

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局

(43) 国際公開日  
2017年8月3日(03.08.2017)



(10) 国際公開番号  
**WO 2017/130712 A1**

- (51) 国際特許分類:  
*H01F 1/059* (2006.01) *C22C 38/00* (2006.01)  
*B22F 1/00* (2006.01) *H01F 41/02* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/000777
- (22) 国際出願日: 2017年1月12日(12.01.2017)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願 2016-014529 2016年1月28日(28.01.2016) JP
- (71) 出願人: 株式会社村田製作所(MURATA MANUFACTURING CO., LTD.) [JP/JP]; 〒6178555 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 Kyoto (JP). 国立研究開発法人産業技術総合研究所(NATIONAL INSTITUTE OF ADVANCED INDUSTRIAL SCIENCE AND TECHNOLOGY) [JP/JP]; 〒1008921 東京都千代田区霞が関1-3-1 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 大賀 聡(OGA, Satoshi); 〒6178555 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 株式会社村田製作所内 Kyoto (JP). 高木 健太(TAKAGI, Kenta); 〒4638560 愛知県名古屋市守山区大字下志段味字穴ヶ洞2266番地の98 国立研究開発法人産業技術総合研究所中部センター内 Aichi (JP). 尾崎 公洋(OZAKI, Kimihiro); 〒4638560 愛知県名古屋市守山区大字下志段味字穴ヶ洞2266番地の98 国立研究開発法人産業技術総合研究所中部センター内 Aichi (JP).
- (74) 代理人: 鮫島 睦, 外(SAMEJIMA, Mutsumi et al.); 〒5300017 大阪府大阪市北区角田町8番1号梅田阪急ビルオフィスタワー青山特許事務所 Osaka (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーロパ (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))



WO 2017/130712 A1

(54) Title: STARTING MATERIAL FOR MAGNETS, WHICH IS MAINLY COMPOSED OF Sm-Fe BINARY ALLOY, METHOD FOR PRODUCING SAME, AND MAGNET

(54) 発明の名称: Sm-Fe 二元系合金を主成分とする磁石用原料およびその製造方法、ならびに磁石

(57) Abstract: The present invention relates to: a starting material for magnets, which contains Sm and Fe; a magnet which is obtained by nitriding this starting material for magnets; and a method for producing this starting material for magnets. According to the first sense of the present invention, there is provided a starting material for magnets, which is mainly composed of an Sm-Fe binary alloy, and wherein the intensity ratio of the  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ (024) peak to the  $\text{SmFe}_7$ (110) peak is less than 0.001 as determined by an X-ray diffraction method.

(57) 要約: 本発明は、SmおよびFeを含む磁石用原料と、磁石用原料を窒化することにより得られる磁石と、それらの製造方法とに関する。本発明の第1の要旨によれば、Sm-Fe 二元系合金を主成分とする磁石用原料であって、X線回折法で測定した $\text{SmFe}_7$ (110)ピークに対する $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$ (024)ピークの強度比が0.001未満である、磁石用原料が提供される。

## 明 細 書

発明の名称：

**S m－F e 二元系合金を主成分とする磁石用原料およびその製造方法、ならびに磁石**

### 技術分野

[0001] 本発明は、S mおよびF eを含む磁石用原料と、その製造方法、ならびに磁石用原料を窒化することにより得られる磁石に関する。

### 背景技術

[0002] 希土類磁石は、磁束密度が高く極めて強力な永久磁石として、種々の用途に用いられている。代表的な希土類磁石として、 $Nd_2Fe_{14}B$ を主相とするネオジム磁石が知られている。このネオジム磁石には、一般的に耐熱性および保磁力を強化するためにジスプロシウムが添加されている。しかしながら、ジスプロシウムは希少な希土類元素であることに加え、産出地が限られているため価格が安定せず、できるだけジスプロシウムを用いない希土類磁石が求められている。

