(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
2014 年 7 月 17 日(17.07.2014)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2014/108950 A1

(51) 国際特許分類:
H01F 41/02 (2006.01) *C22C 38/00* (2006.01)
B22F 3/00 (2006.01) *H01F 1/057* (2006.01)
B22F 3/24 (2006.01) *H01F 1/08* (2006.01)
C22C 33/02 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2013/006810

(22) 国際出願日: 2013 年 11 月 20 日(20.11.2013)

(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 2013-003769 2013 年 1 月 11 日(11.01.2013) JP
特願 2013-003770 2013 年 1 月 11 日(11.01.2013) JP

(71) 出願人: 株式会社アルバック (ULVAC, INC.) [JP/JP]; 〒2538543 神奈川県茅ヶ崎市萩園２５００番地 Kanagawa (JP).

(72) 発明者: 新垣 良憲 (SHINGAKI, Yoshinori); 〒2538543 神奈川県茅ケ崎市萩園２５００ 株式会社アルバック内 Kanagawa (JP). 赤松 泰彦 (AKAMATSU, Yasuhiko); 〒2538543 神奈川県茅ケ崎市萩園２５００ 株式会社アルバック内 Kanagawa (JP). 谷 典明 (TANI, Noriaki); 〒2538543 神奈川県茅ケ崎市萩園２５００ 株式会社アルバック内 Kanagawa (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人青莪 (SEIGA PATENT AND TRADEMARK CORPORATION); 〒1410031 東京都品川区西五反田８－１－１４ 最勝ビル９階 Tokyo (JP).

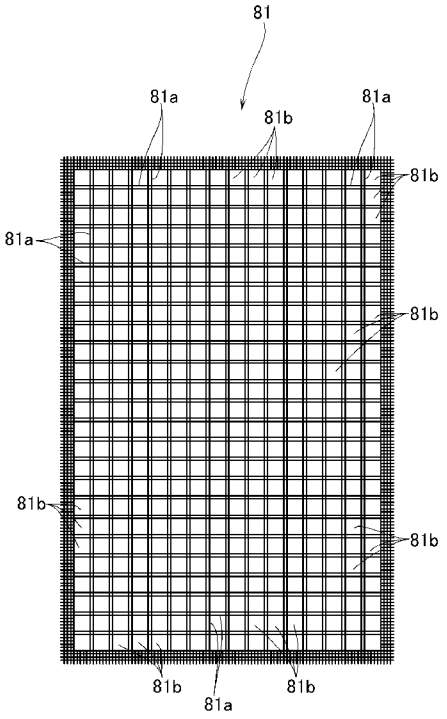
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, 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, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシ

[続葉有]

(54) **Title**: PERMANENT MAGNET PRODUCING METHOD

(54) 発明の名称 : 永久磁石の製造方法



(57) **Abstract**: Provided is a permanent magnet producing method whereby a high ratio of utilization of an evaporation material can be achieved. In the present invention, at least two evaporation material (RM) plates containing at least one selected from Dy, Tb, and Ho are placed in a treatment chamber (3) so as to face each other with a distance therebetween, and a plurality of iron-boron-rare earth-based sintered magnets (S) are arranged between the evaporation material plates. The inside of the treatment chamber is heated under a reduced pressure so that the sintered magnets are heated to a predetermined temperature and the evaporation material is evaporated. The at least one selected from Dy, Tb and Ho, which is thus evaporated, is caused to adhere to surfaces of the sintered magnets in such a manner that the amount of supply of the same is adjusted. The at least one selected from Dy, Tb and Ho, which thus adheres to the surfaces, is diffused over grain boundaries and/or grain boundary phases of the sintered magnets. The ratio of a sum of areas of surfaces of the sintered magnets facing the evaporation material plates to a sum of areas of surfaces of the evaporation material plates facing the sintered magnets is set in a range of 20% to 120%.

(57) 要約: 蒸発材料の高い使用効率を達成することができる永久磁石の製造方法を提供する。 本発明では、処理室内３に、Ｄｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を含有する板状の蒸発材料ＲＭの少なくとも２枚を、間隔を存して対向配置すると共に、蒸発材料相互の間に鉄－ホウ素－希土類系の焼結磁石Ｓの複数個を配置し、減圧下で処理室内を加熱して焼結磁石を所定温度に加熱すると共に蒸発材料を蒸発させ、この蒸発したＤｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を焼結磁石表面への供給量を調節して付着させ、この付着したＤｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を焼結磁石の結晶粒界及び／または結晶粒界相に拡散させる。蒸発材料の焼結磁石との対向面の面積の総和に対する各焼結磁石の蒸発材料との対向面の面積の総和の割合を２０％～１２０％の範囲に設定する。

WO 2014/108950 A1

ア (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)）

明　細　書

発明の名称 ： 永久磁石の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、Ｄｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を鉄－ホウ素－希土類系の焼結磁石の結晶粒界及び／または結晶粒界相に拡散させて飛躍的に高い保磁力を有する高性能永久磁石の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 従来、Ｄｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を焼結磁石の結晶粒界及び／または結晶粒界相に拡散させて飛躍的に高い保磁力を有する永久磁石の製造方法は、例えば特許文献１で知られている。このものでは、直方体状の焼結磁石と、Ｄｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を含有する板状の蒸発材料（バルク体）とを一定の空間に区画された処理室内に配置する。この場合、２枚の蒸発材料を、間隔を存して対向配置すると共に、当該蒸発材料相互の間の空間に、主面が夫々平行となるように焼結磁石の複数個を間隔を存して並置する。そして、処理室内を加熱して蒸発材料及び焼結磁石を７００℃以上１０００℃以下に加熱することにより、Ｄｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を焼結磁石の表面に供給しつつ、その内部に拡散させる（真空蒸気処理）。

[0003] ここで、Ｄｙ、ＴｂやＨｏといった蒸発材料は、資源的に乏しく、安定供給も望めない虞があるため、上記従来例の製造方法を実施するとき、蒸発材料の使用効率、つまり、一回の真空蒸気処理における蒸発材料の減量に対する各焼結磁石の増量の総和の割合を如何に高めるかが、低コスト化を図る上でも重要となっている。そこで、本発明者らは、鋭意研究を重ね、上記従来例の如く、一定の空間に区画された処理室内に、蒸発材料を対向配置し、これら蒸発材料相互の間の空間に焼結磁石の複数個を配置して真空蒸気処理を繰り返し行って永久磁石を製造する際、第１に蒸発材料の焼結磁石との対向面の面積と各焼結磁石の蒸発材料との対向面の面積との関係が、第２に各焼

結磁石を支持する支持部材の開口率（支持部材の前記蒸発材料との対向面の面積に対する各開口の総面積の割合）が蒸発材料の使用効率を高めることにとって重要となることの知見を得た。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：国際公開２００７／１０２３９１号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 本発明は、上記知見に基づきなされたものであり、蒸発材料の高い使用効率を達成することができる永久磁石の製造方法を提供することをその課題とするものである。

課題を解決するための手段

[0006] 上記課題を解決するために、第１形態に係る本発明の永久磁石の製造方法は、処理室内に、Ｄｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を含有する板状の蒸発材料の少なくとも２枚を、間隔を存して対向配置すると共に、蒸発材料相互の間に鉄－ホウ素－希土類系の焼結磁石の複数個を配置し、減圧下で処理室内を加熱して焼結磁石を所定温度に加熱すると共に蒸発材料を蒸発させ、この蒸発したＤｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を焼結磁石表面への供給量を調節して付着させ、この付着したＤｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を焼結磁石の結晶粒界及び／または結晶粒界相に拡散させ、このとき、前記蒸発材料の焼結磁石との対向面の面積の総和に対する各焼結磁石の蒸発材料との対向面の面積の総和の割合を２０％～１２０％の範囲に設定することを特徴とする。

[0007] 以上によれば、一回の真空蒸気処理における蒸発材料の減量に対する各焼結磁石の増量の総和の割合を７５％以上にできることが確認された。ここで、上記割合が２０％未満であると、蒸発材料の使用効率が極端に低下し、また、上記割合が１２０％を超えると、焼結磁石表面に蒸発したものが付着し

ない部分が発生し、全ての結晶粒界及び／または結晶粒界相に拡散させることができず、保磁力の高い部分と低い部分のムラが発生し、減磁曲線の角型性が損なわれる虞がある。この場合、蒸発材料の使用効率は、蒸発材料の板厚に依存しないことが確認された。なお、本発明において、焼結磁石と蒸発材料とが対向するといった場合、両者が互いに向き合っている場合だけでなく、例えば、蒸発材料から焼結磁石を視たときに、当該蒸発材料の輪郭から外側に焼結磁石の一部や全部がはみ出しているような場合も含む。

