

(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
2011年10月13日(13.10.2011)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2011/125590 A1

- (51) 国際特許分類:
H01F 1/08 (2006.01) H01F 41/02 (2006.01)
H01F 1/053 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2011/057571
- (22) 国際出願日: 2011年3月28日(28.03.2011)
- (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 2010-082235 2010年3月31日(31.03.2010) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 日東電工株式会社(NITTO DENKO CORPORATION) [JP/JP]; 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 尾関 出光(OZEKI Izumi) [JP/JP]; 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内 Osaka (JP). 久米 克也(KUME Katsuya) [JP/JP]; 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内 Osaka (JP). 平野 敬祐(HIRANO Keisuke) [JP/JP]; 〒5678680 大阪府茨木市下

穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内 Osaka (JP). 大牟礼 智弘(OMURE Tomohiro) [JP/JP]; 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内 Osaka (JP). 太白 啓介(TAIHAKU Keisuke) [JP/JP]; 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内 Osaka (JP). 尾崎 孝志(OZAKI Takashi) [JP/JP]; 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人ネクスト(NEXT INTERNATIONAL); 〒4600003 愛知県名古屋市中区錦一丁目11番20号 大永ビルディング7階 Aichi (JP).

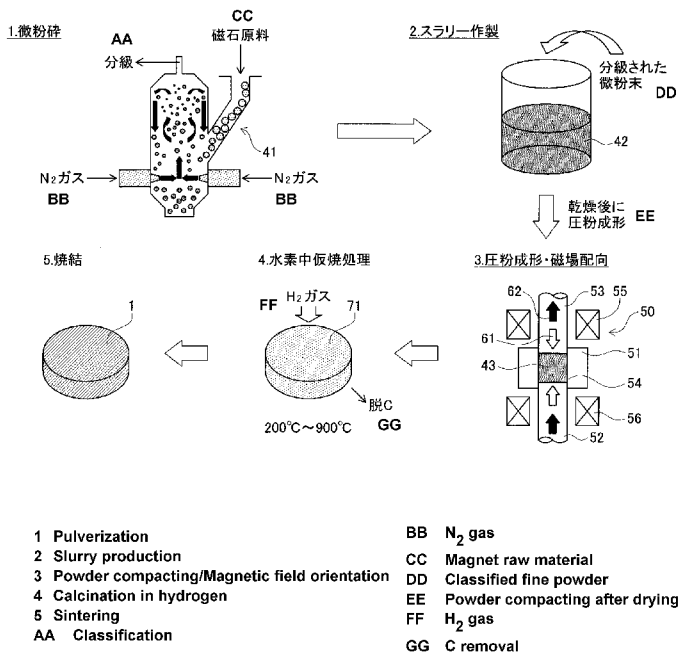
(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, 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.

[続葉有]

(54) Title: PERMANENT MAGNET AND MANUFACTURING METHOD FOR PERMANENT MAGNET

(54) 発明の名称: 永久磁石及び永久磁石の製造方法

[図3]



(57) Abstract: Disclosed are a permanent magnet and a manufacturing method for the permanent magnet in which grain growth in the main phase is prevented, and in which a rich phase can be uniformly dispersed. An organometallic compound solution, to which an organometallic compound represented by the formula $M-(OR)_x$ has been added, is added to a fine powder of a pulverized neodymium magnet, and the organometallic compound is uniformly deposited on the surface of the neodymium magnet grains. Afterwards, calcination in hydrogen is carried out by retaining a molded article, formed by powder compacting, in a hydrogen atmosphere for several hours at 200°C-900°C. Afterwards, a permanent magnet is manufactured by sintering. (In the formula, M is Cu or Al. R is a substituent group comprising a hydrocarbon, and can be a straight chain or a branched chain. x is an arbitrary integer.)

(57) 要約: 主相の粒成長を防止するとともにリッチ相を均一に分散することを可能とした永久磁石及び永久磁石の製造方法を提供する。粉砕されたネオジム磁石の微粉末に対して、 $M-(OR)_x$ (式中、MはCu又はAl

である。Rは炭化水素からなる置換基であり、直鎖でも分枝でも良い。xは任意の整数である。)で示される有機金属化合物が添加された有機金属化合物溶液を加え、ネオジム磁石の粒子表面に、均一に有機金属化合物を付着させる。その後、圧粉成形した成形体を水素雰囲気において200°C~900°Cで数時間保持することにより水素中仮焼処理を行う。その後、焼成を行うことによって永久磁石を製造する。

WO 2011/125590 A1



(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, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, 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, 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： 永久磁石及び永久磁石の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、永久磁石及び永久磁石の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 近年、ハイブリッドカーやハードディスクドライブ等に使用される永久磁石モータでは、小型軽量化、高出力化、高効率化が要求されている。そして、上記永久磁石モータにおいて小型軽量化、高出力化、高効率化を実現するに当たって、永久磁石モータに埋設される永久磁石について、更なる磁気特性の向上が求められている。尚、永久磁石としてはフェライト磁石、 Sm-Co 系磁石、 Nd-Fe-B 系磁石、 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 系磁石等があるが、特に残留磁束密度の高い Nd-Fe-B 系磁石が永久磁石モータ用の永久磁石として用いられる。

[0003] ここで、永久磁石の製造方法としては、一般的に粉末焼結法が用いられる。ここで、粉末焼結法は、先ず原材料を粗粉碎し、ジェットミル（乾式粉碎）により微粉碎した磁石粉末を製造する。その後、その磁石粉末を型に入れて、外部から磁場を印加しながら所望の形状にプレス成形する。そして、所望形状に成形された固形状の磁石粉末を所定温度（例えば Nd-Fe-B 系磁石では $800^{\circ}\text{C} \sim 1150^{\circ}\text{C}$ ）で焼結することにより製造する。

[0004] また、従来より永久磁石を製造する際の磁石原料の各元素の含有量を、化学量論組成に基づく含有量（例えば $\text{Nd} : 26.7 \text{ wt} \%$ 、 Fe （電解鉄）： $72.3 \text{ wt} \%$ 、 $\text{B} : 1.0 \text{ wt} \%$ ）よりも希土類元素を多めにすることによって、粒界に希土類のリッチ相（例えば Nd リッチ相）を形成することが行われていた。

[0005] そして、永久磁石において、リッチ相は、以下のような役割を担っている。

（１）融点が低く（約 600°C ）、焼結時に液相となり、磁石の高密度化、

即ち磁化の向上に寄与する。(2) 粒界の凹凸を無くし、逆磁区のニュークリエーションサイトを減少させ保磁力を高める。(3) 主相を磁氣的に絶縁し保磁力を増加する。

[0006] 従って、焼結後の永久磁石 1 中におけるリッチ相の分散状態が悪いと、局部的な焼結不良、磁性の低下をまねくため、焼結後の永久磁石中にはリッチ相が均一に分散していることが重要となる。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特許第3728316号公報（第4頁～第6頁）

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] ここで、リッチ相を均一に分散する技術として、Cu又はAlを永久磁石に添加することが行われていた。Cu又はAlが粒界に存在するとリッチ相が均一に分散されることが知られている。