[0003] このような状況下、ジスプロシウムを用いない希土類磁石として、希土類としてS mを用いた磁石が注目されている。このようなS mを含む磁石としては、S m－F e－N系磁石が知られている（特許文献1、2）。

[0004] より詳細には、特許文献1には、R（Rは希土類元素の1種以上、R中のS m比率は50原子%以上）、T（F e、またはF eおよびC o）、NおよびM（Z rであるか、Z rの一部をT i、V、C r、N b、H f、T a、M o、W、A l、CおよびPの1種以上で置換したもの）を含有するR－T－M－N系の磁石であって、R量は4～8原子%、N量は10～20原子%、M量は2～10原子%であり、残部が実質的にTである磁石が記載されている。この磁石は、R－T－N系合金を主相とする硬磁性相と、T（主に $\alpha$  F e）から成る軟磁性相とを含む。

[0005] より詳細には、引用文献2には、一般式 $R_x(T_{1-u-v-w}Cu_uM_{1-v}M_{2-w})$

$R_{1-x-y}A_y$ （式中、RはYを含む希土類元素から選ばれる少なくとも1種の元素、TはFeまたはCo、M1はZr, Ti, Nb, Mo, Ta, W, Hfの少なくとも1種の元素、M2はCr, V, Mn, Niの少なくとも1種の元素、AはNまたはBの少なくとも1種の元素、x, y, u, v, 及びwはそれぞれ原子比で $0.04 \leq x \leq 0.2$ 、 $0.001 \leq y \leq 0.2$ 、 $0.002 \leq u \leq 0.2$ 、 $0 \leq v \leq 0.2$ 、 $0 \leq w \leq 0.2$ ）で実質的に表され、20原子%以上のCuを含む非磁性相0.2～10体積%と硬磁性主相を含み、かつ前記硬磁性主相の平均結晶粒径が100nm以下であることを特徴とする磁石材料が開示されている。

[0006] 特許文献1に記載の磁石は、希土類Rの含有量が4～8at%と少なく、 $\alpha$ -Feから成る軟磁性相を含んでいる。また特許文献2に記載の磁石特性を有する材料組織は、全体の20at%以上のCu原子を含む非磁性相を、材料組織の総量に対して0.2～10体積%含んでいる。このため、特許文献1および2から得られる磁石は、使用の間に保持力の低下を生じる可能性がある。

## 先行技術文献

### 特許文献

[0007] 特許文献1：特開平10-312918号公報

特許文献2：特許第3715573号公報

## 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

[0008] 本発明は、窒化することで優れた磁石特性を有する磁石が得られる、磁石用原料およびその製造方法、ならびに磁石を提供することを目的とする。

### 課題を解決するための手段

[0009] SmおよびFeを含む磁石用原料において、SmおよびFeは二元系の成分（Sm-Fe二元系合金を形成する。この系がTbCu<sub>7</sub>型の結晶構造を有するSmFe<sub>7</sub>相のみからなる磁石用原料は、窒化後の飽和磁束密度理論値が

1. 7 Tと高く、またキュリー温度も  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$  化合物の  $476^\circ\text{C}$  を凌ぐ  $520^\circ\text{C}$  となる。本発明者は、 $\text{Sm}-\text{Fe}$  二元系合金において  $\text{SmFe}_7$  相が占める割合が非常に高い磁石用原料を窒化することによって、優れた磁石特性を有する磁石が得られることを見出した。

[0010] 本発明の第1の要旨によれば、 $\text{Sm}-\text{Fe}$  二元系合金を主成分とする磁石用原料であって、X線回折法で測定した  $\text{SmFe}_7$  (110) ピークに対する  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$  (024) ピークの強度比が0.001未満である、磁石用原料が提供される。

[0011] 本発明の第2の要旨によれば、サマリウムと鉄の混合物を溶製することによって得られる磁石用原料の粉末状の母材を、水素吸収による分解反応および水素放出による再結合反応に付すことを含み、再結合反応が  $600^\circ\text{C}$  以上  $675^\circ\text{C}$  以下で実施される、製造方法が提供される。