[0008] また、上記課題を解決するために、第２形態に係る本発明の永久磁石の製造方法は、処理室内に、Ｄｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を含有する板状の蒸発材料の少なくとも２枚を、間隔を存して対向配置すると共に、蒸発材料相互の間に鉄－ホウ素－希土類系の焼結磁石の複数個を配置し、減圧下で処理室内を加熱して焼結磁石を所定温度に加熱すると共に蒸発材料を蒸発させ、この蒸発したＤｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を焼結磁石表面への供給量を調節して付着させ、この付着したＤｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を焼結磁石の結晶粒界及び／または結晶粒界相に拡散させ、このとき、前記焼結磁石の各々は、前記蒸発したＤｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種の通過を許容する複数の開口を有する支持部材で支持され、この支持部材の前記蒸発材料との対向面の面積に対する各開口の総面積の割合を４０％以上としたことを特徴とする。

[0009] 以上によれば、蒸発材料の焼結磁石との対向面の面積の総和に対する各焼結磁石の蒸発材料との対向面の面積の総和の割合と、蒸発材料の対向面と各焼結磁石の対向面との間の間隔とを所定範囲に適宜設定しておけば、支持部材の開口率を４０％以上とすることで、一回の真空蒸気処理における蒸発材料の減量に対する各焼結磁石の増量の総和の割合を７５％以上にできることが確認された。ここで、上記割合（開口率）が４０％未満であると、蒸発材料の使用効率が極端に低下する。なお、真空蒸気処理を実施するために焼結磁石や蒸発材料を加熱すると、支持部材もまた加熱されて９００℃前後の温

度まで加熱される。このため、支持部材の加熱と冷却とが繰り返されたとしても、当該支持部材が熱変形しないように上記割合の上限が設定され、例えば支持部材をＭｏ製とした場合、開口率が９５％以下であれば、真空蒸気処理を繰り返しても、磁気特性の向上等にとって影響を与える程、熱変形しないことが確認された。なお、例えば、蒸発材料の焼結磁石との対向面の面積の総和に対する各焼結磁石の蒸発材料との対向面の面積の総和の割合は２０％～１２０％の範囲に設定しておけばよい。

[0010] 本発明において、前記蒸発材料の対向面と各焼結磁石の対向面との間の間隔を０．１ｍｍ～５ｍｍの範囲に設定すれば、確実に一回の真空蒸気処理における蒸発材料の減量に対する各焼結磁石の増量の総和の割合を７５％以上にできる。ここで、上記間隔が０．１ｍｍより短いと、焼結磁石と当該焼結磁石相互の間を隔離するスペーサ部材との融着が発生し、量産性が損なわれる。また、上記間隔が５ｍｍより長くなると、一回の真空蒸気処理を行い得る焼結磁石の数が少なくなって量産性が損なわれる。この場合、蒸発材料相互の間隔は７ｍｍ以下となることが望ましい。

[0011] また、本発明においては、真空排気手段が接続された真空炉内に出入れ自在に収納され、上部が開口した箱部とこの箱部の開口面に着脱自在に装着される蓋部とで構成される箱体により前記処理室が画成されるようにすればよい。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]本発明の永久磁石の製造方法を実施し得る真空蒸気装置の模式断面図。

[図2]処理箱への蒸発材料と焼結磁石との積載を説明する斜視図。

[図3]支持部材としての載置部の模式平面図。

[図4]図１の蒸発材料と焼結磁石との積載の要部を拡大して示す拡大断面図。

[図5]真空蒸気処理の手順を説明するグラフ。

[図6]本発明の効果を確認する実験結果のグラフ。

発明を実施するための形態

[0013] 以下、図面を参照して、蒸発材料ＲＭを重希土類元素たるＤｙ含有のもの

とし、Ｄｙを蒸発させ、その蒸発したＤｙ原子を所定形状に作製された焼結磁石Ｓの表面に付着させ、この焼結磁石の結晶粒界及び／または結晶粒界相に拡散させる一連の処理（真空蒸気処理）を同時に行って高性能永久磁石を製造する実施形態について説明する。以下において、「上」、「下」といった方向を示す用語は図１を基準とする。

[0014] 出発材料たる焼結磁石Ｓは、例えば、次のように作製される。即ち、Ｆｅ、Ｎｄ、Ｂが所定の組成比となるように、工業用純鉄、金属ネオジウム、低炭素フェロボロンを配合して真空誘導炉を用いて溶解し、急冷法、例えばストリップキャスト法により０．０５～０．５ｍｍの合金原料を先ず作製する。あるいは、遠心鋳造法で５～１０ｍｍ程度の厚さの合金原料を作製してもよく、配合の際に、Ｄｙ、Ｔｂ、Ｃｏ、Ｃｕ、Ｎｂ、Ｚｒ、Ａｌ、Ｇａ等を添加しても良い。希土類元素の合計含有量を２８．５％より多くし、α鉄が生成しないインゴットとする。

[0015] 次いで、作製した合金原料を、公知の水素粉砕工程により粗粉砕し、引き続き、ジェットミル微粉砕工程により窒素ガス雰囲気中で微粉砕し、平均粒径３～１０μｍの合金原料粉末を得る。この合金原料粉末を、公知の圧縮成形機を用いて磁界中で所定形状に圧縮成形する。そして、圧縮成形機から取出した成形体を、図示省略した焼結炉内に収納し、真空中で所定温度（例えば、１０５０℃）で所定時間焼結（焼結工程）して得る。焼結磁石Ｓとしては、酸素含有量が少ない程、Ｄｙ原子の結晶粒界及び／または結晶粒界相への拡散速度が速くなるため、焼結磁石Ｓ自体の酸素含有量が３０００ｐｐｍ以下、好ましくは２０００ｐｐｍ以下、より好ましくは１０００ｐｐｍ以下であればよい。そして、このようにして得た焼結磁石Ｓに対し真空蒸気処理を施す。この真空蒸気処理を施す真空蒸気処理装置を図１を用いて以下に説明する。

[0016] 真空蒸気処理装置１は、図１に示すように、ターボ分子ポンプ、クライオポンプ、拡散ポンプなどの真空排気手段２を介して所定圧力（例えば１×１０$^{-5}$Ｐａ）まで減圧して保持できる熱処理炉３を有する。熱処理炉３内には

、後述する処理箱の周囲を囲う断熱材４１とその内側に配置した発熱体４２とから構成される加熱手段４が設けられる。断熱材４１は、例えばＭｏ製であり、また、発熱体４２はＭｏ製のフィラメント（図示せず）を有する電気ヒータで構成され、図示省略した電源からフィラメントに通電し、抵抗加熱式で断熱材４１により囲繞され処理箱が設置される空間５を加熱できる。この空間５には、例えばＭｏ製のテーブル６が設けられ、少なくとも１個の処理箱７が載置できるようになっている。

[0017] 図２～図４も参照して、処理箱７は、上面を開口した直方体形状の箱部７１と、開口した箱部７１の上面に着脱自在な蓋部７２とから構成されている。蓋部７２の外周縁部には下方に屈曲させたフランジ７２ａがその全周に亘って形成され、箱部７１の上面に蓋部７２を装着すると、フランジ７２ａが箱部７１の外壁に嵌合して（この場合、メタルシールなどの真空シールは設けていない）、熱処理炉３と隔絶された処理室７０が画成される。そして、真空排気手段２を作動させて熱処理炉３を所定圧力（例えば、１×１０$^{-5}$Ｐａ）まで減圧すると、処理室７０が、熱処理炉３より高い圧力（例えば、５×１０$^{-4}$Ｐａ）まで減圧される。これにより、付加的な真空排気手段を必要とすることなく、処理室７０内を適宜所定圧力にすることができる。

[0018] 処理箱７の箱部７１には、焼結磁石Ｓ及び板状の蒸発材料ＲＭが互いに接触しないようにスペーサ部材８を介在させて上下に積み重ねて両者が収納される。スペーサ部材８は、焼結磁石Ｓの複数個が互いに接触しないように、かつ、蒸発材料ＲＭの主面（図３中、板面たる上面ＲＭ１及び下面ＲＭ２）に夫々平行となるように並置される載置部８１と、載部８１の長手方向（図１中、左右方向）両側に上下方向に延出させて夫々設けられる板状の支持部８２とで構成される。載置部８１と支持部８２とは、複数本の線材８１（例えばφ０．１～１０ｍｍ）を格子状に組付けて構成されている。また、図３に示すように、複数本の線材８１ａ（例えばφ０．１～１０ｍｍ）を格子状に組付けたとき、各線材８１ａで囲繞される空間が開口８１ｂとなる。焼結磁石Ｓと蒸発材料ＲＭとを上下に積み重ねたとき、支持部８２が、当該支持