[0009] しかしながら、磁石原料に対して予めCu又はAlを添加した状態で、磁石原料の粉碎及び焼結を行うこととすると、焼結時に主相から粒界へとCu又はAlを移動させる必要がある。その場合には、通常の焼結温度より高い焼結温度に設定するか、又は焼結時間を長く設定する必要があり、その結果、焼結時に主相が粒成長することとなっていた。そして、主相が粒成長すると、保磁力が低下する原因となる。

[0010] 本発明は前記従来における問題点を解消するためになされたものであり、CuやAlを含む有機金属化合物を磁石粉末に添加することにより、有機金属化合物に含まれるCuやAlを焼結前に予め磁石の粒界に対して偏在配置することが可能となり、主相の粒成長を防止するとともにリッチ相を均一に分散することを可能とした永久磁石及び永久磁石の製造方法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

- [0011] 前記目的を達成するため本発明に係る永久磁石は、磁石原料を磁石粉末に粉砕する工程と、前記粉砕された磁石粉末に以下の構造式 $M-(OR)_x$ （式中、 M はCu又はAlである。Rは炭化水素からなる置換基であり、直鎖でも分枝でも良い。 x は任意の整数である。）で表わされる有機金属化合物を添加することにより、前記磁石粉末の粒子表面に前記有機金属化合物を付着させる工程と、前記有機金属化合物が粒子表面に付着された前記磁石粉末を成形することにより成形体を形成する工程と、前記成形体を焼結する工程と、により製造されることを特徴とする。
- [0012] また、本発明に係る永久磁石は、前記有機金属化合物を形成する金属が、焼結後に前記永久磁石の粒界に偏在していることを特徴とする。
- [0013] また、本発明に係る永久磁石は、前記構造式 $M-(OR)_x$ のRが、アルキル基であることを特徴とする。
- [0014] また、本発明に係る永久磁石は、前記構造式 $M-(OR)_x$ のRが、炭素数2～6のアルキル基のいずれかであることを特徴とする。
- [0015] また、本発明に係る永久磁石の製造方法は、磁石原料を磁石粉末に粉砕する工程と、前記粉砕された磁石粉末に以下の構造式 $M-(OR)_x$ （式中、 M はCu又はAlであり。Rは炭化水素からなる置換基であり、直鎖でも分枝でも良い。 x は任意の整数である。）で表わされる有機金属化合物を添加することにより、前記磁石粉末の粒子表面に前記有機金属化合物を付着させる工程と、前記有機金属化合物が粒子表面に付着された前記磁石粉末を成形することにより成形体を形成する工程と、前記成形体を焼結する工程と、を有することを特徴とする。
- [0016] また、本発明に係る永久磁石の製造方法は、前記構造式 $M-(OR)_x$ のRが、アルキル基であることを特徴とする。
- [0017] 更に、本発明に係る永久磁石の製造方法は、前記構造式 $M-(OR)_x$ のRが、炭素数2～6のアルキル基のいずれかであることを特徴とする。

発明の効果

- [0018] 前記構成を有する本発明に係る永久磁石によれば、CuやAlを含む有機

金属化合物を磁石粉末に添加することにより、有機金属化合物に含まれるCuやAlを焼結前に予め磁石の粒界に対して偏在配置することが可能となる。従って、CuやAlを予め磁石原料に含有した状態で粉碎、焼結を行う場合と比較して、永久磁石の製造工程で焼結温度の高温化や焼結時間の長時間化等を行う必要がない。その結果、主相の粒成長を防止するとともにリッチ相を均一に分散することが可能となる。

[0019] また、本発明に係る永久磁石によれば、CuやAlが磁石の粒界に偏在するので、リッチ相を均一に分散することができ、保磁力が向上する。

[0020] また、本発明に係る永久磁石によれば、磁石粉末に添加する有機金属化合物として、アルキル基から構成される有機金属化合物を用いるので、有機金属化合物の熱分解を容易に行うことが可能となる。その結果、例えば焼結前に水素雰囲気中で磁石粉末又は成形体の仮焼を行う場合に、磁石粉末又は成形体中の炭素量をより確実に低減させることが可能となる。それにより、焼結後の磁石の主相内に α -Feが析出することを抑え、磁石全体を緻密に焼結することが可能となり、保磁力が低下することを防止できる。

[0021] また、本発明に係る永久磁石によれば、磁石粉末に添加する有機金属化合物として、炭素数2～6のアルキル基から構成される有機金属化合物を用いるので、低温で有機金属化合物の熱分解を行うことが可能となる。その結果、例えば焼結前に水素雰囲気中で磁石粉末又は成形体の仮焼を行う場合に、有機金属化合物の熱分解を磁石粉末全体又は成形体全体に対してより容易に行うことができる。即ち、仮焼処理によって、磁石粉末又は成形体中の炭素量をより確実に低減させることが可能となる。

[0022] また、本発明に係る永久磁石の製造方法によれば、CuやAlを含む有機金属化合物を磁石粉末に添加することにより、有機金属化合物に含まれるCuやAlを焼結前に予め磁石の粒界に対して偏在配置することが可能となる。従って、CuやAlを予め磁石原料に含有した状態で粉碎、焼結を行う場合と比較して、製造工程で焼結温度の高温化や焼結時間の長時間化等を行う必要がない。その結果、主相の粒成長を防止するとともにリッチ相を均一に

分散することが可能となる。

[0023] また、本発明に係る永久磁石の製造方法によれば、磁石粉末に添加する有機金属化合物として、アルキル基から構成される有機金属化合物を用いるので、有機金属化合物の熱分解を容易に行うことが可能となる。その結果、例えば焼結前に水素雰囲気中で磁石粉末又は成形体の仮焼を行う場合に、磁石粉末又は成形体中の炭素量をより確実に低減させることが可能となる。それにより、焼結後の磁石の主相内に α -Feが析出することを抑え、磁石全体を緻密に焼結することが可能となり、保磁力が低下することを防止できる。

[0024] 更に、本発明に係る永久磁石の製造方法によれば、磁石粉末に添加する有機金属化合物として、炭素数2～6のアルキル基から構成される有機金属化合物を用いるので、低温で有機金属化合物の熱分解を行うことが可能となる。その結果、例えば焼結前に水素雰囲気中で磁石粉末又は成形体の仮焼を行う場合に、有機金属化合物の熱分解を磁石粉末全体又は成形体全体に対してより容易に行うことができる。即ち、仮焼処理によって、磁石粉末又は成形体中の炭素量をより確実に低減させることが可能となる。

図面の簡単な説明

[0025] [図1]図1は、本発明に係る永久磁石を示した全体図である。

[図2]図2は、本発明に係る永久磁石の粒界付近を拡大して示した模式図である。

[図3]図3は、本発明に係る永久磁石の第1の製造方法における製造工程を示した説明図である。

[図4]図4は、本発明に係る永久磁石の第2の製造方法における製造工程を示した説明図である。

[図5]図5は、水素中仮焼処理を行った場合と行わなかった場合の酸素量の変化を示した図である。

[図6]図6は、実施例と比較例の永久磁石の永久磁石中の残存炭素量を示した図である。

発明を実施するための形態

[0026] 以下、本発明に係る永久磁石及び永久磁石の製造方法について具体化した実施形態について以下に図面を参照しつつ詳細に説明する。

[0027] [永久磁石の構成]

先ず、本発明に係る永久磁石 1 の構成について説明する。図 1 は本発明に係る永久磁石 1 を示した全体図である。尚、図 1 に示す永久磁石 1 は円柱形状を備えるが、永久磁石 1 の形状は成形に用いるキャビティの形状によって変化する。