[0012] 本発明の第3の要旨によれば、本発明の第1の要旨の磁石用原料の窒化物を含む、磁石が提供される。

### 発明の効果

[0013] 本発明によれば、 $\text{Sm}-\text{Fe}$  二元系合金を主成分とし、X線回折法で測定した  $\text{SmFe}_7$  (110) ピークに対する  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$  (024) ピークの強度比を0.001未満とすることにより、窒化することで優れた磁石特性を有する磁石が得られる、磁石用原料およびその製造方法、ならびに磁石が提供される。

### 発明を実施するための形態

[0014] 本発明の磁石用原料は、 $\text{Sm}-\text{Fe}$  二元系合金を主成分とし、X線回折法で測定した  $\text{SmFe}_7$  (110) ピークに対する  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$  (024) ピークの強度比が0.001未満、好ましくは0.0005未満であること、より好ましくは  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$  (024) ピークが検出されないことを特徴とする。上記範囲の  $\text{SmFe}_7$  (110) ピークに対する  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$  (024) ピークの強度比を有することで、磁束密度の高い磁石が得られる、磁石用原料が提供される。

- [0015] 本明細書において主成分とは、磁石用原料を構成する成分の中で最も存在比率が高い成分を意味し、本発明の磁石用原料においては  $\text{Sm}-\text{Fe}$  二元系合金である。
- [0016] 上記  $\text{SmFe}_7$  (1 1 0) ピークに対する  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$  (0 2 4) ピークの強度比は、X線回折装置を用いて、磁石用原料の回折強度を測定し、それぞれのピークの強度比を計算することにより求めることができる。
- [0017] 一の態様において、本発明の磁石用原料の、 $\text{Sm}-\text{Fe}$  二元系合金の平均結晶粒径は、特に限定されないが、例えば  $1\ \mu\text{m}$  以下、好ましくは  $400\ \text{nm}$  以下の範囲にあってよい。また、 $50\ \text{nm}$  以上であることが好ましい。これはメルトスピニング法により作製する粉末の平均結晶粒径よりも大きく、このような平均結晶粒径とすることで、耐酸化性が期待される。
- [0018] 本発明において平均結晶粒径は、例えば、走査型透過電子顕微鏡 (TEM) により磁石用原料の断面像 (以下、TEM像ともいう) を取得し、インターセプト法にて、具体的には、TEM像に縦と横それぞれ複数本、例えば10本ずつ、の直線を任意に引き、それぞれの直線上にある結晶粒子の数を数え、直線の長さを結晶粒子の数で割り、縦と横の直線の総数、例えば20本、での平均値を計算することにより求めることができる。
- [0019] 一の態様において、本発明の磁石用原料に含まれる  $\text{Sm}$  と  $\text{Fe}$  との総量に対する  $\text{Sm}$  含有量は、特に限定されないが、例えば  $9\ \text{at}\%$  以上  $14\ \text{at}\%$  以下の範囲であってもよい。
- [0020] 本発明の磁石用原料は、以下のように製造することができる。
- [0021] (1) 磁石用原料の粉末状の母材の調整
- 原料金属のサマリウムおよび鉄を配合する。サマリウムと鉄の配合割合は、特に限定されないが、例えば磁石用原料に含まれる  $\text{Sm}$  と  $\text{Fe}$  との総量に対する  $\text{Sm}$  含有量が、 $9\ \text{at}\%$  以上  $14\ \text{at}\%$  以下の範囲であり、その残部が鉄である。
- [0022] 上記の割合で配合したサマリウムと鉄の混合物を、例えば  $1500\sim 1700^\circ\text{C}$  の温度で溶製して母材を得、これを粉砕して、磁石用原料の粉末状の

