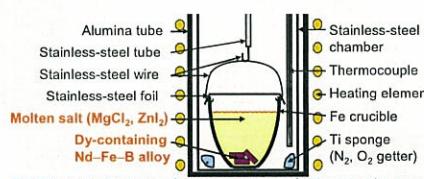


Fig. Schematic illustration of experimental setup for the extraction experiments.

41

実験方法(分離・回収実験)

- 真空蒸留による希土類化合物の回収

抽出媒体	MgCl ₂	ZnI ₂
反応温度	1273 K	1073 K
反応時間	6 h	1 h

石英管内を 2×10^{-4} atmに減圧

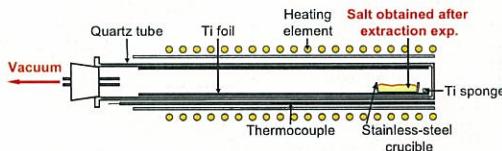


Fig. Schematic illustration of experimental setup for the separation experiments.

42

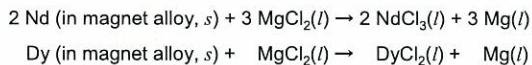
2010年10月26日(火)
記者会見用プレゼン配布資料
(抜粋)

資料②

結果および考察

新しいリサイクル技術の開発(その1)

- 溶融MgCl₂を利用した希土類元素回収プロセス
- 溶融ZnCl₂を利用した希土類元素回収プロセス



43

Remained alloy after the extraction exp.

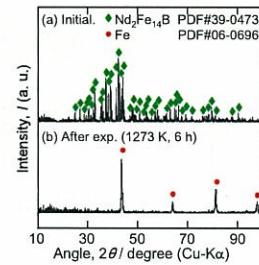


Fig. Photo of the remained alloy after extraction exp.

Fig. XRD patterns of the samples:
(a) Initial Nd-Fe-B,
(b) Remained alloy after extraction exp.

44

Salt obtained after the extraction exp.



Fig. Photo of the salt obtained after extraction exp.

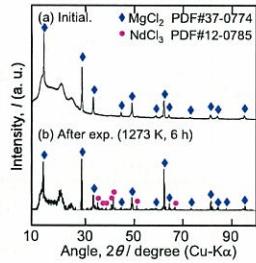


Fig. XRD patterns of the samples;
(a) Initial MgCl₂,
(b) Salt obtained after extraction exp.

45

Experimental result - alloy

Table Change in mass and composition of Nd-Fe-B alloy.

Exp. No.	Reaction temp., T / K	Reaction time, t'' / hr	Mass of Nd-Fe-B alloy before exp., w _{alloy} / g	Mass of Nd-Fe-B alloy after exp., w _{alloy} ' / g	Conc. of element i in Nd-Fe-B alloy, C _i (mass%) ^a	
					C _{Mg}	C _{Dy}
Initial	-	-	-	-	26.3	4.9
# 1	1273	3	18.97	15.94	9.4	2.3
# 2	1273	6	19.68	16.45	5.9	2.1
# 3	1273	12	14.97	11.51	3.3	0.8

a: Determined by ICP-AES analysis.

decreased

$$\text{REE content ratio, } R_i^{\text{alloy}/\text{alloy}} = \frac{w_{i, \text{alloy}}}{w_{i, \text{alloy}}^0} \times 100 (\%)$$

w_{i, alloy}⁰: initial mass of element i in alloy

w_{i, alloy}: mass of element i in alloy after exp.

i : Nd, Dy

46

REE content ratio, R_i^{alloy/alloy}

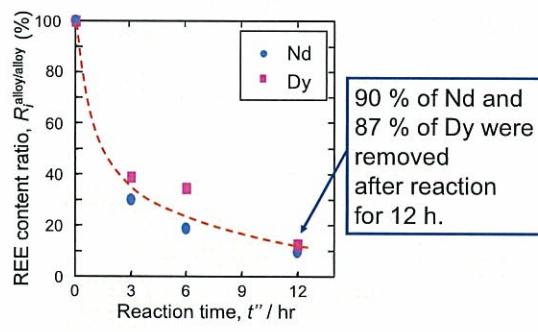


Fig. Change of REE content in the magnet alloy.

47

Change in composition of the magnet alloy

- The magnet alloy was immersed into molten MgCl₂.
→ Concentrations of Nd and Dy decreased.