本発明に係る永久磁石 1 としては例えば $\text{Nd}-\text{Fe}-\text{B}$ 系磁石を用いる。また、図 2 に示すように、永久磁石 1 は磁化作用に寄与する磁性相である主相 11 と、非磁性で希土類元素の濃縮した低融点の R リッチ相 12 (R は希土類元素である Nd 、 Pr 、 Dy 、 Tb の内、少なくとも一種を含む。) とが共存する合金である。図 2 は永久磁石 1 を構成する Nd 磁石粒子を拡大して示した図である。

[0028] ここで、主相 11 は化学量論組成である $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 金属間化合物相 (Fe は部分的に Co で置換しても良い) が高い体積割合を占めた状態となる。一方、R リッチ相 12 は同じく化学量論組成である $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ (Fe は部分的に Co で置換しても良い) より R の組成比率が多い金属間化合物相 (例えば、 $\text{R}_{2.0\sim 3.0}\text{Fe}_{14}\text{B}$ 金属間化合物相) からなる。また、R リッチ相 12 には後述のように磁気特性向上の為、 Cu 又は Al を含む。

[0029] そして、永久磁石 1 において、R リッチ相 12 は、以下のような役割を担っている。

(1) 融点が低く (約 600°C)、焼結時に液相となり、磁石の高密度化、即ち磁化の向上に寄与する。(2) 粒界の凹凸を無くし、逆磁区のニュークリエーションサイトを減少させ保磁力を高める。(3) 主相を磁氣的に絶縁し保磁力を増加する。

従って、焼結後の永久磁石 1 中における R リッチ相 12 の分散状態が悪いと、局所的な焼結不良、磁性の低下をまねくため、焼結後の永久磁石 1 中には R リッチ相 12 が均一に分散していることが重要となる。

[0030] また、Nd－Fe－B系磁石の製造において生じる問題として、焼結された合金中に α Feが生成することが挙げられる。原因としては、化学量論組成に基づく含有量からなる磁石原料合金を用いて永久磁石を製造した場合に、製造過程で希土類元素が酸素と結び付き、化学量論組成に対して希土類元素が不足する状態となることが挙げられる。さらに、 α Feが、焼結後も磁石中に残存すれば、磁石の磁気特性の低下をもたらす。

[0031] そして、上述した永久磁石1におけるNdやRを含む全希土類元素の含有量は、上記化学量論組成に基づく含有量（26.7wt%）よりも0.1wt%～10.0wt%、より好ましくは0.1wt%～5.0wt%多い範囲内であることが望ましい。具体的には、各成分の含有量はNd・R：25～37wt%、B：1～2wt%、Fe（電解鉄）：60～75wt%とする。永久磁石1中の希土類元素の含有量を上記範囲とすることによって、焼結後の永久磁石1中にRリッチ相12を均一に分散することが可能となる。また、製造過程で希土類元素が酸素と結び付いたとしても、化学量論組成に対して希土類元素が不足することなく、焼結後の永久磁石1中に α Feが生成されることを抑制することが可能となる。

[0032] 尚、永久磁石1中の希土類元素の含有量が上記範囲よりも少ない場合には、Rリッチ相12が形成され難くなる。また、 α Feの生成を十分に抑制することができない。一方、永久磁石1中の希土類元素の組成が上記範囲より多い場合には、保磁力の増加が鈍化し、かつ残留磁束密度が低下してしまい、実用的ではない。

[0033] また、本発明では、Rリッチ相12に対してCu又はAlが含まれているので、焼結後の永久磁石1中にRリッチ相12を均一に分散することが可能となる。

[0034] ここで、本発明ではRリッチ相12へのCu又はAlの添加は、後述のように粉碎された磁石粉末を成形する前にCu又はAlを含む有機金属化合物が添加されることにより行われる。具体的には、Cu又はAlを含む有機金属化合物が添加されることによって、湿式分散によりNd磁石粒子の粒子表

面に該有機金属化合物中のCu又はAlが均一付着される。その状態で磁石粉末を焼結することによって、Nd磁石粒子の粒子表面に均一付着された該有機金属化合物中のCu又はAlが、主相11の粒界、即ちRリッチ相12に偏在化される。

[0035] また、本発明では、特に後述のように $M-(OR)_x$ （式中、MはCu又はAlである。Rは炭化水素からなる置換基であり、直鎖でも分枝でも良い。xは任意の整数である。）で表わされるCu又はAlを含む有機金属化合物（例えば、アルミニウムエトキシドなど）を有機溶媒に添加し、湿式状態で磁石粉末に混合する。それにより、Cu又はAlを含む有機金属化合物を有機溶媒中で分散させ、Nd磁石粒子の粒子表面にCu又はAlを含む有機金属化合物を効率よく付着することが可能となる。

[0036] ここで、上記 $M-(OR)_x$ （式中、MはCu又はAlである。Rは炭化水素からなる置換基であり、直鎖でも分枝でも良い。xは任意の整数である。）の構造式を満たす有機金属化合物として金属アルコキシドがある。金属アルコキシドは、一般式 $M-(OR)_n$ （M：金属元素、R：有機基、n：金属又は半金属の価数）で表される。また、金属アルコキシドを形成する金属又は半金属としては、W、Mo、V、Nb、Ta、Ti、Zr、Ir、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Cd、Al、Ga、In、Ge、Sb、Y、lanthanideなどが挙げられる。但し、本発明では特に、Cu又はAlを用いる。

[0037] また、アルコキシドの種類は特に限定されることなく、例えば、メトキシド、エトキシド、プロポキシド、イソプロポキシド、ブトキシド、炭素数4以上のアルコキシド等が挙げられる。但し、本発明では後述のように低温分解で残炭を抑制する目的から、低分子量のものをを用いる。また、炭素数1のメトキシドについては分解し易く、取扱いが困難であるので、特にRに含まれる炭素数が2～6のアルコキシドであるエトキシド、メトキシド、イソプロポキシド、プロポキシド、ブトキシドなどを用いることが好ましい。即ち、本発明では、特に磁石粉末に添加する有機金属化合物として $M-(OR)$

x（式中、MはCu又はAlである。Rはアルキル基であり、直鎖でも分枝でも良い。xは任意の整数である。）で表わされる有機金属化合物、より好ましくは、M-(OR)x（式中、MはCu又はAlであり、Rは炭素数2～6のアルキル基のいずれかであり、直鎖でも分枝でも良い。xは任意の整数である。）で表わされる有機金属化合物を用いることが望ましい。

[0038] また、主相11の結晶粒径Dは0.1 μm ～5.0 μm とすることが望ましい。また、Rリッチ相12の厚さdは1 nm～500 nm、好ましくは2 nm～200 nmとする。その結果、結晶粒全体としては（すなわち、焼結磁石全体としては）、コアのNd₂Fe₁₄B金属間化合物相が高い体積割合を占めた状態となる。それにより、その磁石の残留磁束密度（外部磁場の強さを0にしたときの磁束密度）の低下を抑制することができる。尚、主相11とRリッチ相12の構成は、例えばSEMやTEMや3次元アトムプローブ法により確認することができる。

[0039] また、RとしてDy又はTbを用いれば、磁石粒子の粒界にDy又はTbを偏在化することが可能となる。その結果、DyやTbによる保磁力の向上を図ることが可能となる。