母材を得る。

[0023] 上記の溶製は、特に限定されないが、好ましくは高周波溶解により行われる。

[0024] 上記の粉碎は、自体公知の方法により行うことができる。例えば、クラッシャー、スタンプミル、ボールミル等により粉碎することができる。この粉碎により上記の混合物は、特に限定されないが、例えば10～300  $\mu\text{m}$ 、好ましくは10～50  $\mu\text{m}$ 、より好ましくは20～40  $\mu\text{m}$ まで粉碎される。

[0025] (2) 水素吸収・放出熱処理 (HDDR処理)

上記で得られた磁石用原料の粉末状の母材を水素雰囲気下で加熱処理することにより、磁石用原料の粉末状の母材に水素化・不均化反応 (HD: Hydrogenation Disproportionation) を生じさせ、磁石用原料の粉末状の母材のSm-Fe二元系合金をSmH<sub>2</sub>相と $\alpha$ Fe相とに分解する (以下、当該加熱処理を「HD処理」とも称する)。

[0026] 上記のHD処理において、処理温度は600℃以上850℃以下、好ましくは600℃以上800℃以下、より好ましくは650℃以上750℃以下である。この処理温度範囲を用いることで、温度が低すぎる場合に後述するDR処理後に生じる粒成長と、温度が高すぎる場合にDR処理後に生じる $\alpha$ Feの残存とを避けることができ、保磁力低下を防ぐことができる。

[0027] 上記のHD処理において、水素圧は10kPa以上0.1MPa以下、好ましくは50kPa以上0.1MPa以下である。この水素圧を用いることで、HD反応が十分に進行する。

[0028] 上記のHD処理に続いて、減圧下で磁石用原料の粉末状の母材を加熱処理することにより水素を排出して、減圧下で磁石用原料の粉末状の母材に脱水素・再結合反応 (DR: Desorption Recombination) を生じさせ、Sm-Fe二元系合金を再形成して、磁石用原料を生じさせる (以下、当該加熱処理を「DR処理」とも称する)。

[0029] 上記のDR処理において、「減圧下」とは100Pa以下、好ましくは5

0 Pa 以下、より好ましくは 5 Pa 以下である。この圧力を用いることで、水素排出させることができ、DR 反応が十分に進行する。

[0030] 上記の DR 処理において、処理温度は 600℃ 以上 675℃ 以下、好ましくは 600℃ 以上 650℃ 以下である。当該処理温度を調節することで、脱水素・再結合反応の速度を調節することができ、この処理温度範囲を用いることで、DR 反応の温度が高すぎる場合に生じる、 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$  相への変態を防ぐことができる。

[0031] 上記の DR 処理において、加温時間は 5 分以上 60 分以下、好ましくは 5 分以上 30 分以下である。この加温時間を用いることで、長時間加熱した場合に生じる、粒成長および  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$  相への変態を避けることができ、保持力低下を防ぐことができる。

[0032] 上記の水素化・分解反応、脱水素・再結合反応の一連の処理方法を、HDDR 法という。かかる HDDR 法により、磁石用原料の粉末状の母材を処理することにより、 $\text{Sm}-\text{Fe}$  二元系合金の  $\text{SmFe}_7$  相の割合が非常に高い磁石用原料を得ることができる。

[0033] (3) 窒化処理

上記のように処理された磁石用原料を、窒素雰囲気下またはアンモニアと水素の混合雰囲気下で熱処理することにより、結晶内に窒素が取り込まれ（窒化）、磁石が得られる。

[0034] 上記の窒化処理において窒素ガスを用いた場合、窒素の分圧は 10 kPa 以上 100 kPa 以下、好ましくは 50 kPa 以上 100 kPa 以下である。この窒素分圧を用いることで、窒化反応が十分に進行する。

[0035] 上記の窒化処理においてアンモニアと水素の混合ガスを用いた場合、混合ガスの総圧力を 0.1 MPa としたとき、アンモニアの分圧は 20 kPa 以上 40 kPa 以下、好ましくは 25 kPa 以上 33 kPa 以下である。このアンモニアの分圧を用いることで、窒化反応が十分に進行する。

