

(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
2021年6月17日(17.06.2021)



(10) 国際公開番号

WO 2021/117672 A1

- (51) 国際特許分類:
C22C 38/00 (2006.01) B22F 3/00 (2021.01)
H01F 1/057 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2020/045456
- (22) 国際出願日: 2020年12月7日(07.12.2020)
- (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 2019-225356 2019年12月13日(13.12.2019) JP
- (71) 出願人: 信越化学工業株式会社 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1000004 東京都千代田区大手町二丁目6番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 久米 哲也 (KUME Tetsuya); 〒9158515 福井県越前市北府二丁目1番5号 信越化学工業株式会社 磁性材料研究所内 Fukui (JP). 大橋 徹也 (OHASHI Tetsuya); 〒9158515 福井県越前市北府二丁目1番5号 信越化学工業株式会社 磁性材料研究所内 Fukui (JP). 廣田 晃一 (HIROTA Koichi); 〒9158515 福井県越前市北府二丁目1番5号 信越化学工業株式会社 磁性材料研究所内 Fukui (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人英明国際特許事務所 (PATENT PROFESSIONAL CORPORATION EI-MEI PATENT OFFICE); 〒1040061 東京都中央区銀座二丁目16番12号 銀座大塚ビル2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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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,

(54) Title: RARE EARTH SINTERED MAGNET

(54) 発明の名称: 希土類焼結磁石

(57) Abstract: The present invention provides a rare earth sintered magnet which contains R (R represents one or more rare earth elements essentially including Nd), T (T represents one or more iron group elements essentially including Fe), B, M¹ (M¹ represents one or more elements selected from among Al, Si, Cr, Mn, Cu, Zn, Ga, Ge, Mo, Sn, W, Pb and Bi) and M² (M² represents one or more elements selected from among Ti, V, Zr, Nb, Hf and Ta), while comprising an R₂T₁₄B phase as the main phase. This rare earth sintered magnet is characterized in that: the M¹ is in an amount of from 0.5% by atom to 2% by atom; if (R), (T), (M²) and (B) are the respective atomic percentages of the above-described R, T, M² and B, the relational expression (1) ((T)/14) + (M²) ≤ (B) ≤ ((R)/2) + ((M²)/2) is satisfied; and from 0.1% by volume to 10% by volume of all grain boundary phases in the magnet is composed of an R₆T₁₃M¹ phase. This rare earth sintered magnet is able to achieve excellent magnetic characteristics including a good balance between high Br and high H_{cj}.

(57) 要約: R (Rは希土類元素の1種以上で、Ndは必須)、T (Tは鉄族元素の1種以上の元素で、Feは必須)、B、M¹ (M¹はAl、Si、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Ge、Mo、Sn、W、Pb、Biから選ばれる1種以上の元素)、及びM² (M²はTi、V、Zr、Nb、Hf、Taから選ばれる1種以上の元素)を含み、R₂T₁₄B相を主相とする希土類焼結磁石であって、上記M¹が0.5~2原子%、上記R、T、M²、Bの原子百分率をそれぞれ[R]、[T]、[M²]、[B]とした場合に、関係式(1): ([T]/14) + [M²] ≤ [B] ≤ ([R]/2) + ([M²]/2)を満足し、かつ磁石中の全粒界相の0.1~10体積%が、R₆T₁₃M¹相であることを特徴とする希土類焼結磁石を提供する。この希土類焼結磁石によれば、高いBrと高いH_{cj}を両立した優れた磁気特性を得ることができる。

WO 2021/117672 A1

ZW), ユーラシア (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：

- 一 国際調査報告 (条約第21条(3))

明 細 書

発明の名称：希土類焼結磁石

技術分野

[0001] 本発明は、高い B_r と高い H_{cJ} とを両立した優れた磁気特性を有する希土類焼結磁石に関するものである。

背景技術

[0002] 希土類焼結磁石は、省エネルギー化や高機能化に必要な機能性材料として、その応用範囲と生産量は年々拡大している。希土類焼結磁石の中でも特にNd系焼結磁石（以下、「Nd磁石」という。）は高い残留磁束密度（以下、「 B_r 」という。）を有し、例えば、ハイブリッド自動車や電気自動車の駆動用モータ、電動パワーステアリング用モータ、エアコンのコンプレッサー用モータ、ハードディスクドライブのボイスコイルモータ（VCM）等に用いられている。このように、多様な用途におけるモータにおいて、高い B_r を有するNd磁石が用いられているが、例えばモータを更に小型化するために、Nd磁石にはより高い B_r が求められている。