部８２の直上または直下に位置する蒸発材料ＲＭの上面ＲＭ１及び下面ＲＭ２の外周縁部に夫々当接するように載置部８１の面積が設定されている。そして、載置部８１の蒸発材料ＲＭとの対向面ＲＭ１，ＲＭ２の面積に対する各開口の総面積の割合（開口率）を４０％以上としている。

[0019] 上記実施形態では、上記の如く、載置部８１の面積を設定しているが、蒸発材料ＲＭの対向面ＲＭ１，ＲＭ２の面積より大きく、つまり、例えば、蒸発材料ＲＭから焼結磁石Ｓを視たときに、当該蒸発材料ＲＭの輪郭から外側に、並設した各焼結磁石Ｓのうち最外側に位置するものの一部や全部がはみ出して設置できるように載置部８１の面積を設定することもでき、このような場合でも開口８１ｂの総面積が上記割合であればよい。また、開口８１ｂの形状は矩形に限定されるものではなく、円形や多角形であってもよい。更に、図３中、載置部８１の外周に位置する線材８１ａを、開口部８１ｂの面積が比較的小さくなるように狭いピッチで組付けて構成したり、また、この線材８１ａを他のものと比較して線径の大きいものとしたり（図示せず）、または、載置部８１の外周縁部にリブを設けたりして補強してもよい。また、支持部材として載置部８１は、蒸発した金属原子の通過を許容するものであればこれに限定されるものではなく、例えば所謂エキスパンドメタルを用いることができる。

[0020] ここで、上記割合が４０％未満であると、蒸発材料ＲＭの使用効率が極端に低下する。

なお、真空蒸気処理を実施するために焼結磁石Ｓや蒸発材料ＲＭを加熱すると、載置部８１もまた加熱されて９００℃前後の温度まで加熱される。このため、載置部８１の加熱と冷却とが繰り返されたとしても、載置部８１が熱変形しないように上記割合の上限が設定され、例えば載置部８１をＭｏ製とした場合、上記割合が９５％以下であれば、真空蒸気処理を繰り返しても、磁気特性の向上等にとって影響を与える程、熱変形しない。

[0021] 処理箱７やスペーサ部材８は、Ｍｏ製の他、例えば、Ｗ、Ｖ、Ｎｂ、Ｔａまたはこれらの合金（希土類添加型Ｍｏ合金、Ｔｉ添加型Ｍｏ合金などを含

む）やＣａＯ、Y_2O_3、或いは希土類酸化物から製作するか、またはこれらの材料を他の断熱材の表面に内張膜として成膜したものから構成できる。これにより、蒸発材料ＲＭと反応してその表面に反応生成物が形成されることが防止できる。

[0022] また、蒸発材料ＲＭの上面ＲＭ１及び下面ＲＭ２と、各焼結磁石Ｓの対向面Ｓ１，Ｓ２との間の間隔Ｄ１，Ｄ２は、０．１ｍｍ～５ｍｍの範囲で同等になるように設定され、蒸発材料ＲＭの上面ＲＭ１と下面ＲＭ２との間隔Ｄ３は７ｍｍ以下となるように設定される。これにより、蒸発したＤｙ原子が理想的に供給され、磁化および保磁力が一層向上または回復し、かつ、減磁曲線の角型性が損なわれることのない高性能磁石が生産性良く得られる。上記間隔Ｄ１，Ｄ２が０．１ｍｍより短いと、焼結磁石Ｓと当該焼結磁石Ｓ相互の間を隔離するスペーサ部材８との融着が発生し、量産性が損なわれる。また、上記間隔Ｄ１，Ｄ２が５ｍｍより長くなると、一回の真空蒸気処理を行い得る焼結磁石の数が少なくなって量産性が損なわれる。なお、支持部８２の形態は上記に限定されるものではなく、例えばＭｏ製の中実筒体からなる高さ調節用治具（図示せず）を用いて、上記間隔Ｄ１～Ｄ３を適宜調節する構成を採用してもよく、このような場合には、スペーサ部材８の載置部８１の面積を蒸発材料ＲＭの上面ＲＭ１及び下面ＲＭ２の面積より大きく設定することができる（この場合、蒸発材料ＲＭから焼結磁石Ｓを視たときに、当該蒸発材料ＲＭの輪郭から外側に焼結磁石Ｓの一部や全部がはみ出す）。

[0023] 蒸発材料ＲＭとしては、主相の結晶磁気異方性を大きく向上させるＤｙの他、ＴｂやＨｏを用いることができ、また、これらにＮｄ、Ｐｒ、Ａｌ、Ｃｕ及びＧａ等の一層保磁力を高める金属を配合した合金（Ｄｙ、Ｔｂの質量比が５０％以上）を用いることができる。そして、上記各金属を所定の混合割合で配合した後、例えばアーク溶解炉で溶解した後、所定の厚さの板状に形成されている。なお、本実施形態では、一枚の板状の蒸発材料ＲＭを各焼結磁石Ｓに対向配置する場合を例に説明しているが、これに限定されるものではなく、例えば、複数枚の蒸発材料を同一面内に並置して構成することが

できる。そして、処理箱７への積載する場合には、先ず、箱部７１の底面に板状の蒸発材料ＲＭを設置し、その上に、焼結磁石Ｓの複数個を載置したスペーサ部材８を載置し、支持部８２の上端で支持されるように他の蒸発材料ＲＭを設置する。このようにして、処理箱７の上端部まで蒸発材料ＲＭと焼結磁石Ｓの複数個が並置されたスペーサ部材８とを階層状に交互に積み重ねていく。尚、最上階のスペーサ部材８の上方においては、蓋部７２が近接して位置するため、蒸発材料ＲＭを省略することもできる。

[0024] ところで、蒸発材料ＲＭは、資源的に乏しく、安定供給も望めない虞があるため、蒸発材料ＲＭの使用効率、つまり、一回の真空蒸気処理における蒸発材料ＲＭの減量に対する各焼結磁石Ｓの増量の総和の割合を如何に高めるかが、低コスト化を図る上でも重要となる。そこで、本実施形態では、鋭意研究の結果、蒸発材料ＲＭの焼結磁石Ｓとの対向面Ｒ１，Ｒ２の面積と、各焼結磁石Ｓの蒸発材料ＲＭとの対向面Ｓ１，Ｓ２の面積との関係に着目し、蒸発材料ＲＭの対向面Ｒ１，Ｒ２の面積の総和に対する各焼結磁石Ｓの対向面Ｓ１，Ｓ２の面積の総和の割合を２０％～１２０％の範囲、好ましくは、２０％～８０％の範囲に設定すればよいとの知見を得た。

[0025] 以上によれば、１個の処理箱７内に収納される焼結磁石Ｓの数を増加させて（積載量増加）、量産性を高めることができ、しかも、スペーサ部材８（同一平面）に並置した焼結磁石Ｓの上下を板状の蒸発材料ＲＭで挟む所謂サンドイッチ構造とすることで、処理室７０内で全ての焼結磁石Ｓの近傍に蒸発材料ＲＭが位置し、当該蒸発材料ＲＭたるＤｙを蒸発させたときに、この蒸発させたＤｙ原子が各焼結磁石Ｓ表面に供給されて付着するようになる。その結果、一回の真空蒸気処理における蒸発材料ＲＭの減量に対する各焼結磁石Ｓの増量の総和の割合を７５％以上にできる。ここで、上記割合が２０％未満であると、蒸発材料ＲＭの使用効率が極端に低下し、また、上記割合が１２０％を超えると、焼結磁石Ｓ表面に蒸発したものが付着しない部分が発生し、全ての結晶粒界及び／または結晶粒界相に拡散させることができず、保磁力の高い部分と低い部分のムラが発生し、減磁曲線の角型性が損なわ

れる虞がある。

[0026] また、上記の如く、処理箱７内においてサンドイッチ構造で蒸発材料ＲＭと焼結磁石Ｓとを上下に積み重ねた状態で、蒸発材料ＲＭを蒸発させると、蒸発したＤｙ原子の直進性の影響を強く受ける虞がある。つまり、載置部８１に並置した各焼結磁石Ｓのうち、蒸発材料ＲＭとの対向面Ｓ１，Ｓ２にＤｙ原子が局所的に付着し易くなる一方で、各焼結磁石Ｓのスペーサ部材８との当接面において線材８１の影となる部分にＤｙ原子が供給され難くなる。このため、上記真空蒸気処理を施すと、得られた永久磁石には局所的に保磁力の高い部分と低い部分とが存在し、その結果、減磁曲線の角型性が損なわれる虞がある。このため、真空チャンバ３に不活性ガス導入手段９を設けるようにした。