[0036] 上記の窒化処理において、加熱温度は 350℃ 以上 500℃ 以下、好ましくは 400℃ 以上 500℃ 以下である。この加熱温度を用いることで、より

高温で窒化反応させた場合に生じ得る  $\text{Sm-N}$  および  $\text{Fe}$  への分解を防ぐことができ、より低温で窒化反応させた場合と比較して反応を十分に進行させることができる。

[0037] 上記の窒化処理において窒素ガスを用いた場合、加熱時間は、5時間以上30時間以下、好ましくは10時間以上25時間以下である。この加熱時間を用いることで、加熱時間がより長い場合に生じ得る粒成長ならびに  $\text{Sm-N}$  および  $\text{Fe}$  への分解を防ぐことができ、より短い場合よりも反応を十分に進行させることができる。この加熱時間を調節することにより、磁石粉末に取り込まれる窒素の量を調節することができる。

[0038] 上記の窒化処理においてアンモニアと水素の混合ガスを用いた場合、加熱時間は、10分以上70分以下、好ましくは15分以上60分以下である。この加熱時間を用いることで、加熱時間がより長い場合に生じ得る粒成長ならびに  $\text{Sm-N}$  および  $\text{Fe}$  への分解を防ぐことができ、より短い場合よりも反応を十分に進行させることができる。この加熱時間を調節することにより、磁石粉末に取り込まれる窒素の量を調節することができる。

[0039] 上記(1)～(3)の処理を含む方法により得られた本発明の磁石は、 $\text{Sm-Fe}$  二元系合金の  $\text{SmFe}_7$  相の割合が非常に高いため、磁束密度が高い。

[0040] すなわち、本発明は、サマリウムと鉄の混合物を溶製することによって得られる磁石用原料の粉末状の母材を、水素吸収による分解反応および水素放出による再結合反応に付すことを含み、再結合反応が600℃以上675℃以下で実施される、磁石用原料の製造方法をも提供する。

[0041] さらに、本発明は、本発明の磁石用原料の窒化物を含む、磁石をも提供する。

## 実施例

[0042] (実施例)

・実施例1～12および比較例13～15

原料金属のサマリウムおよび鉄を、表1において「Sm量(at%)」欄

に記載される、サマリウムと鉄との総量に対するSm含有量になるように秤量し、これを高周波溶解炉にて1600℃で溶製し、母材を得た。この母材をスタンプミルにより45μm以下まで粉砕した。

[0043] 粉砕された母材に対して、HD処理温度を表1において「HD(℃)」欄に記載される温度に設定し、DR処理温度を表1において「DR(℃)」欄に記載される温度に設定して、HDDR処理を実施することで、磁石用原料を得た。HD処理の水素圧は0.1MPa、DR処理の水素圧は5Pa以下とした。また、HD処理の処理時間は30分、DR処理の処理時間は60分とした。

[0044] (評価)

・X線回折法による解析

上記で得られた実施例1～12および比較例13～15の磁石用原料の各々について、X線回折装置（スペクトリス社製Empyrean）、およびX線検出装置（スペクトリス社製Pixcel 1D）を用いて、ステップ幅を0.013°、ステップ時間を20.4秒として磁石粉末の回折強度を測定し、 $\text{SmFe}_7(110)$ ピーク強度( $I_1$ )に対する $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}(024)$ ピークの強度( $I_2$ )の比( $I_2/I_1$ )を求めた。結果を表1に併せて示す。