[0040] [永久磁石の製造方法1]

次に、本発明に係る永久磁石1の第1の製造方法について図3を用いて説明する。図3は本発明に係る永久磁石1の第1の製造方法における製造工程を示した説明図である。

[0041] 先ず、所定分率のNd-Fe-B（例えばNd：32.7 wt%、Fe（電解鉄）：65.96 wt%、B：1.34 wt%）からなる、インゴットを製造する。尚、インゴットに含まれるNdの含有量は、化学量論組成に基づく含有量（26.7 wt%）よりも0.1 wt%～10.0 wt%、より好ましくは0.1 wt%～5.0 wt%多い量とする。また、保磁力向上のためにDyやTbを少量含めても良い。その後、インゴットをスタンピングやクラッシャー等によって200 μm 程度の大きさに粗粉碎する。若しくは、インゴットを溶解し、ストリップキャスト法でフレークを作製し、水素解

碎法で粗粉化する。

- [0042] 次いで、粗粉碎した磁石粉末を、（a）酸素含有量が実質的に0%の窒素ガス、Arガス、Heガスなど不活性ガスからなる雰囲気中、又は（b）酸素含有量が0.0001～0.5%の窒素ガス、Arガス、Heガスなど不活性ガスからなる雰囲気中で、ジェットミル41により微粉碎し、所定サイズ以下（例えば0.1 μ m～5.0 μ m）の平均粒径を有する微粉末とする。尚、酸素濃度が実質的に0%とは、酸素濃度が完全に0%である場合に限定されず、微粉の表面にごく僅かに酸化被膜を形成する程度の量の酸素を含有しても良いことを意味する。
- [0043] 一方で、ジェットミル41で微粉碎された微粉末に添加する有機金属化合物溶液を作製する。ここで、有機金属化合物溶液には予めCu又はAlを含む有機金属化合物を添加し、溶解させる。尚、溶解させる有機金属化合物としては、 $M-(OR)_x$ （式中、MはCu又はAlであり、Rは炭素数2～6のアルキル基のいずれかであり、直鎖でも分枝でも良い。xは任意の整数である。）に該当する有機金属化合物（例えば、アルミニウムエトキシドなど）を用いることが望ましい。また、溶解させるCu又はAlを含む有機金属化合物の量は特に制限されないが、焼結後の磁石に対するCu又はAlの含有量が0.001wt%～10wt%、好ましくは0.01wt%～5wt%となる量とするのが好ましい。
- [0044] 続いて、ジェットミル41にて分級された微粉末に対して上記有機金属化合物溶液を添加する。それによって、磁石原料の微粉末と有機金属化合物溶液とが混合されたスラリー42を生成する。尚、有機金属化合物溶液の添加は、窒素ガス、Arガス、Heガスなど不活性ガスからなる雰囲気で行う。
- [0045] その後、生成したスラリー42を成形前に真空乾燥などで事前に乾燥させ、乾燥した磁石粉末43を取り出す。その後、乾燥した磁石粉末を成形装置50により所定形状に圧粉成形する。尚、圧粉成形には、上記の乾燥した微粉末をキャビティに充填する乾式法と、溶媒などでスラリー状にしてからキャビティに充填する湿式法があるが、本発明では乾式法を用いる場合を例示

する。また、有機金属化合物溶液は成形後の焼成段階で揮発させることも可能である。

[0046] 図3に示すように、成形装置50は、円筒状のモールド51と、モールド51に対して上下方向に摺動する下パンチ52と、同じくモールド51に対して上下方向に摺動する上パンチ53とを有し、これらに囲まれた空間がキャビティ54を構成する。

また、成形装置50には一対の磁界発生コイル55、56がキャビティ54の上下位置に配置されており、磁力線をキャビティ54に充填された磁石粉末43に印加する。印加させる磁場は例えば1MA/mとする。

[0047] そして、圧粉成形を行う際には、先ず乾燥した磁石粉末43をキャビティ54に充填する。その後、下パンチ52及び上パンチ53を駆動し、キャビティ54に充填された磁石粉末43に対して矢印61方向に圧力を加え、成形する。また、加圧と同時にキャビティ54に充填された磁石粉末43に対して、加圧方向と平行な矢印62方向に磁界発生コイル55、56によってパルス磁場を印加する。それによって、所望の方向に磁場を配向させる。尚、磁場を配向させる方向は、磁石粉末43から成形される永久磁石1に求められる磁場方向を考慮して決定する必要がある。

また、湿式法を用いる場合には、キャビティ54に磁場を印加しながらスラリーを注入し、注入途中又は注入終了後に、当初の磁場より強い磁場を印加して湿式成形しても良い。また、加圧方向に対して印加方向が垂直となるように磁界発生コイル55、56を配置しても良い。

[0048] 次に、圧粉成形により成形された成形体71を水素雰囲気において200℃～900℃、より好ましくは400℃～900℃（例えば600℃）で数時間（例えば5時間）保持することにより水素中仮焼処理を行う。仮焼中の水素の供給量は5L/minとする。この水素中仮焼処理では、有機金属化合物を熱分解させて、仮焼体中の炭素量を低減させる所謂脱カーボンが行われる。また、水素中仮焼処理は、仮焼体中の炭素量が0.2wt%以下、より好ましくは0.1wt%以下とする条件で行うこととする。それによって

、その後の焼結処理で永久磁石 1 全体を緻密に焼結させることが可能となり、残留磁束密度や保磁力を低下させることが無い。

[0049] ここで、上述した水素中仮焼処理によって仮焼された成形体 7 1 には、NdH₃が存在し、酸素と結び付きやすくなる問題があるが、第 1 の製造方法では、成形体 7 1 は水素仮焼後に外気と触れさせることなく、後述の焼成に移るため脱水素工程は不要となる。焼成中に成形体中の水素は抜けることとなる。

[0050] 続いて、水素中仮焼処理によって仮焼された成形体 7 1 を焼結する焼結処理を行う。尚、成形体 7 1 の焼結方法としては、一般的な真空焼結以外に成形体 7 1 を加圧した状態で焼結する加圧焼結等も用いることが可能である。例えば、真空焼結で焼結を行う場合には、所定の昇温速度で 800℃～1080℃程度まで昇温し、2 時間程度保持する。この間は真空焼成となるが真空度としては 10⁻⁴Torr 以下とすることが好ましい。その後冷却し、再び 600℃～1000℃で 2 時間熱処理を行う。そして、焼結の結果、永久磁石 1 が製造される。

[0051] 一方、加圧焼結としては、例えば、ホットプレス焼結、熱間静水圧加圧（HIP）焼結、超高压合成焼結、ガス加圧焼結、放電プラズマ（SPS）焼結等がある。但し、焼結時の磁石粒子の粒成長を抑制するとともに焼結後の磁石に生じる反りを抑える為に、一軸方向に加圧する一軸加圧焼結であって且つ通電焼結により焼結する SPS 焼結を用いることが好ましい。尚、SPS 焼結で焼結を行う場合には、加圧値を 30MPa とし、数 Pa 以下の真空雰囲気中で 940℃まで 10℃/分で上昇させ、その後 5 分保持することが好ましい。その後冷却し、再び 600℃～1000℃で 2 時間熱処理を行う。そして、焼結の結果、永久磁石 1 が製造される。