[0027] 不活性ガス導入手段９は、断熱材４１で囲繞された空間５に通じるガス導入管９１を有し、ガス導入管９１がマスフローコントローラ９２を介し図外の不活性ガスのガス源に連通している。そして、真空蒸気処理の間において、Ｈｅ、Ａｒ、Ｎｅ、Ｋｒ等の不活性ガスを一定量で導入するようにした。真空蒸気処理中に不活性ガスの導入量を変化させるようにしてもよい（当初に不活性ガスの導入量を多くし、その後に少なくしたり若しくは当初に不活性ガスの導入量を少なくし、その後に多くしたり、または、これらを繰り返す）。不活性ガスは、例えば、蒸発材料ＲＭが蒸発を開始後や設定された加熱温度に達した後に導入され、設定された真空蒸気処理中、または、その前後の所定時間だけ導入すればよい。また、不活性ガスを導入したとき、熱処理炉３内の不活性ガスの分圧が調節できるように、真空排気手段２に通じる排気管に開閉度が調節自在なバルブ２１を設けておくことが好ましい。

[0028] これにより、空間５に導入された不活性ガスが処理箱７内にも導入され、このとき、Ｄｙ原子の平均自由行程が短いことから、不活性ガスにより処理箱７内で蒸発したＤｙ原子が拡散し、直接焼結磁石Ｓ表面に付着する金属原子の量が減少すると共に、複数の方向から焼結磁石Ｓ表面に供給されるようになる。このため、当該焼結磁石Ｓと蒸発材料ＲＭとの間の間隔が狭い場合

（例えば５ｍｍ以下）でも、スペーサ部材８を構成する線材の影となる部分まで蒸発したＤｙ原子が回り込んで付着する。その結果、Ｄｙ原子が結晶粒内に過剰に拡散し、最大エネルギー積及び残留磁束密度を低下させるといった不具合が生じない。しかも、局所的に保磁力の高い部分と低い部分とが存在することが抑制でき、減磁曲線の角型性が損なわれることを防止できる。

[0029] 以下に、図５を参照して、昇温工程、蒸気処理工程及びアニール工程の各工程を経て行われる本実施形態の永久磁石の製造方法について具体的に説明する。先ず、上記の如く、複数個の焼結磁石Ｓと板状の蒸発材料ＲＭとをスペーサ部材８を介して交互に積み重ねて箱部７１に両者を積載する。そして、箱部７１の開口した上面に蓋部７２を装着した後、熱処理炉３内で加熱手段４によって囲繞された空間５内でテーブル６上に処理箱７を設置し（図１参照）、昇温工程を開始する。

[0030] 昇温工程においては、真空排気手段２を介して熱処理炉３を所定圧力（例えば、１×１０$^{-4}$Ｐａ）に達するまで真空引きして減圧する。このとき、処理室７０は、熱処理炉３より高い圧力に真空引きされる。熱処理炉３が所定圧力に達すると、加熱手段４を作動させて処理室７０を加熱する。この状態では、真空チャンバ３及び処理室７０内の圧力は略一定である。また、処理室７０内の圧力を真空排気手段２の排気速度を一定に保持する等により０．１Ｐａ以下、好ましくは１０$^{-2}$Ｐａ以下、より好ましくは１０$^{-4}$Ｐａ以下に保持する（図４中のＡ部参照）。この場合、例えば焼結磁石Ｓからの放出ガスにより圧力が高くなる場合もあるが、以下のように不活性ガスを導入するまでの時間のうち約７割が上記圧力範囲に含まれればよい。これにより、焼結磁石Ｓに酸素などの不純物が取り込まれ難くなって、磁化および保磁力が一層向上または回復できる。

[0031] 処理室７０内の温度が所定温度に達すると、蒸発材料ＲＭが、処理室７０と略同温まで加熱されて蒸発を開始し、処理室７０内にＤｙ蒸気雰囲気が形成される。このとき、蒸発温度になる前に１～１００ｋＰａの不活性ガスを導入してＤｙの蒸発を抑制してもよい。そして、蒸発開始後、処理室７０内

の温度が所定温度に達すると、バルブ２１の開度を調節して熱処理炉３内の不活性ガスの圧力を調節する。これにより、不活性ガスが処理箱７内にも導入され、当該不活性ガスにより処理室７０内で蒸発した金属原子が拡散される。蒸発材料ＲＭが蒸発を開始した場合、焼結磁石Ｓと蒸発材料ＲＭとを相互に接触しないように配置されているため、溶けた蒸発材料ＲＭが、表面Ｎｄリッチ相が溶けた焼結磁石Ｓに直接付着することはない。そして、略一定な温度で所定時間保持する蒸気処理工程へと移行する。

[0032] 蒸気処理工程では、処理箱７内で拡散されたＤｙ蒸気雰囲気中のＤｙ原子が、直接または衝突を繰返して複数の方向から、Ｄｙと略同温まで加熱された各焼結磁石Ｓの表面略全体に向かって夫々供給されて付着し、この付着したＤｙが焼結磁石Ｓの結晶粒界及び／または結晶粒界相に拡散されて永久磁石Ｍが得られる。ここで、Ｄｙの層（薄膜）が形成されるように、Ｄｙ蒸気雰囲気中のＤｙ原子が焼結磁石Ｓの表面に供給されると、焼結磁石Ｓの表面で付着して堆積したＤｙが再結晶したとき、永久磁石の表面を著しく劣化させ（表面粗さが悪くなる）、また、処理中に略同温まで加熱されている焼結磁石Ｓの表面に付着して堆積したＤｙが溶解して焼結磁石Ｓの表面に近い領域における粒界内に過剰に拡散し、磁気特性を効果的に向上または回復させることができない。つまり、焼結磁石Ｓの表面にＤｙの薄膜が一度形成されると、薄膜に隣接した焼結磁石Ｓの表面の平均組成はＤｙリッチ組成となり、Ｄｙリッチ組成になると、液相温度が下がり、焼結磁石Ｓ表面が溶けるようになる（即ち、主相が溶けて液相の量が増加する）。その結果、焼結磁石Ｓ表面付近が溶けて崩れ、凹凸が増加することとなる。その上、Ｄｙが多量の液相と共に結晶粒内に過剰に侵入し、磁気特性を示す最大エネルギー積及び残留磁束密度がさらに低下する。

[0033] そこで、Ｄｙの蒸発量をコントロールするため、加熱手段４を制御して処理室７０内の温度を８００℃～１０５０℃、好ましくは８５０℃～９５０℃の範囲に設定することとした（例えば、処理室内温度が９００℃～１０００℃のとき、Ｄｙの飽和蒸気圧は約1×10^{-2}～1×10^{-1}Ｐａとなる）。処

理室７０内の温度（ひいては、焼結磁石Ｓの加熱温度）が８００℃より低いと、焼結磁石Ｓの表面に付着したＤｙ原子の結晶粒界及び／または結晶粒界層への拡散速度が遅くなり、焼結磁石Ｓの表面に薄膜が形成される前に焼結磁石の結晶粒界及び／または結晶粒界相に拡散させて均一に行き渡らせることができない。他方、１０５０℃を超えた温度では、Ｄｙの蒸気圧が高くなって蒸気雰囲気中のＤｙ原子が焼結磁石Ｓの表面に過剰に供給される虞がある。また、Ｄｙが結晶粒内に拡散する虞があり、Ｄｙが結晶粒内に拡散すると、結晶粒内の磁化を大きく下げるため、最大エネルギー積及び残留磁束密度がさらに低下することになる。

[0034] それに併せて、バルブ２１の開閉度を変化させて、熱処理炉３内の導入した不活性ガスの分圧が１ｋＰａ～３０ｋＰａの範囲となるようにした。１ｋＰａより低いと、Ｄｙの強い直進性の影響を受けて、Ｄｙ原子が局所的に焼結磁石Ｓに付着し、減磁曲線の角型性が損なわれる。他方、３０ｋＰａを超えると、不活性ガスによりＤｙの蒸発が抑制され、Ｄｙ原子が効率よく焼結磁石Ｓ表面に供給されず、処理時間が過剰に長くなる。これにより、蒸発材料ＲＭの蒸発量をコントロールしつつ、不活性ガスの導入でＤｙ原子を処理箱内で拡散させることで、焼結磁石ＳのへのＤｙ原子の供給量を抑制しながらその表面全体にＤｙ原子を付着させることと、焼結磁石Ｓを所定温度範囲で加熱することによって拡散速度が早くなることとが相俟って、焼結磁石Ｓの表面に付着したＤｙ原子を、焼結磁石Ｓの表面で堆積してＤｙ層（薄膜）を形成する前に焼結磁石Ｓの結晶粒界及び／または結晶粒界相に効率よく拡散させて均一に行き渡らせることができる。