Table Change in mass and composition of Nd-Fe-B alloy.

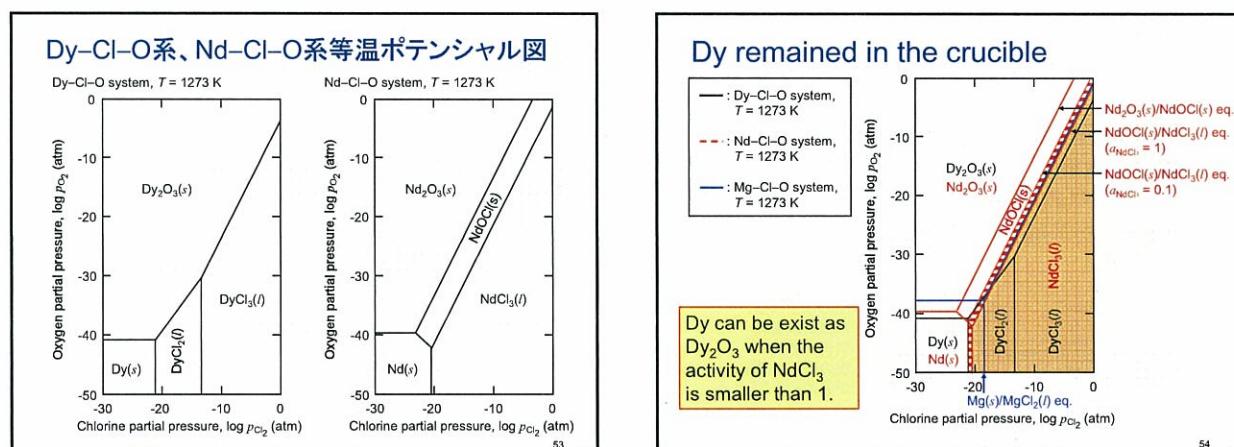
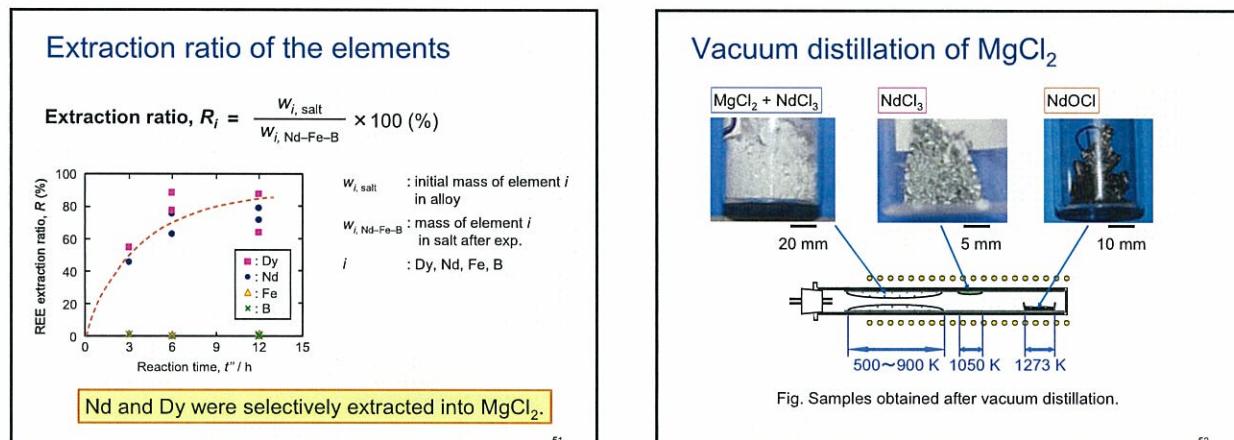
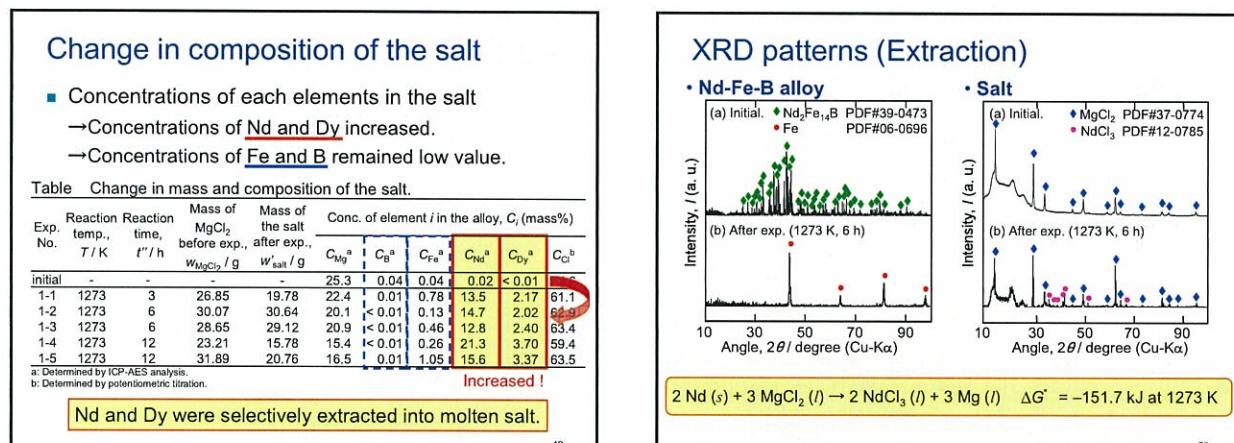
Exp. No.	Reaction temp., T / K	Reaction time, t'' / hr	Nd-Fe-B alloy before exp., w _{Nd-Fe-B} / g	Nd-Fe-B alloy after exp., w _{alloy} / g	Conc. of element i in the alloy, C _i (mass%) ^a				
					C _{Mg}	C _B	C _{Fe}	C _{Nd}	
Initial	-	-	-	-	< 0.01	1.37	66.7	25.7	4.96
1-1	1273	3	18.97	15.94	< 0.01	1.26	86.3	10.0	2.46
1-2	1273	6	19.87	16.45	1.60	1.37	88.1	6.57	2.32
1-3	1273	6	18.69	14.71	1.69	1.30	91.3	4.07	1.61
1-4	1273	12	14.97	11.51	0.72	1.30	93.4	3.69	0.91
1-5	1273	12	19.63	14.58	1.35	1.59	94.5	1.97	0.55