[0052] [永久磁石の製造方法 2]

次に、本発明に係る永久磁石 1 の他の製造方法である第 2 の製造方法について図 4 を用いて説明する。図 4 は本発明に係る永久磁石 1 の第 2 の製造方法における製造工程を示した説明図である。

[0053] 尚、スラリー 42 を生成するまでの工程は、図 3 を用いて既に説明した第 1 の製造方法における製造工程と同様であるので説明は省略する。

[0054] 先ず、生成したスラリー 42 を成形前に真空乾燥などで事前に乾燥させ、乾燥した磁石粉末 43 を取り出す。その後、乾燥した磁石粉末 43 を水素雰囲気において $200^{\circ}\text{C} \sim 900^{\circ}\text{C}$ 、より好ましくは $400^{\circ}\text{C} \sim 900^{\circ}\text{C}$ （例えば 600°C ）で数時間（例えば 5 時間）保持することにより水素中仮焼処理を行う。仮焼中の水素の供給量は 5 L/min とする。この水素中仮焼処理では、残存する有機金属化合物を熱分解させて、仮焼体中の炭素量を低減させる所謂脱カーボンが行われる。また、水素中仮焼処理は、仮焼体中の炭素量が $0.2 \text{ wt\%}$ 以下、より好ましくは $0.1 \text{ wt\%}$ 以下とする条件で行うこととする。それによって、その後の焼結処理で永久磁石 1 全体を緻密に焼結させることが可能となり、残留磁束密度や保磁力を低下させることが無い。

[0055] 次に、水素中仮焼処理によって仮焼された粉末状の仮焼体 82 を真空雰囲気中で $200^{\circ}\text{C} \sim 600^{\circ}\text{C}$ 、より好ましくは $400^{\circ}\text{C} \sim 600^{\circ}\text{C}$ で 1 ～ 3 時間保持することにより脱水素処理を行う。尚、真空度としては 0.1 Torr 以下とすることが好ましい。

[0056] ここで、上述した水素中仮焼処理によって仮焼された仮焼体 82 には、 NdH_3 が存在し、酸素と結び付きやすくなる問題がある。

図 5 は水素中仮焼処理をした Nd 磁石粉末と水素中仮焼処理をしていない Nd 磁石粉末とを、酸素濃度 7 ppm 及び酸素濃度 66 ppm の雰囲気それぞれにそれぞれ暴露した際に、暴露時間に対する磁石粉末内の酸素量を示した図である。図 5 に示すように水素中仮焼処理した磁石粉末は、高酸素濃度 66 ppm 雰囲気におかれると、約 1000 sec で磁石粉末内の酸素量が 0.4% から 0.8% まで上昇する。また、低酸素濃度 7 ppm 雰囲気におかれても、約 5000 sec で磁石粉末内の酸素量が 0.4% から同じく 0.8% まで上昇する。そして、Nd が酸素と結び付くと、残留磁束密度や保磁力の低下の原因となる。

そこで、上記脱水素処理では、水素中仮焼処理によって生成された仮焼体 8 2 中の NdH_3 （活性度大）を、 NdH_3 （活性度大） $\rightarrow NdH_2$ （活性度小）へと段階的に変化させることによって、水素仮焼中処理により活性化された仮焼体 8 2 の活性度を低下させる。それによって、水素中仮焼処理によって仮焼された仮焼体 8 2 をその後に大気中へと移動させた場合であっても、Nd が酸素と結び付くことを防止し、残留磁束密度や保磁力を低下させることが無い。

[0057] その後、脱水素処理が行われた粉末状の仮焼体 8 2 を成形装置 5 0 により所定形状に圧粉成形する。成形装置 5 0 の詳細については図 3 を用いて既に説明した第 1 の製造方法における製造工程と同様であるので説明は省略する。

[0058] その後、成形された仮焼体 8 2 を焼結する焼結処理を行う。尚、焼結処理は、上述した第 1 の製造方法と同様に、真空焼結や加圧焼結等により行う。焼結条件の詳細については既に説明した第 1 の製造方法における製造工程と同様であるので説明は省略する。そして、焼結の結果、永久磁石 1 が製造される。

[0059] 尚、上述した第 2 の製造方法では、粉末状の磁石粒子に対して水素中仮焼処理を行うので、成形後の磁石粒子に対して水素中仮焼処理を行う前記第 1 の製造方法と比較して、有機金属化合物の熱分解を磁石粒子全体に対してより容易に行うことができる利点がある。即ち、前記第 1 の製造方法と比較して仮焼体中の炭素量をより確実に低減させることが可能となる。

一方、第 1 の製造方法では、成形体 7 1 は水素仮焼後に外気と触れさせることなく焼成に移るため、脱水素工程は不要となる。従って、前記第 2 の製造方法と比較して製造工程を簡略化することが可能となる。但し、前記第 2 の製造方法においても、水素仮焼後に外気と触れさせることがなく焼成を行う場合には、脱水素工程は不要となる。

実施例

[0060] 以下に、本発明の実施例について比較例と比較しつつ説明する。

(実施例)

実施例のネオジム磁石粉末の合金組成は、化学量論組成に基づく分率 ($Nd : 26.7 \text{ wt} \%$ 、 Fe (電解鉄) : $72.3 \text{ wt} \%$ 、 $B : 1.0 \text{ wt} \%$) よりも Nd の比率を高くし、例えば $\text{wt} \%$ で $Nd / Fe / B = 32.7 / 65.96 / 1.34$ とする。また、粉碎したネオジム磁石粉末に Cu 又は Al を含む有機金属化合物としてアルミニウムエトキシドを $5 \text{ wt} \%$ 添加した。また、仮焼処理は、成形前の磁石粉末を水素雰囲気において 600°C で 5 時間保持することにより行った。そして、仮焼中の水素の供給量は $5 \text{ L} / \text{min}$ とする。また、成形された仮焼体の焼結は SPS 焼結により行った。尚、他の工程は上述した「永久磁石の製造方法 2」と同様の工程とする。

[0061] (比較例)

添加する有機金属化合物を銅アセチルアセトナートとした。他の条件は実施例と同様である。

[0062] (実施例と比較例の残炭素量の比較検討)

図 6 は実施例と比較例の永久磁石の永久磁石中の残存炭素量 [$\text{wt} \%$] をそれぞれ示した図である。

図 6 に示すように、実施例は比較例と比較して磁石粒子中に残存する炭素量を大きく低減させることができることが分かる。特に、実施例では、磁石粒子中に残存する炭素量を $0.2 \text{ wt} \%$ 以下、より具体的には $0.1 \text{ wt} \%$ 以下とすることができる。

[0063] また、実施例と比較例とを比較すると、 $M-(OR)_x$ (式中、 M は Cu 又は Al である。 R はアルキル基であり、直鎖でも分枝でも良い。 x は任意の整数である。) で示される有機金属化合物を添加した場合には、その他の有機金属化合物を添加した場合と比較して、磁石粒子中の炭素量を大きく低減させることができることが分かる。即ち、添加する有機金属化合物を、 $M-(OR)_x$ (式中、 M は Cu 又は Al である。 R は炭化水素からなる置換基であり、直鎖でも分枝でも良い。 x は任意の整数である。) で示される有機金属化合物とすることにより、水素中仮焼処理において脱カーボンを容易