[0035] その結果、永久磁石の表面が劣化することが防止され、また、焼結磁石の表面に近い領域の粒界内にＤｙが過剰に拡散することが抑制され、結晶粒界相にＤｙリッチ相（Ｄｙを５～８０体積％の範囲で含む相）を有し、さらには結晶粒の表面付近にのみＤｙが拡散することで、磁化および保磁力が効果的に向上または回復する。しかも、処理室７０を10^{-4}Ｐａまで真空引きし、昇温工程においても所定圧力に保持し、その後に不活性ガスを導入しつつ

真空蒸気処理を施すことで、永久磁石の表面に酸素などの不純物が取り込まれ難くなり、上記真空蒸気処理により得られた永久磁石の酸素含有量は、当該真空蒸気処理前の焼結磁石Ｓと略同等であり、その上、仕上げ加工が不要な生産性に優れた高性能永久磁石Ｍとなる。

[0036] 焼結磁石Ｓの表面へのＤｙ原子の供給量を調節する時間を４～１００時間の範囲とする。４時間より短い時間では、焼結磁石Ｓの結晶粒界及び／または結晶粒界相に金属原子を効率よく拡散させることができず、減磁曲線の角型性が損なわれる。他方、１００時間を超えると、焼結磁石Ｓの表面付近の結晶粒内に金属原子が入り込み、局所的に保磁力の高い部分と低い部分とが生じ、前記同様に減磁曲線の角型性が損なわれる。最後に、上記のような処理が所定時間だけ実施されると、アニール工程へと移行する。アニール工程においては、加熱手段４の作動を停止させると共に、ガス導入手段による不活性ガスの導入を一旦停止する。引き続き、不活性ガスを再度導入し（１００ｋＰａ）、蒸発材料ＲＭの蒸発を停止させる。これにより、Ｄｙの蒸発が止まり、その供給が止まる。なお、不活性ガスの導入を停止せず、その導入量のみを増加させて蒸発を停止させるようにしてもよい。そして、処理室７０内の温度を例えば５００℃まで一旦下げる。引き続き、加熱手段４を再度作動させ、処理室７０内の温度を４５０℃～６５０℃の範囲に設定し、一層保磁力を向上または回復させるために、熱処理を施す。そして、略室温まで急冷し、処理箱７を熱処理炉３から取り出す。

[0037] 次に、上述の本発明の効果を確認するために次の実験（第１実験）を行った。本第１実験では、図１に示す真空蒸気処理装置１を用い、次の焼結磁石Ｓに真空蒸気処理を施して永久磁石を得た。焼結磁石Ｓとしては、工業用純鉄、金属ネオジウム、低炭素フェロボロン、電解コバルト、純銅を原料として、配合組成（重量％）が、２５Ｎｄ－７Ｐｒ－１Ｂ－０．０５Ｃｕ－０．０５Ｇａ－０．０５Ｚｒ－Ｂａｌ Ｆｅとなるようにして、真空誘導溶解を行い、ストリップキャスティング法で厚さ約０．３ｍｍの薄片状インゴットを得た。次に、水素粉砕工程により一旦粗粉砕し、引き続き、例えばジェット

ミル微粉砕工程により微粉砕して、合金原料粉末を得た。この合金原料粉末を公知の構造を有する横磁場圧縮成形装置を用いて成形体を得て、次いで、真空焼結炉にて１０５０℃の温度下で２時間焼結させて焼結磁石Ｓを得た。そして、ワイヤカットにより焼結磁石を２×４０×４０ｍｍの形状に加工した後、表面粗さが１０μｍ以下となるように仕上げ加工した後、希硝酸によって表面をエッチングした。このとき、焼結磁石Ｓの磁気特性の平均は、最大エネルギー積が４７．１ＭＧＯｅ、残留磁束密度が１４．２ｋＧ、保磁力が１１．４ｋＯｅであった（ＢＨカーブトレーサーにより測定）。

[0038] 次に、図１に示す真空蒸気処理装置１を用い、上記のようにそれぞれ作製した焼結磁石Ｓに対し（各１０個）、真空蒸気処理を施した。この場合、蒸発材料ＲＭとして厚さ１ｍｍ、対向面ＲＭ１，ＲＭ２の面積が各々２２５００ｍｍ^{2}となるように形成したＤｙ（９９％）を用い、当該蒸発材料ＲＭと、複数個の焼結磁石ＳとをＭｏ製の処理箱７にスペーサ部材８を介在させて積載した。この場合、蒸発材料ＲＭの上面ＲＭ１と下面ＲＭ２との間隔Ｄ３は４ｍｍとなるようにスペーサ部材８を形成した。真空蒸気処理の条件は、熱処理炉３内の圧力が１０$^{-4}$Ｐａに達した後、加熱手段４を作動させ、処理室７０内の温度を９５０℃、処理時間を３時間に設定して上記処理を行った。そして、開口率５３％に設定し、蒸発材料ＲＭの対向面ＲＭ１，ＲＭ２の面積の総和に対する各焼結磁石Ｓの対向面Ｓ１，Ｓ２の面積の総和の割合を１５％、１８％、３０％、４０％、６０％及び８０％に夫々設定した。

[0039] 図６は、上記各条件で永久磁石を得たときの一回の真空蒸気処理における蒸発材料の減量に対する各焼結磁石の増量の総和の割合（Ｄｙ使用効率％）を測定したときの結果を示す。これによれば、蒸発材料ＲＭの対向面Ｒ１，Ｒ２の面積の総和に対する各焼結磁石Ｓの対向面Ｓ１，Ｓ２の面積の総和の割合が１８％を超えると、Ｄｙの使用効率を７５％以上となることが確認できる。この場合、永久磁石の磁気特性の平均は、最大エネルギー積が４７．８ＭＧＯｅ、残留磁束密度が１４．１ｋＧ、保磁力が１８．２ｋＯｅであり、保磁力が効果的に高められていた。但し、蒸発材料ＲＭの対向面ＲＭ１，

ＲＭ２の面積の総和に対する各焼結磁石Ｓの対向面Ｓ１，Ｓ２の面積の総和の割合が７５％を超えると、保磁力が１５．０ｋＯｅとなり、Ｄｙの使用効率は高くできるものの、磁気特性を効果的に高めることができないことが判った。

[0040] 次に、上記同様、図１に示す真空蒸気処理装置１を用い、上記同様に作製した焼結磁石Ｓに真空蒸気処理を施して永久磁石を得る第２実験を行った。先ず、図１に示す真空蒸気処理装置１を用い、上記のようにそれぞれ作製した焼結磁石Ｓに対し（各１０個）、真空蒸気処理を施した。この場合、蒸発材料ＲＭとして厚さ１ｍｍ、対向面ＲＭ１，ＲＭ２の面積が各々２２５００ｍｍ^{2}となるように形成したＤｙ（９９％）を用い、当該蒸発材料ＲＭと、複数個の焼結磁石ＳとをＭｏ製の処理箱７にスペーサ部材８を介在させて積載した。この場合、蒸発材料ＲＭの上面ＲＭ１と下面ＲＭ２との間隔Ｄ３は４ｍｍとなるようにスペーサ部材８を形成した。真空蒸気処理の条件は、熱処理炉３内の圧力が１０$^{-4}$Ｐａに達した後、加熱手段４を作動させ、処理室７０内の温度を９５０℃、処理時間を３時間に設定して上記処理を行った。そして、蒸発材料ＲＭの対向面ＲＭ１，ＲＭ２の面積と、各焼結磁石Ｓの対向面Ｓ１，Ｓ２の面積の総和の割合が６０％となるように載置台８１に設置する焼結磁石Ｓの数を設定し、載置部８１の蒸発材料ＲＭとの対向面ＲＭ１，ＲＭ２の面積に対する各開口の総面積の割合（開口率）を３５％、４３％、５３％、お及び７５％に設定した。

[0041] 以上の実験によれば、開口率が３５％の場合、保持力を１８．４ｋＯｅまで高めることができたものの、上記各条件で永久磁石を得たときの一回の真空蒸気処理における蒸発材料の減量に対する各焼結磁石の増量の総和の割合（Ｄｙ使用効率％）が３９％であった。それに対して、開口率が４０％を超えると、約７０％のＤｙ使用効率を達成でき、しかも、開口率が７５％の場合には、Ｄｙ使用効率が約９５％まで高めることができた。この場合もまた、上記同様、保磁力（１８．４ｋＯｅ）を高めることができた。