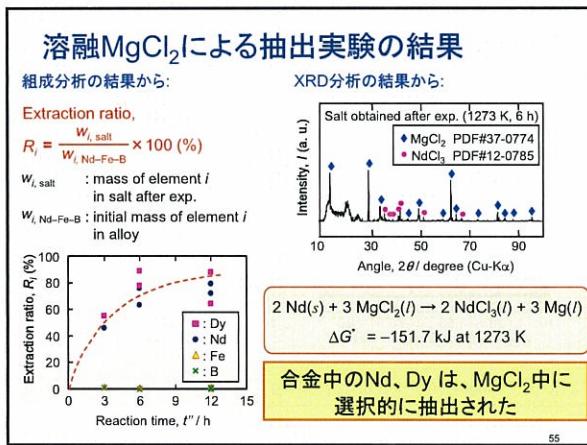
a: Determined by ICP-AES analysis.

Decreased!

Nd and Dy was removed from the magnet alloy.

48

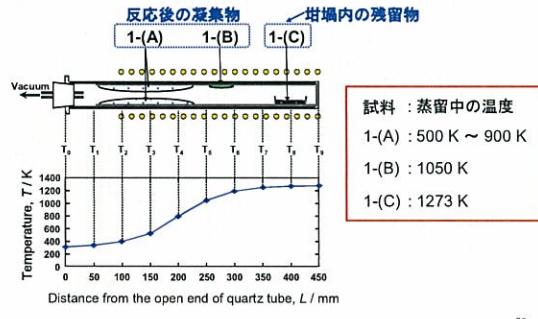




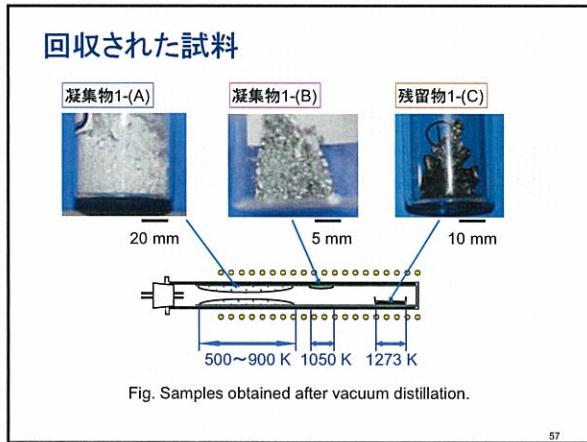
55

希土類塩化物回収実験(真空蒸留)