[0045] [表1]

|     | 試料No | Sm量<br>(at%) | HD(℃) | DR(℃) | SmFe <sub>7</sub> (110) |       | Sm <sub>2</sub> Fe <sub>17</sub> (024) |       | 強度比<br>( $I_2/I_1$ ) |
|-----|------|--------------|-------|-------|-------------------------|-------|----------------------------------------|-------|----------------------|
|     |      |              |       |       | 2θ(°)                   | $I_1$ | 2θ(°)                                  | $I_2$ |                      |
| 実施例 | 1    | 9            | 600   | 600   | 42.656                  | 8.9   | —                                      | 0.000 | 0.000                |
|     | 2    | 11           | 600   | 600   | 42.701                  | 8.2   | —                                      | 0.000 | 0.000                |
|     | 3    | 14           | 600   | 600   | 42.59                   | 6.5   | —                                      | 0.000 | 0.000                |
|     | 4    | 9            | 650   | 650   | 42.598                  | 337   | —                                      | 0.000 | 0.000                |
|     | 5    | 11           | 650   | 650   | 42.616                  | 330   | —                                      | 0.000 | 0.000                |
|     | 6    | 14           | 650   | 650   | 42.612                  | 321   | —                                      | 0.000 | 0.000                |
|     | 7    | 14           | 725   | 650   | 42.627                  | 499   | —                                      | 0.000 | 0.000                |
|     | 8    | 14           | 725   | 675   | 42.591                  | 467   | —                                      | 0.000 | 0.000                |
|     | 9    | 14           | 775   | 650   | 42.591                  | 475   | —                                      | 0.000 | 0.000                |
|     | 10   | 9            | 775   | 675   | 42.56                   | 375   | —                                      | 0.000 | 0.000                |
|     | 11   | 11           | 775   | 675   | 42.551                  | 370   | —                                      | 0.000 | 0.000                |
|     | 12   | 14           | 775   | 675   | 42.539                  | 367   | —                                      | 0.000 | 0.000                |
| 比較例 | 13   | 14           | 725   | 700   | 42.512                  | 426   | 44.144                                 | 69.71 | 0.164                |
|     | 14   | 14           | 775   | 700   | 42.479                  | 480   | 44.100                                 | 78.00 | 0.163                |
|     | 15   | 14           | 800   | 800   | 42.486                  | 1292  | 44.149                                 | 279.0 | 0.216                |

[0046] 表 1 に示すように、実施例 1 ～ 1 2 において、得られた磁石用原料の  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$  (0 2 4) ピークの強度は検出の限界値を下回るため、 $\text{SmFe}_7$  (1 1 0) ピークに対する  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$  (0 2 4) ピークの強度比は 0.000 となり、本発明に従って、 $\text{Sm}-\text{Fe}$  二元系合金の  $\text{SmFe}_7$  相が占める割合が非常に高い磁石用原料が得られたことが確認された。

[0047] また比較例 1 3 ～ 1 5 において、得られた磁石用原料の  $\text{SmFe}_7$  (1 1 0) ピークに対する  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$  (0 2 4) ピークの強度比は、DR 処理温度が高いほど増加しており、DR 処理温度の上昇に伴う  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$  相率の増加が確認された。

### 産業上の利用可能性

[0048] 本発明の磁石粉末は、車載または電動工具、家電、通信機器などのモーター用途において幅広く様々な使用され得る。

### 請求の範囲

- [請求項1]  $\text{Sm}-\text{Fe}$  二元系合金を主成分とする磁石用原料であって、X線回折法で測定した  $\text{SmFe}_7$  (110) ピークに対する  $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}$  (024) ピークの強度比が0.001未満である、磁石用原料。
- [請求項2]  $\text{Sm}-\text{Fe}$  二元系合金の平均結晶粒径が  $1\ \mu\text{m}$  以下の範囲にある、請求項1に記載の磁石用原料。
- [請求項3] 磁石用原料に含まれる  $\text{Sm}$  と  $\text{Fe}$  との総量に対する  $\text{Sm}$  含有量が9 at %以上14 at %以下である、請求項1に記載の磁石用原料。
- [請求項4] 請求項1～3のいずれかに記載の磁石用原料の製造方法であって、サマリウムと鉄の混合物を溶製することによって得られる磁石用原料の粉末状の母材を、水素吸収による分解反応および水素放出による再結合反応に付すことを含み、再結合反応が  $600^\circ\text{C}$  以上  $675^\circ\text{C}$  以下で実施される、製造方法。
- [請求項5] 請求項1～3のいずれかに記載の磁石用原料の窒化物を含む、磁石。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/000777