[0003] 一方で、高温下では、希土類焼結磁石の保磁力（以下、「 H_{cJ} 」という。）が低下するため、不可逆熱減磁が起こる。そのため、特に電気自動車用モータなどの自動車向けに使用される希土類焼結磁石では、高い H_{cJ} を有することが要求されている。

[0004] 従来、Nd磁石の H_{cJ} を増大させるためにはDyやTb等の重希土類元素の添加が一般的であるものの、その添加によって B_r の低下を招くこと、資源的にも希少であり高価であること等の理由から、これは必ずしも好ましい方法ではない。

[0005] また、Nd磁石の H_{cJ} を増加させる他の手法としては、結晶粒径の微細化が知られている。この手法は主に成形前の微粉碎時の微粉粒度を細かくすることで、焼結後の結晶粒径の微細化を行うものであり、ある一定の粒径範囲においては、粒径微細化に応じて直線的に H_{cJ} が増大することが知られている。

しかし、一定以上の微細化を行う場合、微粉碎時の粉碎能力低下や微粉の反応性向上等によって微粉の不純物（主に酸素、窒素）濃度が增大するため、Nd磁石の H_{cJ} が低下するか、あるいは H_{cJ} の増大が見られた場合でも後述の粒界拡散法による H_{cJ} の増大が困難になるという問題がある。これを改善するために、微粉碎時の粉碎ガスをHe、Ar等の不活性ガスに変更する方法も提示されている（特許文献1）。

[0006] 更に、Nd磁石の H_{cJ} 増加手法として、Nd磁石中の粒界相に選択的に重希土類元素（Dy、Tb等）を集積させる手法（以下、「粒界拡散法」という。）も知られている（特許文献2）。この手法は、DyやTb等の重希土類元素化合物を磁石表面に塗布等の手法によって付着させた後、高温で加熱処理を行う手法である。Nd磁石中の主相粒子の粒界にごく近い領域においてのみDyやTbの濃度が高い組織を形成することで、Brの低下を抑制しながら高い H_{cJ} 増大効果を得ることができるものである。

[0007] また近年、DyやTb等の重希土類元素を使用せずに H_{cJ} を向上させる手法として、 $R_6Fe_{13}M$ 相（MはSi、Ga等の元素である。）を利用した磁石内粒界組織の制御が提案されている（特許文献3、4）。これは、磁石組成においてSiやGa等のM元素を含有させた上で、X量（XはB及びCである。）を主相である $R_2Fe_{14}X$ 相のストイキオメトリ（stoichiometry）を下回る量だけを含有させることで、磁石内部の粒界相に主相を連続的に被覆するように $R_6Fe_{13}M$ 相を析出させて、 H_{cJ} を増大させる手法である。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献1：国際公開第2014/142137号

特許文献2：国際公開第2006/044348号

特許文献3：特開2018-56188号公報

特許文献4：国際公開第2013/191276号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] しかしながら、上記特許文献1で提案されている、微粉碎時の粉碎ガスをHe、Ar等の不活性ガスに変更する方法は、窒素ガスとの価格差を考慮すると工業的な生産は困難である。また、上記特許文献3に記載されているように、重希土類元素使用量を抑制しながら高い H_{cJ} を達成するために、 $R_6Fe_{13}M$ 相析出型磁石に粒界拡散処理を行うことも提案されているが、この場合は特許文献4にも記載されているように、磁石中のX量がストイキオメトリよりも少なく欠乏しているため、Nd磁石の主相である $R_2Fe_{14}X$ 相の形成量が少なくなりBrが低下するという問題点が存在する。このために高いBrと高い H_{cJ} はトレードオフの関係にあり、高Brと高 H_{cJ} の両立が困難であった。

[0010] 本発明は、上記課題を鑑みてなされたものであり、上記Nd系焼結磁石において、高Brと高 H_{cJ} との両立を良好に達成することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0011] 本発明者らは、上記目的を達成するため、Nd系焼結磁石の組成、特にBr量とSiやGa等のM元素が $R_6T_{13}M$ 相（Tは鉄族元素で、Feを必須とする。MはSi、Ga等の元素である。）の析出に与える影響と磁気特性との関係に着目して、鋭意検討を行った結果、これらの元素量を適正な範囲内に調整することにより、 $R_2Fe_{14}X$ 相（XはB及びCである。）を十分量形成して高いBrを達成しながら、磁石組織中の粒界部分において粒界拡散法による重希土類濃縮相と、必要最小限量の $R_6T_{13}M$ 相を析出させて高い H_{cJ} を達成し得ることを見出し、本発明を完成したものである。