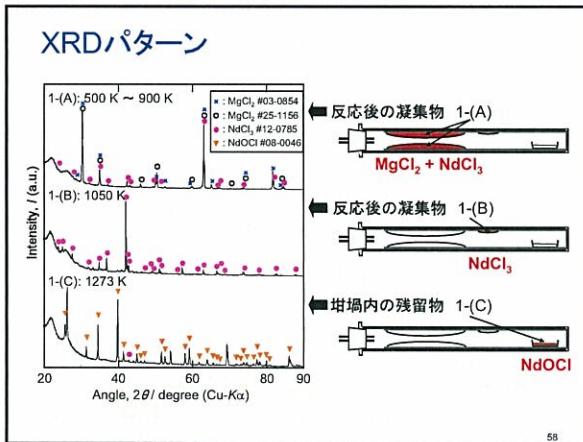
■ 試料回収箇所と温度の関係



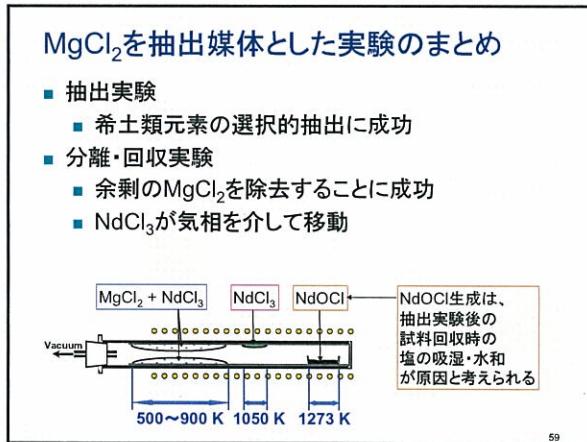
56



57



58

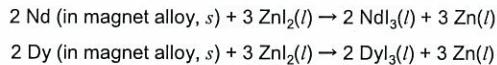


59

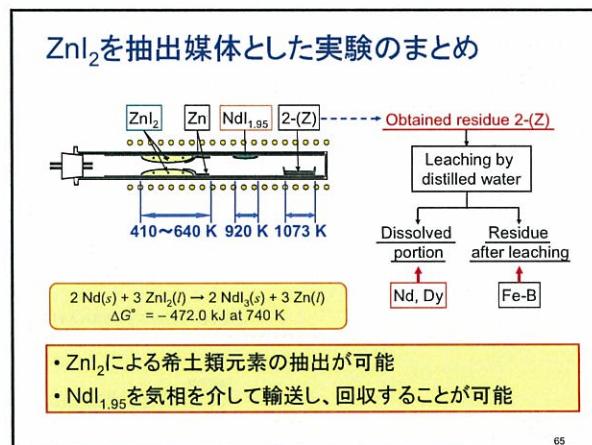
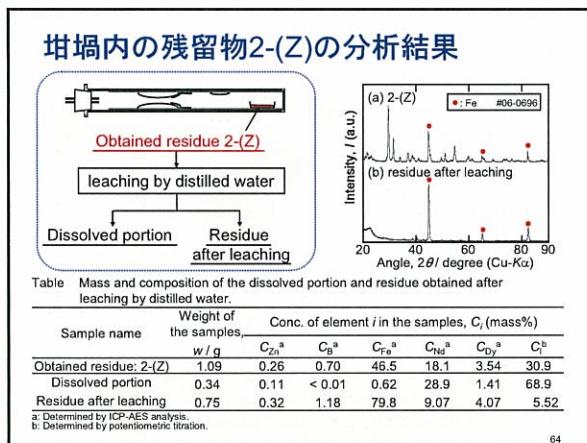
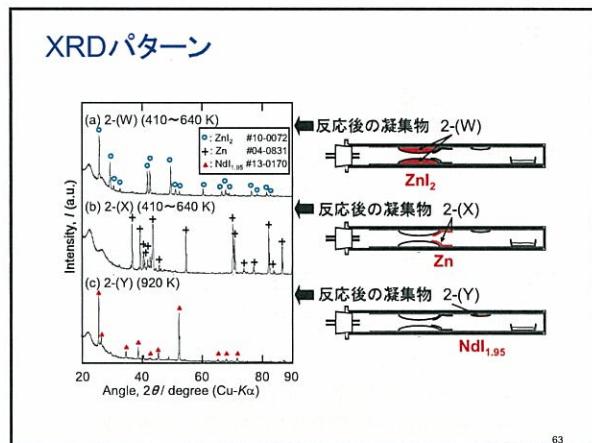
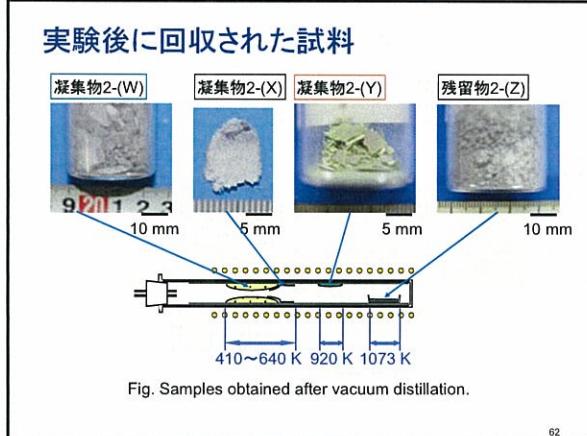