[0042] 以上、本発明の実施形態について説明したが、本発明は上記のものに限定

されるものではない。上記実施形態では、複数本の線材８１を格子状に組付けて構成されるスペーサ部材８を用いるものを例に説明したが、これに限定されるものではなく、蒸発材料ＲＭの対向面Ｒ１，Ｒ２の面積の総和に対する各焼結磁石Ｓの対向面Ｓ１，Ｓ２の面積の総和の割合や、蒸発材料ＲＭ相互の距離及び蒸発材料ＲＭと焼結磁石Ｓとの距離が上記の如く設定できるものであれば、その形態は問わない。複数本の線材８１を格子状に組付けてスペーサ部材８を構成する場合、その開口率が４０％以上となることが好ましく、また、処理箱７にスペーサ部材８に載置した焼結磁石Ｓを収納するときに焼結磁石が落下しないように、支持部８２のない載置部の側面にメッシュ状の保護枠（図示せず）を設けてもよい。

[0043] また、上記実施の形態では、蒸発材料ＲＭとしてＤｙを用いるものを例として説明したが、最適な拡散速度を早くできる焼結磁石Ｓの加熱温度範囲で蒸気圧が低いＴｂ、Ｈｏを用いることができる。例えば、Ｔｂを用いる場合、処理室７０を９００℃～１１５０℃の範囲で加熱すればよい。９００℃より低い温度では、焼結磁石Ｓ表面にＴｂ原子を供給できる蒸気圧に達しない。他方、１１５０℃を超えた温度では、Ｔｂが結晶粒内に過剰に拡散してしまい、最大エネルギー積及び残留磁束密度を低下させる。

[0044] 更に、上記実施の形態では、箱部７１の上面に蓋部７２を装着して処理箱７を構成するものについて説明したが、熱処理炉３と隔絶されかつ熱処理炉３を減圧するのに伴って処理室７０が減圧されるものであれば、これに限定されるものではなく、例えば、箱部７１に蒸発材料ＲＭと焼結磁石Ｓを収納した後、その上面開口を例えばＭｏ製の薄で覆うようにしてもよい。

符号の説明

[0045] １…真空蒸気処理装置、２… 真空排気手段、３… 真空チャンバ、４… 加熱手段、７… 処理箱、７１… 箱部、７２… 蓋部、８… スペーサ部材、８１…載置部、８２…支持部、１０… ガス導入管（ガス導入手段）、１１… バルブ、Ｓ… 焼結磁石、ＲＭ…蒸発材料。

請求の範囲

[請求項1] 処理室内に、Ｄｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を含有する板状の蒸発材料の少なくとも２枚を、間隔を存して対向配置すると共に、蒸発材料相互の間に鉄－ホウ素－希土類系の焼結磁石の複数個を配置し、減圧下で処理室内を加熱して焼結磁石を所定温度に加熱すると共に蒸発材料を蒸発させ、この蒸発したＤｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を焼結磁石表面への供給量を調節して付着させ、この付着したＤｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を焼結磁石の結晶粒界及び／または結晶粒界相に拡散させる永久磁石の製造方法において、

前記蒸発材料の焼結磁石との対向面の面積の総和に対する各焼結磁石の蒸発材料との対向面の面積の総和の割合を２０％～１２０％の範囲に設定することを特徴とする永久磁石の製造方法。

[請求項2] 処理室内に、Ｄｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を含有する板状の蒸発材料の少なくとも２枚を、間隔を存して対向配置すると共に、蒸発材料相互の間に鉄－ホウ素－希土類系の焼結磁石の複数個を配置し、減圧下で処理室内を加熱して焼結磁石を所定温度に加熱すると共に蒸発材料を蒸発させ、この蒸発したＤｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を焼結磁石表面への供給量を調節して付着させ、この付着したＤｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種を焼結磁石の結晶粒界及び／または結晶粒界相に拡散させる永久磁石の製造方法において、

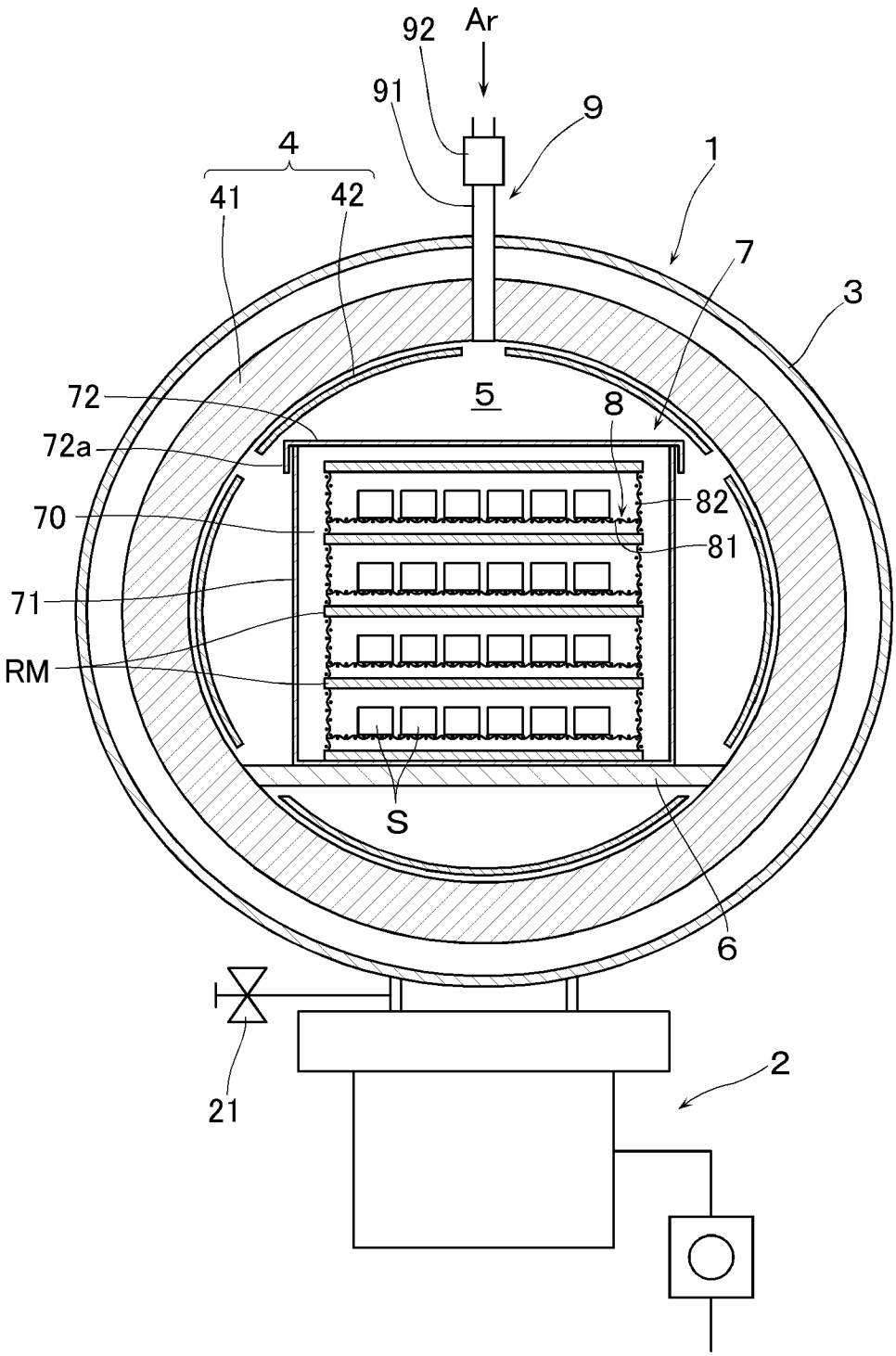
前記焼結磁石の各々は、前記蒸発したＤｙ、Ｔｂ及びＨｏの中から選択された少なくとも１種の通過を許容する複数の開口を有する支持部材で支持され、この支持部材の前記蒸発材料との対向面の面積に対する各開口の総面積の割合を４０％以上としたことを特徴とする永久磁石の製造方法。