[0012] 従って、本発明は、下記の希土類焼結磁石を提供する。

[1]

R（Rは希土類元素から選ばれる1種以上の元素であり、Ndを必須とする。）、T（Tは鉄族元素から選ばれる1種以上の元素であり、Feを必須とする。）、B、M¹（M¹はAl、Si、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Ge、Mo、Sn、W、Pb、Biから選ばれる1種以上の元素である。）、

及び M^2 (M^2 はTi、V、Zr、Nb、Hf、Taから選ばれる1種以上の元素である。)を含み、 $R_2T_{14}B$ 相を主相とする希土類焼結磁石であって、上記 M^1 を0.5~2.0原子%含み、かつ上記R、T、 M^2 、Bの原子百分率をそれぞれ[R]、[T]、 $[M^2]$ 、[B]とした場合に、下記の関係式(1)を満足し、

$$([T] / 14) + [M^2] \leq [B] \leq ([R] / 2) + ([M^2] / 2) \dots \quad (1)$$

更に磁石中の全粒界相の0.1~10体積%が、 $R_6T_{13}M^1$ 相で占められていることを特徴とする希土類焼結磁石。

[2]

Rの含有量が12.5~16.0原子%、Bの含有量が5.5~8.0原子%、 M^1 の含有量が0.5~2.0原子%、 M^2 の含有量が0.5原子%以下である[1]の希土類焼結磁石。

[3]

O含有量が0.1質量%以下、N含有量が0.05質量%以下、C含有量が0.07質量%以下である[1]又は[2]の希土類焼結磁石。

[4]

平均結晶粒径が4 μ m以下である[1]~[3]のいずれかの希土類焼結磁石。

[5]

希土類焼結磁石の表面から少なくとも500 μ m以内において、上記主相粒子の表面近傍の少なくとも一部に、上記主相粒子の中心部よりも R^1 (R^1 は希土類元素から選ばれる1種以上の元素であり、上記Rの一部を構成する)濃度が高い領域が存在することを特徴とする[1]~[4]のいずれかの希土類焼結磁石。

[6]

上記 R^1 の少なくとも一部は、焼結後の磁石に粒界拡散により導入されたものである[1]~[5]のいずれかの希土類焼結磁石。

発明の効果

[0013] 本発明の希土類焼結磁石によれば、元素組成、特にM¹元素（M¹はAl、Si、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Ge、Mo、Sn、W、Pb、Biから選ばれる1種以上の元素である。）の含有量を調整すると共に、R元素（Rは希土類元素から選ばれる1種以上の元素であり、Ndを必須とする。）
、T元素（Tは鉄族元素から選ばれる1種以上の元素であり、Feを必須とする。）
、M¹元素（M¹はAl、Si、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Ge、Mo、Sn、W、Pb、Biから選ばれる1種以上の元素である。）
、M²元素（M²はTi、V、Zr、Nb、Hf、Taから選ばれる1種以上の元素である。）及びBの含有量の関係を特定の範囲に調整し最適化したことで、高いBrと高いH_{cj}を両立した優れた磁気特性を得ることができる。

発明を実施するための形態

[0014] 本発明の希土類焼結磁石は、R（Rは希土類元素から選ばれる1種以上の元素であり、Ndを必須とする。）
、T（Tは鉄族元素から選ばれる1種以上の元素であり、Feを必須とする。）
、B、M¹（M¹はAl、Si、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Ge、Mo、Sn、W、Pb、Biから選ばれる1種以上の元素）
、M²（M²はTi、V、Zr、Nb、Hf、Taから選ばれる1種以上の元素である。）を含むものである。

[0015] 上記Rは、上記のとおり、希土類元素から選ばれる1種以上の元素であり、Ndを必須とする。Rの含有量は、特に制限されるものではないが、溶解した合金の α -Feの晶出抑制や焼結時に正常な緻密化を促すという観点から12.5原子%以上が好ましく、より好ましくは13.0原子%以上である。また、高いBrを得る観点から16.0原子%以下が好ましく、より好ましくは15.5原子%以下である。

[0016] R中のNdの割合は、特に限定されるものではないが、全R元素の60原子%以上であることが好ましく、より好ましくは75原子%以上である。また、Nd以外のR元素としては、特に制限されるものではないが、Pr、Dy、Tb、Ho、Ce、Yなどを好ましく含有することができる。