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01F1/059(2006.01)i, B22F1/00(2006.01)i, C22C38/00(2006.01)i, H01F41/02(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01F1/059, B22F1/00, C22C38/00, H01F41/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

|                           |           |                            |           |
|---------------------------|-----------|----------------------------|-----------|
| Jitsuyo Shinan Koho       | 1922-1996 | Jitsuyo Shinan Toroku Koho | 1996-2017 |
| Kokai Jitsuyo Shinan Koho | 1971-2017 | Toroku Jitsuyo Shinan Koho | 1994-2017 |

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                       | Relevant to claim No. |
|-----------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| A         | JP 2002-294413 A (Toshiba Corp.),<br>09 October 2002 (09.10.2002),<br>paragraphs [0017] to [0025]<br>(Family: none)      | 1-5                   |
| A         | JP 2003-193208 A (Toshiba Corp.),<br>09 July 2003 (09.07.2003),<br>paragraphs [0023] to [0028]<br>(Family: none)         | 1-5                   |
| A         | DE 4126893 A1 (SIEMENS AG),<br>14 May 1992 (14.05.1992),<br>page 3, line 35 to page 4, line 54; fig. 1<br>(Family: none) | 1-5                   |

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
17 March 2017 (17.03.17)

Date of mailing of the international search report  
04 April 2017 (04.04.17)

Name and mailing address of the ISA/  
Japan Patent Office  
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,  
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2017/000777

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                                                                                   | Relevant to claim No. |
|-----------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| A         | JP 08-316018 A (TDK Corp.),<br>29 November 1996 (29.11.1996),<br>paragraphs [0052], [0060] to [0068]<br>& US 5750044 A<br>column 11, lines 27 to 41; column 12, line 37<br>to column 14, line 56<br>& JP 10-312918 A | 1-5                   |

## A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. H01F1/059(2006.01)i, B22F1/00(2006.01)i, C22C38/00(2006.01)i, H01F41/02(2006.01)i

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. H01F1/059, B22F1/00, C22C38/00, H01F41/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

|             |                     |
|-------------|---------------------|
| 日本国実用新案公報   | 1 9 2 2 - 1 9 9 6 年 |
| 日本国公開実用新案公報 | 1 9 7 1 - 2 0 1 7 年 |
| 日本国実用新案登録公報 | 1 9 9 6 - 2 0 1 7 年 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1 9 9 4 - 2 0 1 7 年 |

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

## C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の<br>カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示                                        | 関連する<br>請求項の番号 |
|-----------------|--------------------------------------------------------------------------|----------------|
| A               | JP 2002-294413 A（株式会社東芝）2002.10.09, 段落0017-0025（ファミリーなし）                 | 1-5            |
| A               | JP 2003-193208 A（株式会社東芝）2003.07.09, 段落0023-0028（ファミリーなし）                 | 1-5            |
| A               | DE 4126893 A1（S I E M E N S A G）1992.05.14, 第3頁第35行-第4頁第54行, 図1（ファミリーなし） | 1-5            |

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

1 7 . 0 3 . 2 0 1 7

国際調査報告の発送日

0 4 . 0 4 . 2 0 1 7

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

池田 安希子

5 D

4 1 7 5

電話番号 03-3581-1101 内線 3551

| C (続き) . 関連すると認められる文献 |                                                                                                                                      |                |
|-----------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------|
| 引用文献の<br>カテゴリー*       | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示                                                                                                    | 関連する<br>請求項の番号 |
| A                     | JP 08-316018 A (ティーディーケー株式会社) 1996. 11. 29, 段落 0052, 0060-0068<br>& US 5750044 A, 第11欄第27-41行, 第12欄第37行-第14欄第56行<br>& JP 10-312918 A | 1-5            |