に行うことが可能となることが分かる。その結果として、磁石全体の緻密焼結や保磁力の低下を防止することが可能となる。また、特に添加する有機金属化合物として炭素数2～6のアルキル基から構成される有機金属化合物を用いれば、水素雰囲気中で磁石粉末を仮焼する際に、低温で有機金属化合物の熱分解を行うことが可能となる。それによって、有機金属化合物の熱分解を磁石粒子全体に対してより容易に行うことができる。

[0064] 以上説明したように、本実施形態に係る永久磁石1及び永久磁石1の製造方法では、粉碎されたネオジム磁石の微粉末に対して、 $M-(OR)_x$ （式中、MはCu又はAlである。Rは炭化水素からなる置換基であり、直鎖でも分枝でも良い。xは任意の整数である。）で示される有機金属化合物が添加された有機金属化合物溶液を加え、ネオジム磁石の粒子表面に対して均一に有機金属化合物を付着させる。その後、圧粉成形した成形体を水素雰囲気において200℃～900℃で数時間保持することにより水素中仮焼処理を行う。その後、真空焼結や加圧焼結を行うことによって永久磁石1を製造する。それにより、有機金属化合物に含まれるCuやAlを焼結前に予め磁石の粒界に対して偏在配置することが可能となる。従って、CuやAlを予め磁石原料に含有した状態で粉碎、焼結を行う場合と比較して、永久磁石の製造工程で焼結温度の高温化や焼結時間の長時間化等を行う必要がない。その結果、主相の粒成長を防止するとともにリッチ相を均一に分散することが可能となる。その結果、永久磁石1の保磁力を向上させることができる。

また、有機金属化合物が添加された磁石を、焼結前に水素雰囲気中で仮焼することにより、有機金属化合物を熱分解させて磁石粒子中に含有する炭素を予め焼失（炭素量を低減）させることができ、焼結工程でカーバイドがほとんど形成されることがない。その結果、焼結後の磁石の主相と粒界相との間に空隙を生じさせることなく、また、磁石全体を緻密に焼結することが可能となり、保磁力が低下することを防止できる。また、焼結後の磁石の主相内に $\alpha\text{-Fe}$ が析出することなく、磁石特性を大きく低下させることがない。

また、特に添加する有機金属化合物としてアルキル基から構成される有機

金属化合物、より好ましくは炭素数2～6のアルキル基から構成される有機金属化合物を用いれば、水素雰囲気中で磁石粉末や成形体を仮焼する際に、低温で有機金属化合物の熱分解を行うことが可能となる。それによって、有機金属化合物の熱分解を磁石粉末全体や成形体全体に対してより容易に行うことができる。

更に、磁石粉末や成形体を仮焼する工程は、特に200℃～900℃、より好ましくは400℃～900℃の温度範囲で成形体を所定時間保持することにより行うので、磁石粒子中に含有する炭素を必要量以上焼失させることができる。

その結果、焼結後に磁石に残存する炭素量が0.2wt%以下、より好ましくは0.1wt%以下となるので、磁石の主相と粒界相との間に空隙が生じることなく、また、磁石全体を緻密に焼結した状態とすることが可能となり、残留磁束密度が低下することを防止できる。また、焼結後の磁石の主相内に α -Feが析出することなく、磁石特性を大きく低下させることがない。

また、特に第2の製造方法では、粉末状の磁石粒子に対して仮焼を行うので、成形後の磁石粒子に対して仮焼を行う場合と比較して、有機金属化合物の熱分解を磁石粒子全体に対してより容易に行うことができる。即ち、仮焼体中の炭素量をより確実に低減させることが可能となる。また、仮焼処理後に脱水素処理を行うことによって、仮焼処理により活性化された仮焼体の活性度を低下させることができる。それにより、その後に磁石粒子が酸素と結び付くことを防止し、残留磁束密度や保磁力を低下させることが無い。

また、脱水素処理を行う工程は、200℃～600℃の温度範囲で磁石粉末を所定時間保持することにより行うので、水素仮焼中処理を行ったNd系磁石中に活性度の高いNdH₃が生成された場合であっても、残さずに活性度の低いNdH₂へと移行させることが可能となる。

[0065] 尚、本発明は前記実施例に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内で種々の改良、変形が可能であることは勿論である。

また、磁石粉末の粉碎条件、混練条件、仮焼条件、脱水素条件、焼結条件

などは上記実施例に記載した条件に限られるものではない。

また、水素中仮焼処理や脱水素工程については省略しても良い。

[0066] また、上記実施例では磁石粉末に添加する有機金属化合物としてアルミニウムエトキシドを用いているが、 $M-(OR)_x$ （式中、 M はCu又はAlである。Rは炭化水素からなる置換基であり、直鎖でも分枝でも良い。xは任意の整数である。）で示される有機金属化合物であれば、他の有機金属化合物であっても良い。例えば、炭素数が7以上のアルキル基から構成される有機金属化合物や、アルキル基以外の炭化水素からなる置換基から構成される有機金属化合物を用いても良い。

符号の説明

[0067]	1	永久磁石
	1 1	主相
	1 2	Rリッチ相

請求の範囲

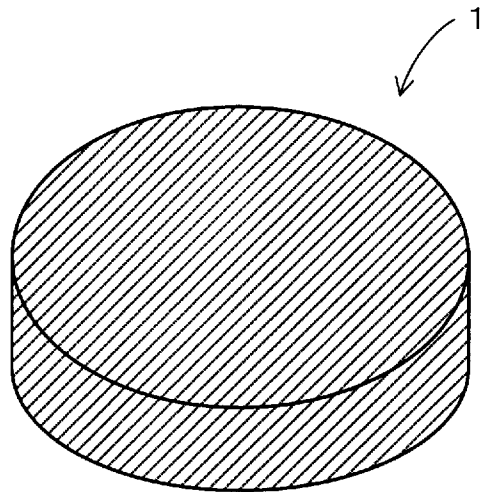
- [請求項1] 磁石原料を磁石粉末に粉碎する工程と、
前記粉碎された磁石粉末に以下の構造式
- $$M-(OR)_x$$
- (式中、MはCu又はAlである。Rは炭化水素からなる置換基であり、直鎖でも分枝でも良い。xは任意の整数である。)
で表わされる有機金属化合物を添加することにより、前記磁石粉末の粒子表面に前記有機金属化合物を付着させる工程と、
前記有機金属化合物が粒子表面に付着された前記磁石粉末を成形することにより成形体を形成する工程と、
前記成形体を焼結する工程と、により製造されることを特徴とする永久磁石。
- [請求項2] 前記有機金属化合物を形成する金属が、焼結後に前記永久磁石の粒界に偏在していることを特徴とする請求項1に記載の永久磁石。
- [請求項3] 前記構造式中のRは、アルキル基であることを特徴とする請求項1又は請求項2に記載の永久磁石。
- [請求項4] 前記構造式中のRは、炭素数2～6のアルキル基のいずれかであることを特徴とする請求項3に記載の永久磁石。
- [請求項5] 磁石原料を磁石粉末に粉碎する工程と、
前記粉碎された磁石粉末に以下の構造式
- $$M-(OR)_x$$
- (式中、MはCu又はAlである。Rは炭化水素からなる置換基であり、直鎖でも分枝でも良い。xは任意の整数である。)
で表わされる有機金属化合物を添加することにより、前記磁石粉末の粒子表面に前記有機金属化合物を付着させる工程と、
前記有機金属化合物が粒子表面に付着された前記磁石粉末を成形することにより成形体を形成する工程と、
前記成形体を焼結する工程と、を有することを特徴とする永久磁石