[請求項3] 前記蒸発材料の対向面と各焼結磁石の対向面との間の間隔を０．１

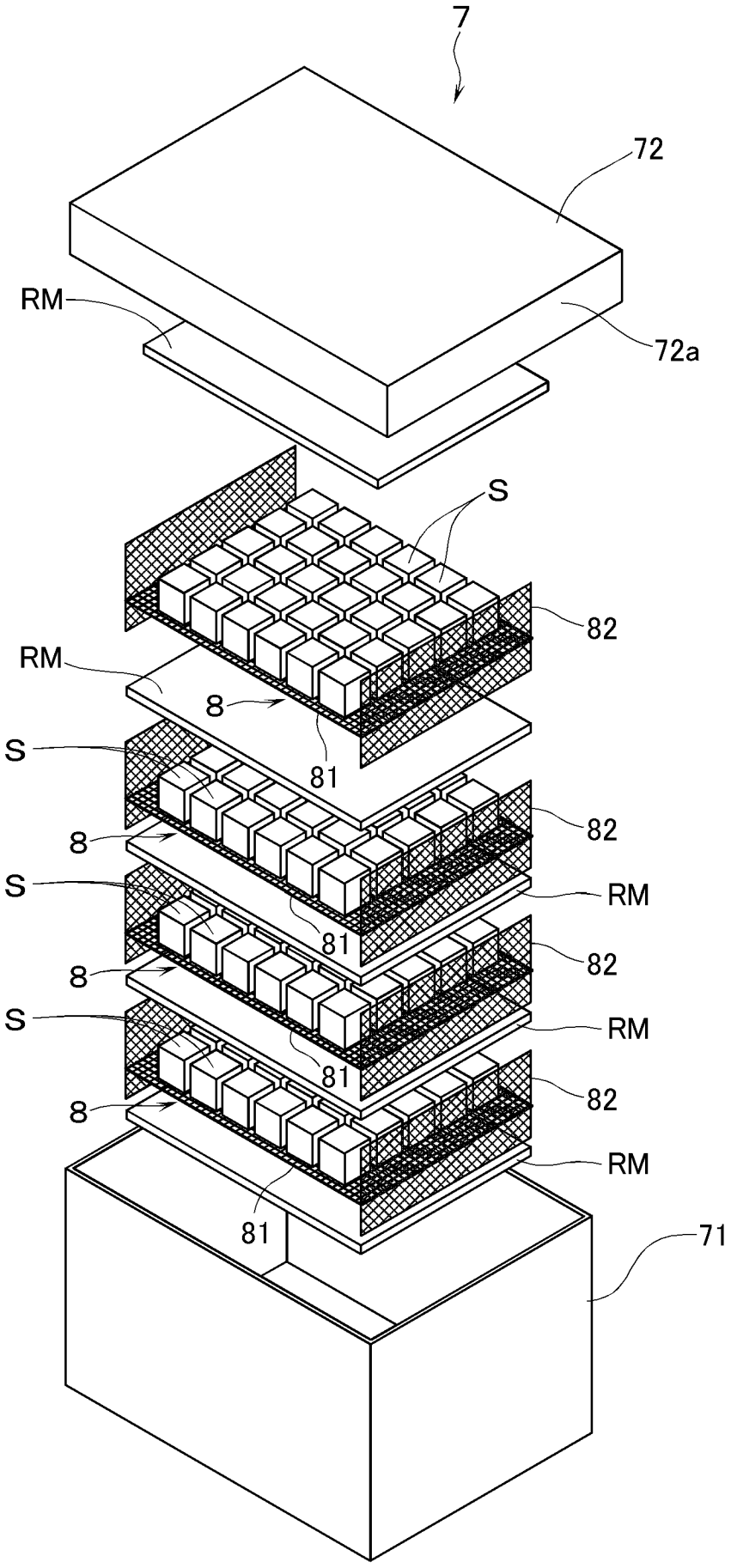
ｍｍ～５ｍｍの範囲に設定することを特徴とする請求項１記載の永久磁石の製造方法。

[請求項4] 真空排気手段が接続された真空炉内に出入れ自在に収納され、上部が開口した箱部とこの箱部の開口面に着脱自在に装着される蓋部とで構成される箱体により前記処理室が画成されるようにしたことを特徴とする請求項１または請求項２記載の永久磁石の製造方法。

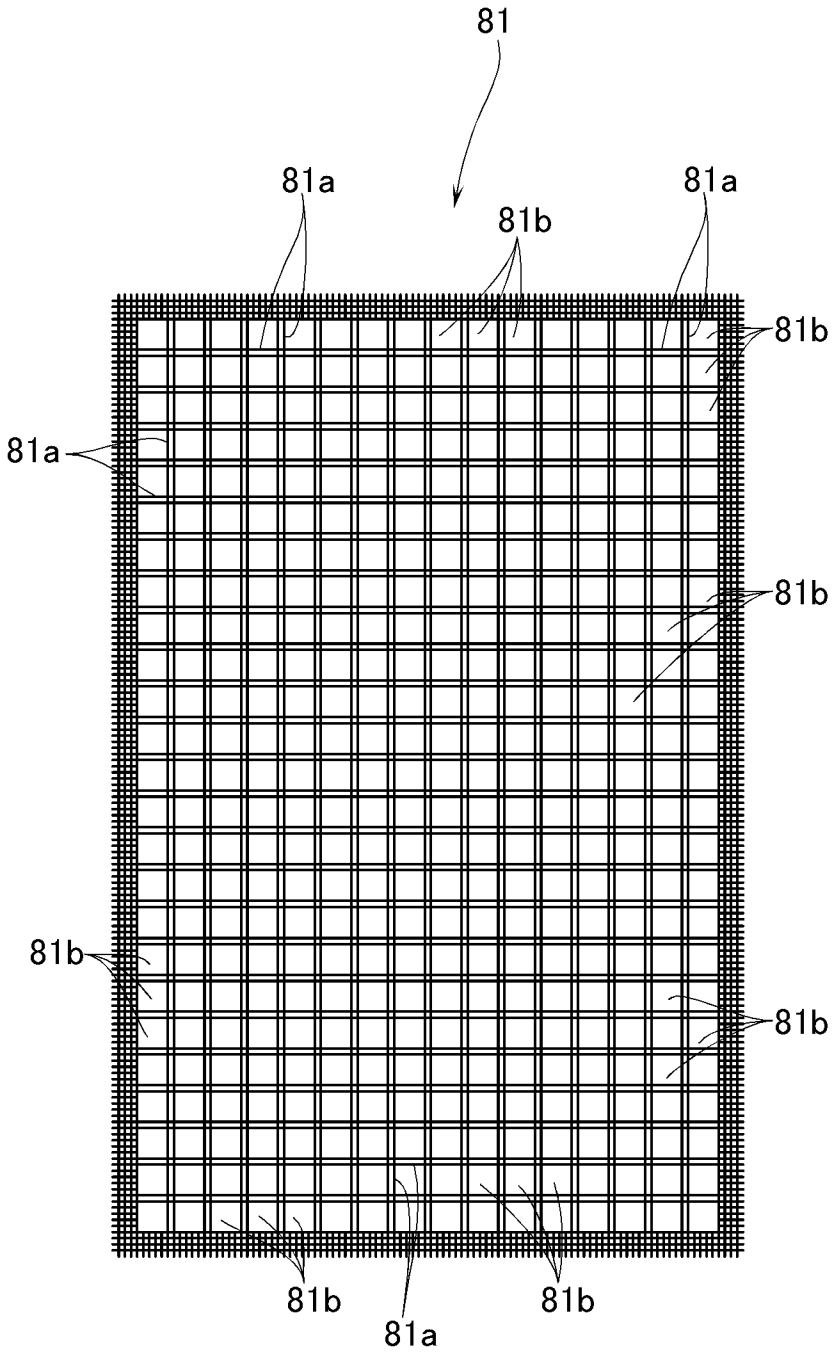
[図1]



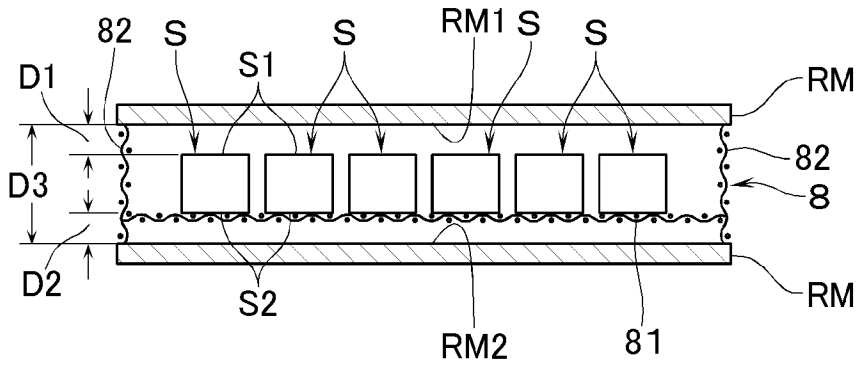
[図2]