- [0017] 上記Tは、鉄族元素、即ちFe、Co、Niから選ばれる1種以上の元素であり、Feを必須とする。上記R、M¹、M²及びB以外の残部とされるが、好ましくは70原子%以上80原子%以下である。なお、Feの含有割合は、希土類磁石全体の70原子%以上85原子%以下であることが好ましく、より好ましくは75原子%以上80原子%以下である。
- [0018] 上記Bは、特に制限されるものではないが、十分に主相を形成させBrを確保する観点から、5.5原子%以上の含有が好ましく、5.8原子%以上の含有がより好ましく、更に好ましくは6.0原子%以上である。また、Bの含有量が高すぎる場合のNd₁Fe₄X₄相（XはB、又はBとCである。）の析出によるBrへの影響を考慮して、8.0原子%以下が好ましく、7.0原子%以下がより好ましく、更に好ましくは6.5原子%以下である。
- [0019] 上記M¹は、上記のとおり、Al、Si、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Ge、Mo、Sn、W、Pb、Biから選ばれる1種以上の元素であり、R₆T₁₃M¹相を形成する元素である。M¹の含有量は、良好な生産性を確保するための熱処理における最適温度幅を得る、更にはH_{cj}の低下を抑制するという観点から0.5原子%以上とされ、好ましくは0.8原子%以上、より好ましくは1.0原子%以上である。また、高いBrを得る観点から2.0原子%以下とされ、好ましくは1.5原子%以下、より好ましくは1.4原子%以下である。つまり、M¹量が0.5原子%未満であると、十分量のR₆T₁₃M¹相を形成することが困難となって十分なH_{cj}を得ることができず、一方2.0原子%を超えると主相であるR₂T₁₄B相の形成量が減少するためBrが低下することになる。
- [0020] ここで、本発明の希土類焼結磁石では、上記R₆T₁₃M¹相が粒界相に形成されるが、磁石中の全粒界相の0.1～10体積%がこのR₆T₁₃M¹相で占められるものであり、より好ましい占有率は1.0～8.0体積%である。このR₆T₁₃M¹相の全粒界相における占有率が0.1体積%未満であると、十分なH_{cj}を得ることができず、一方10体積%を超えると主相のR₂T₁₄B相の形成量が減少してBrが低下することになり、いずれの場合も本発明の目的を達

成し得ない場合がある。

[0021] 上記粒界相中の $R_6T_{13}M^1$ 相の体積割合は、例えば次のようにして求めることが出来る。まず、焼結磁石の組織観察を EPMA（電子線マイクロアナライザ）によって行い、反射電子組成像と半定量分析結果から $R_6T_{13}M^1$ 相を特定し、磁石の全粒界相中に含む $R_6T_{13}M^1$ 相の面積割合を画像処理によって測定する。この測定を焼結磁石の様々な部位について行い、その平均値を体積割合と定義すればよい。この測定数は、例えば、異なる 10 箇所画像における合計約 1,000 個の粒子の平均とすればよい。

[0022] 上記 M^2 は、上記のとおり、Ti、V、Zr、Nb、Hf、Ta から選ばれる 1 種以上の元素であり、焼結過程における結晶粒の異常粒成長を抑制する効果を得るという観点から含有される。 M^2 の含有量は、特に制限されるものではないが、 M^2 元素によって形成される M^2-B 相が $R_2T_{14}B$ 相比率の減少させることによる B_r 低下を防ぐという観点から、0.5 原子%以下が好ましく、より好ましくは 0.3 原子%以下であり、さらに好ましくは 0.2 原子%以下である。

[0023] ここで、本発明では、上記 R、T、 M^2 及び B の含有量は、これらの原子百分率をそれぞれ [R]、[T]、 $[M^2]$ および [B] とした場合に、次の関係式 (1) を満足するように調整される。

$$([T] / 14) + [M^2] \leq [B] \leq ([R] / 2) + ([M^2] / 2) \dots \quad (1)$$

[0024] このような関係を満たすことにより、高い B_r と高い H_{cJ} を得ることが出来る。その理由は必ずしも明らかでないが、以下のように推測することができる。上記 (1) 式は B 量がストイキオメトリよりも多く含まれていることを示すものである。Ti、Zr、Nb などの M^2 元素は B と一般的に M^2-B_2 相を形成することが知られているが、本発明者らが鋭意検討した結果、希土類焼結磁石の微細組織構造に応じて磁石中で安定ではない M^2-B 相も形成していることが見出され、それを考慮して M^2 元素との相形成に必要な B 量を加えることにより上記 (1) 式を案出したものである。つまり、B 量が $([T] /$