の製造方法。

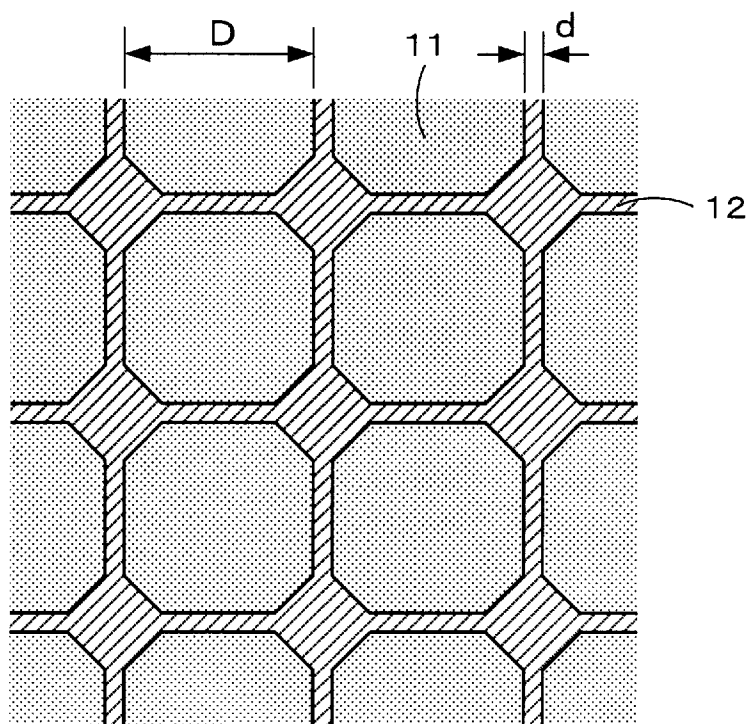
[請求項6] 前記構造式中のRは、アルキル基であることを特徴とする請求項5
に記載の永久磁石の製造方法。

[請求項7] 前記構造式中のRは、炭素数2～6のアルキル基のいずれかである
ことを特徴とする請求項6に記載の永久磁石の製造方法。

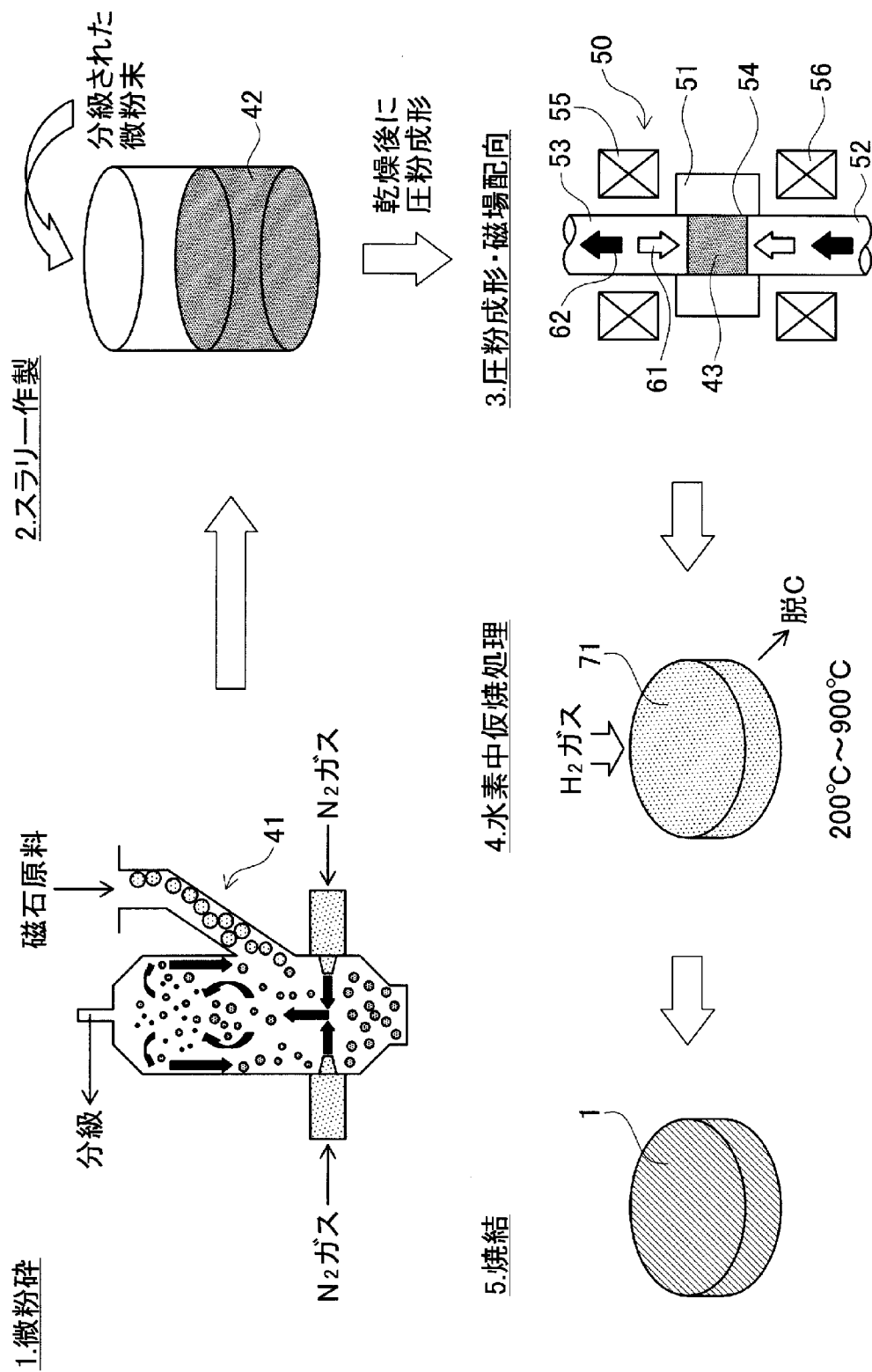
[図1]