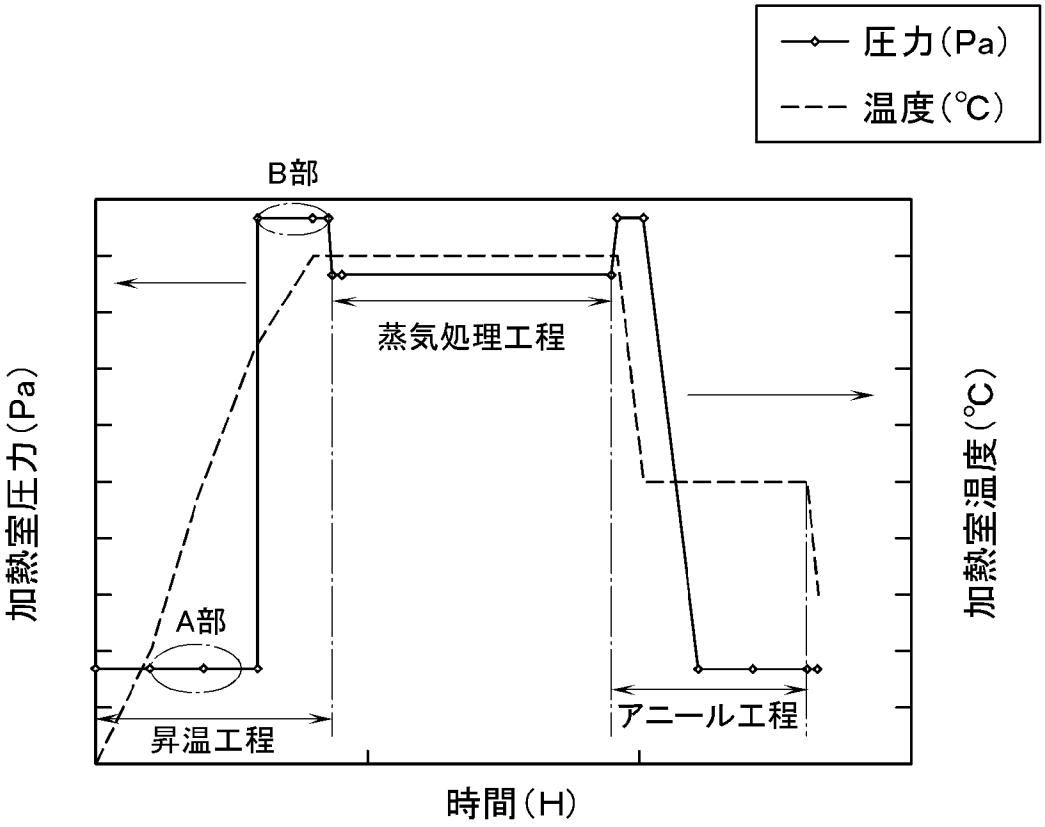
[図3]



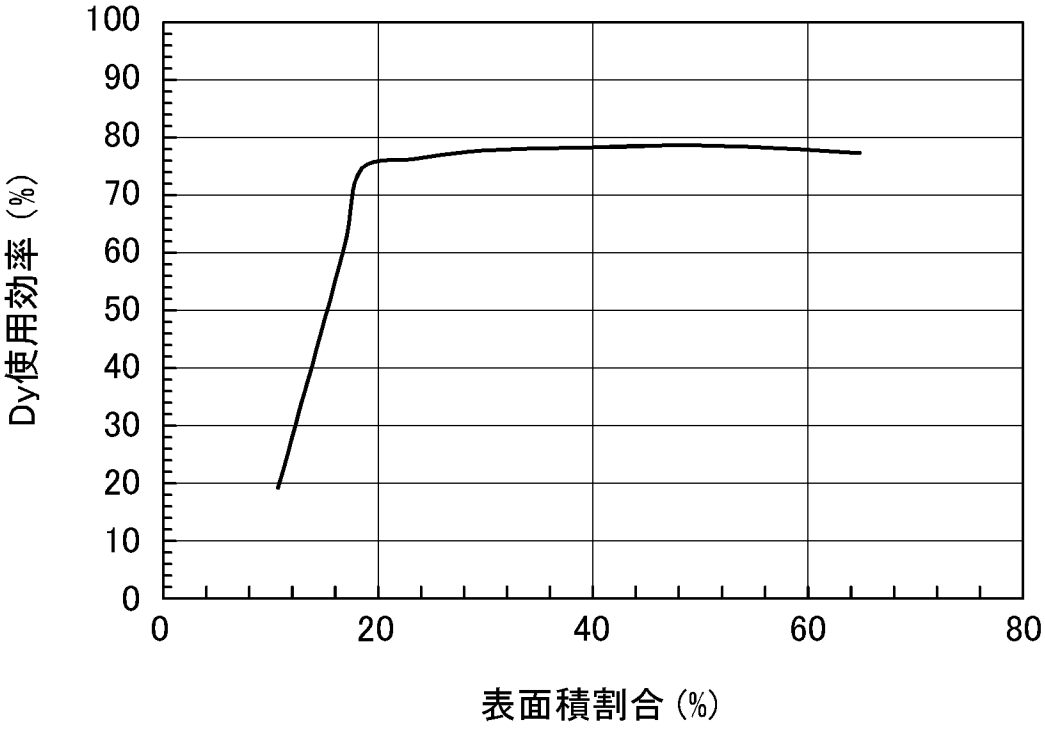
[図4]


82
S
S
RM1
S
S
D1
S1
RM
82
D3
8
D2
S2
RM
RM2
81

[図5]


圧力(Pa)
温度(℃)
B部
蒸気処理工程
加熱室圧力(Pa)
加熱室温度(℃)
A部
昇温工程
アニール工程
時間(H)

[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2013/006810

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
H01F41/02(2006.01)i, *B22F3/00*(2006.01)i, *B22F3/24*(2006.01)i, *C22C33/02*(2006.01)i, *C22C38/00*(2006.01)i, *H01F1/057*(2006.01)i, *H01F1/08*(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)
H01F41/02, B22F3/00, B22F3/24, C22C33/02, C22C38/00, H01F1/057, H01F1/08

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	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

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.
X Y	JP 2009-124150 A (Hitachi Metals, Ltd.), 04 June 2009 (04.06.2009), claims; paragraphs [0106] to [0199]; fig. 1 & JP 2008-263223 A & JP 2008-283205 A & JP 2008-300853 A & JP 4241900 B & US 2008/0286595 A1 & US 2012/0229240 A1 & EP 1993112 A1 & WO 2007/102391 A1 & CN 101331566 A & KR 10-2008-0097334 A & CN 101651038 A & SG 170075 A & CN 103227022 A	1,3 4
X Y	JP 2009-135393 A (Ulvac, Inc.), 18 June 2009 (18.06.2009), claims; paragraphs [0059] to [0063]; fig. 1 to 7 (Family: none)	2,4 4

☒ 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	Date of mailing of the international search report
18 February, 2014 (18.02.14)	25 February, 2014 (25.02.14)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2013/006810

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	WO 2011/004867 A1 (Hitachi Metals, Ltd.), 13 January 2011 (13.01.2011), claims; paragraphs [0032] to [0054]; fig. 1 to 4 & US 2012/0114844 A1 & CN 102473516 A	2 4

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１３／００６８１０

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　H01F41/02(2006.01)i, B22F3/00(2006.01)i, B22F3/24(2006.01)i, C22C33/02(2006.01)i, C22C38/00(2006.01)i, H01F1/057(2006.01)i, H01F1/08(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（ＩＰＣ））

Int.Cl.　H01F41/02, B22F3/00, B22F3/24, C22C33/02, C22C38/00, H01F1/057, H01F1/08

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	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１４年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１４年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１４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	関連する請求項の番号
X Y	JP 2009-124150 A（日立金属株式会社）2009.06.04, 【特許請求の範囲】，段落【０１０６】－【１９９】，【図１】 & JP 2008-263223 A & JP 2008-283205 A & JP 2008-300853 A & JP 4241900 B & US 2008/0286595 A1 & US 2012/0229240 A1 & EP 1993112 A1 & WO 2007/102391 A1 & CN 101331566 A & KR 10-2008-0097334 A & CN 101651038 A & SG 170075 A & CN 103227022 A	1,3 4

☑　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
「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
１８．０２．２０１４	２５．０２．２０１４

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
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）　５Ｄ　４４４３
塩▲崎▼　義晃
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	関連する請求項の番号
X Y	JP 2009-135393 A（株式会社アルバック）2009.06.18, 【特許請求の範囲】，段落【００５９】－【００６３】， 【図１】－【図７】 (ファミリーなし)	2,4 4
X Y	WO 2011/004867 A1（日立金属株式会社）2011.01.13, 【特許請求の範囲】，段落【００３２】－【００５４】， 【図１】－【図４】 & US 2012/0114844 A1 & CN 102473516 A	2 4