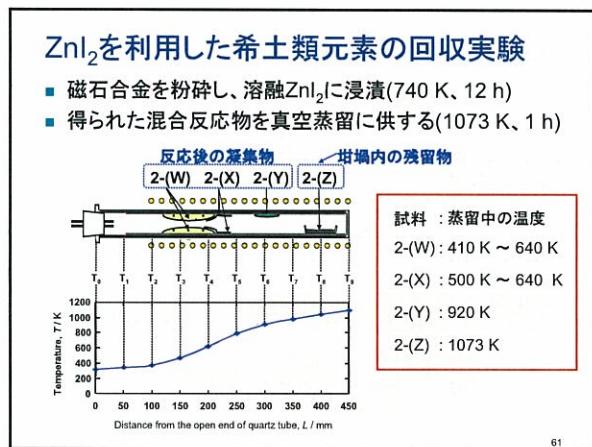
結果および考察

新しいリサイクル技術の開発(その2)

- 溶融MgCl₂を利用した希土類元素回収プロセス
- 溶融ZnI₂を利用した希土類元素回収プロセス



60

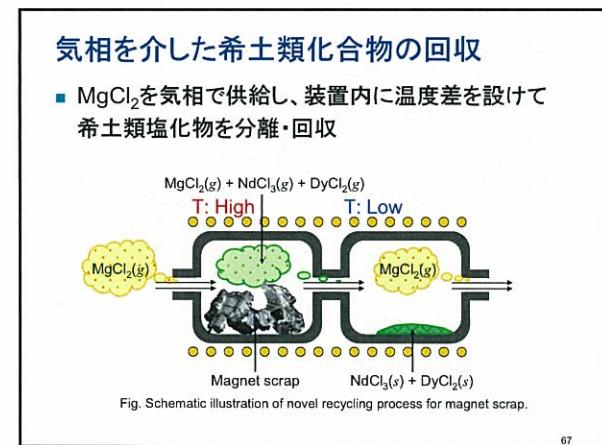


実験結果のまとめ

- 溶融MgCl₂、ZnI₂を利用した磁石スクラップからの希土類元素の回収について検証
- 抽出実験
 - 溶融塩を用いてNd、Dyの選択的な抽出を実証した
- 分離・回収実験
 - 真空蒸留によって余剰の抽出媒体が除去された
 - 希土類化合物が気相を介した輸送により回収された