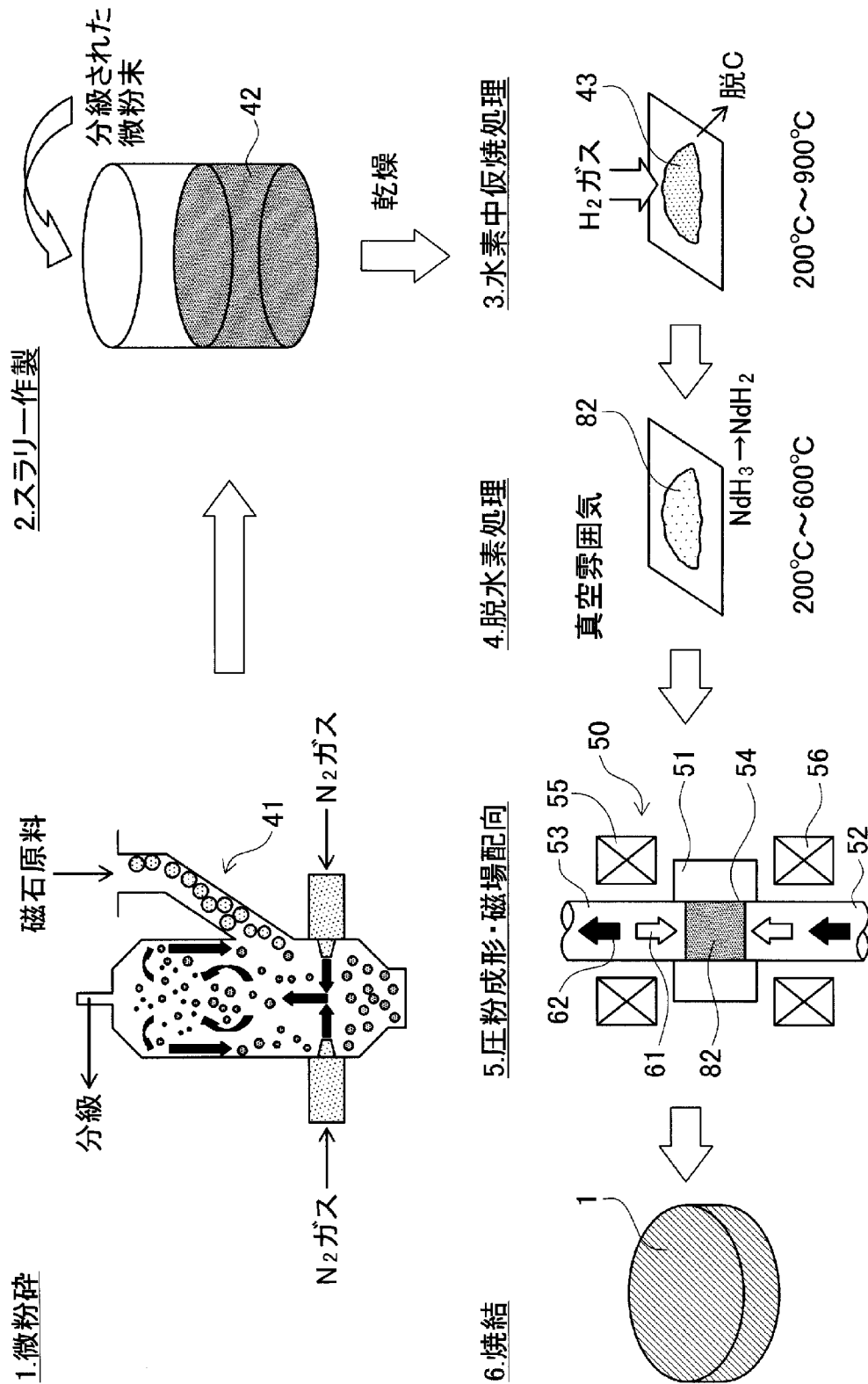
[図2]



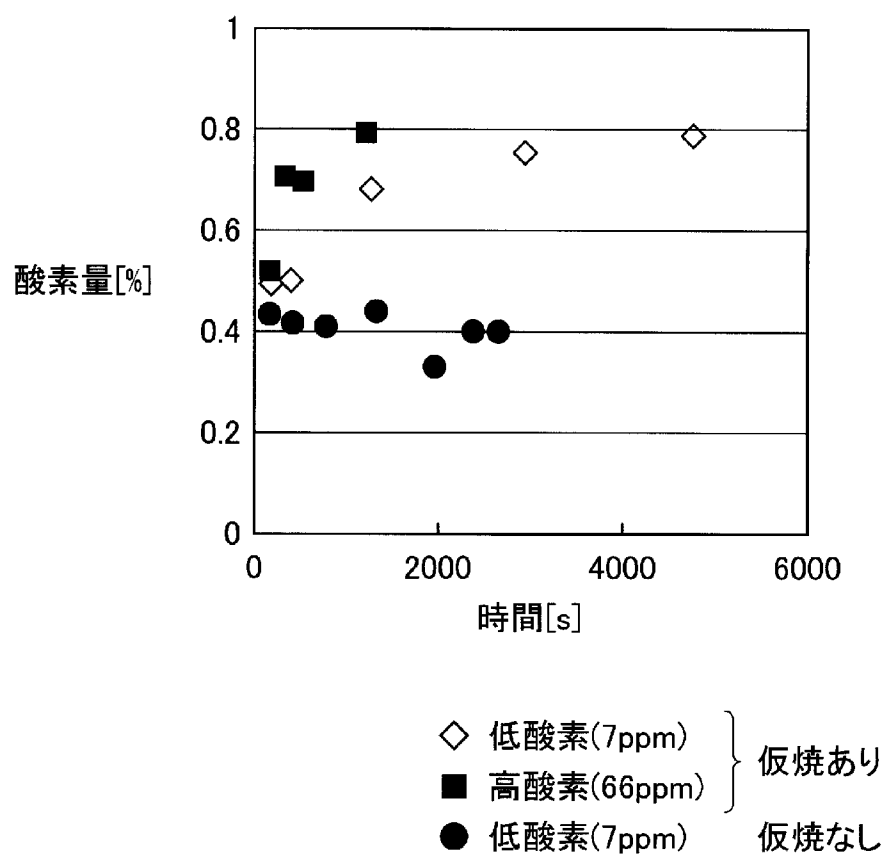
[図3]



[図4]



[図5]



[図6]

	M	OR	仮焼	炭素量(wt%)
実施例	Al	エトキシド	有	0.10
比較例	Cu	アセチルアセトナート	有	0.24

添加物 $M-(OR)_x$

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/057571

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01F1/08(2006.01)i, H01F1/053(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)

H01F1/08, H01F1/053, 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	1996-2011
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2011	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2011

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.
Y A	JP 64-68903 A (FDK Corp.), 15 March 1989 (15.03.1989), page 2, upper left column, lines 9 to 18 (Family: none)	1, 3-7 2
Y A	JP 5-271708 A (Sumitomo Metal Mining Co., Ltd.), 19 October 1993 (19.10.1993), claims; paragraph [0011] (Family: none)	1, 3-7 2
Y A	JP 1-247502 A (Tosoh Corp.), 03 October 1989 (03.10.1989), page 3, upper left column, line 1 to upper right column, line 2 (Family: none)	1, 3-7 2

☐ 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
27 May, 2011 (27.05.11)

Date of mailing of the international search report
07 June, 2011 (07.06.11)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. H01F1/08(2006.01)i, H01F1/053(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. H01F1/08, H01F1/053, 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 1 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 1 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 1 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
Y A	JP 64-68903 A（富士電気化学株式会社）1989.03.15, 第2頁左上欄第9～18行 （ファミリーなし）	1, 3-7 2
Y A	JP 5-271708 A（住友金属鉱山株式会社）1993.10.19, 【特許請求の範囲】、段落【0011】 （ファミリーなし）	1, 3-7 2
Y A	JP 1-247502 A（東ソー株式会社）1989.10.03, 第3頁左上欄第1行～右上欄第2行 （ファミリーなし）	1, 3-7 2

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

国際調査を完了した日

2 7 . 0 5 . 2 0 1 1

国際調査報告の発送日

0 7 . 0 6 . 2 0 1 1

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）

山田 倍司

電話番号 03-3581-1101 内線 3565

5 R

4 4 4 3