溶融塩を希土類元素の抽出媒体として利用し、効率のよいリサイクルプロセスを構築することが可能である

66



67

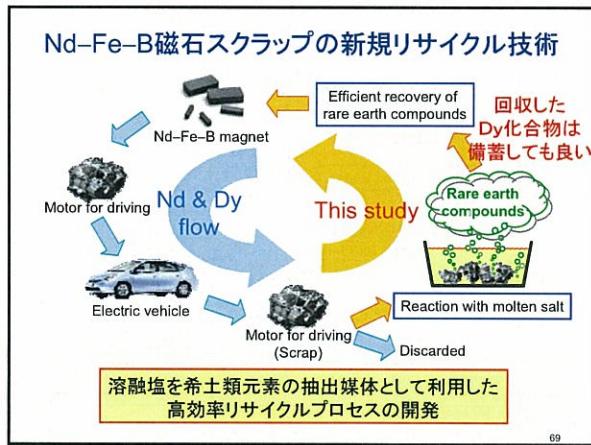
総括

- ハイブリッド自動車の普及によるNd磁石の需要増加、さらには多量のスクラップ発生が見込まれる
- 希土類資源の供給には不安要素がある
 - Dyは資源的に希少
 - Ndを鉱石から生産する際には環境破壊を伴う
 - 希土類製品の生産が中国に独占されている
- 使用済み製品からの磁石回収は行われていない

希土類合金磁石の新規リサイクル技術の開発

溶融塩を用いて、磁石スクラップからNd、Dyを直接回収するプロセスの有効性を実証した

68



69

レアメタル対策

海外資源の確保

- 供給先の多様化
- 備蓄(と市場の安定化機構の整備)
 - 十分な量の備蓄 (現状は論外)
- リサイクル
 - 日本が世界に貢献できる分野
 - 代替材料の開発、使用量削減技術の開発
 - 日本が世界に貢献できる技術分野

人的資源の育成

- もっとも重要。特に技術開発分野では。。。
- 多角的、長期的な取り組みが必要



東京大学 生産技術研究所 記者会見開催のお知らせ

1. 発表日時：平成 22 年 10 月 26 日（火） 10:30 ~ 11:30
2. 発表場所：東京大学生産技術研究所
総合研究実験棟 An 棟 3F 大会議室（An301、302）
〒153-8505 目黒区駒場 4-6-1 駒場リサーチキャンパス
<http://www.iis.u-tokyo.ac.jp/access/access.html>（参照）
3. 発表タイトル：
「ネオジム磁石スクラップからのレアアースのリサイクル」
4. 発表者：
東京大学生産技術研究所 岡部 徹（教授）
同 野瀬 勝弘（特任助教）
5. 発表概要：
最近の中国によるレアアースの輸出規制に端を発し、日本のハイテク産業においてネオジムやジスプロシウムなどのレアアースが極めて重要であることがクローズアップされた。
本会見では、ネオジム合金磁石のスクラップからレアアースを選択的に抽出してリサイクルする環境調和型の新規リサイクル技術について紹介する。
また、岡部研が長年取り組んでいるレアメタルのリサイクル技術の研究をはじめ、今後、日本が取り組むべきレアメタル対策などについて説明する。
事前の登録者に対しては岡部研の研究施設の見学会を行い、各種レアメタルの実物の展示を用いた説明会を行う。
- ★記者会見後の研究室見学をご希望の方は、下記（宮寄）へメールにてお申し込みください。
6. 注意事項
本件の報道解禁は、記者発表終了後となります。
7. 問い合わせ先：
東京大学生産技術研究所 教授
岡部 徹（おかべ とおる）
東京大学生産技術研究所 岡部研究室秘書
宮寄 智子（みやざき ともこ）
TEL : 03-5452-6314、FAX:03-5452-6313
E-mail : tmiya@iis.u-tokyo.ac.jp
8. 用語説明
レアアース（Rare Earth : 希土類）：
周期表の左から 3 列目にあたる「3 族」のうち 17 種の金属元素の総称。スカンジウム、イットリウムに加え、原子番号 57 番のランタンから 71 番のル

テチウムまでの15種の元素（「ランタノイド」とよばれる）を指す。レアアースの元素群は、類似の化学的性質をもつ酸化物やリン酸塩の鉱物として、特定の鉱石中にまとまって存在している。金属としての性質や用途は大きく異なり、それぞれがハイテク産業に欠かせない元素であるが、便宜上レアアースはひとくくりに扱われてきた。

今、最も話題性の高いレアメタルの一群である。

9. 添付資料

記者会見前に、以下のホームページに関連資料をUPします。

http://www.okabe.iis.u-tokyo.ac.jp/from_okabe/press_release/

<会場案内図>