14) + [M²] よりも少ないと主相である R₂T₁₄B 相の形成が不十分なため B_r が低くなり、また ([R] / 2) + ([M²] / 2) よりも多いと R₁T₄B₄ 相の形成が過剰になり同様に B_r が低下して、本発明の目的を達成することが困難となる。

[0025] 本発明の希土類焼結磁石は、上記構成元素以外に、O、N、Cを含有することができる。この場合、Oの含有量は0.1質量%以下であることが好ましく、より好ましくは0.08質量%以下である。また、上記Nの含有量は0.05質量%以下であることが好ましく、より好ましくは0.03質量%以下である。更に、上記Cの含有量は、0.07質量%以下であることが好ましく、より好ましくは0.05質量%以下である。Cの含有量が0.07質量%を超えた場合、H_{cj}は低下する場合がある。O、N、Cの含有量が上記範囲であれば、良好な磁気特性、特に良好なH_{cj}をより確実に得ることができる。なお、本発明において、これらO、N、Cの含有量は少ないほど良いが、通常、これらの元素は完全に排除することが困難な不可避的な元素である。

[0026] 更に、本発明の希土類焼結磁石は、上記元素以外に、製造上不可避な不純物として、H、F、Mg、P、S、Cl、Caなどの元素を含有することがある。この場合、上述した磁石の構成元素と不可避不純物との合計に対し、これら不可避不純物の合計として0.1質量%以下まで許容するが、これらの不可避不純物はできるだけ少ない方が好ましい。

[0027] 本発明の希土類焼結磁石では、特に制限されるものではないが、平均結晶粒径を4 μm以下とすることが好ましく、より好ましい平均結晶粒径は3.5 μm以下である。このように平均結晶粒径を調整することにより、良好な磁気特性、特に良好なH_{cj}をより確実に得ることができる。平均結晶粒径の測定は、例えば次の手順で行うことができる。まず、焼結磁石の断面を鏡面になるまで研磨した後、例えばピレラ液（例えば、混合比がグリセリン：硝酸：塩酸＝3：1：2の混合液）などのエッチング液に浸漬して粒界相を選択的にエッチングした断面を、レーザー顕微鏡にて観察する。次に、得られた

観察像をもとに、画像解析にて個々の粒子の断面積を測定し、等価な円としての直径を算出する。そして、各粒度の占める面積分率のデータを基に、平均径を求める。なお、平均径は、複数箇所画像における多数の粒子の平均とすることが好ましく、例えば、異なる20箇所の画像における合計約2,000個の粒子の平均とすればよい。

[0028] 次に、本発明の希土類焼結磁石を製造する方法について説明する。

本発明の希土類焼結磁石を作製する工程は、基本的には、通常の粉末冶金法と同様であり、特に制限されるものではないが、通常は、原料を溶解して所定の組成を有する原料合金を得る溶解工程、原料合金を粉砕して合金微粉末を調製する粉砕工程、合金微粉末を磁場印加中で圧粉成形して成形体を得る成形工程、成形体を熱処理して焼結体を得る熱処理工程を含む。

[0029] まず、溶解工程においては、所定の組成となるように各元素の原料となる金属又は合金を秤量する。所定の組成に秤量した後、例えば、高周波溶解により原料を溶解し、冷却して原料合金を製造する。原料合金の鑄造は、平型やブックモールドに鑄込む溶解鑄造法やストリップキャスト法が一般的には採用される。また、Nd磁石の主相である $R_2Fe_{14}B$ 化合物組成に近い合金と焼結温度で液相助剤となるRリッチな合金とを別々に作製し、粗粉砕後に秤量混合する、いわゆる二合金法も本発明には適用可能である。但し、主相組成に近い合金は、鑄造時の冷却速度や合金組成に依存して $\alpha-Fe$ 相が晶出しやすいことから、組織を均一化し、 $\alpha-Fe$ 相を消去する目的で必要に応じて真空あるいはAr雰囲気中にて700~1,200℃で1時間以上の均質化処理を施すことが好ましい。なお、主相組成に近い合金をストリップキャスト法にて作製した場合は均質化を省略することもできる。液相助剤となるRリッチな合金については上記鑄造法のほかに、いわゆる液体急冷法も適用できる。

[0030] 上記粉砕工程は、例えば粗粉砕工程と微粉砕工程を含む複数段階の工程とすることができる。粗粉砕工程では、例えば、ジョークラッシャー、ブラウンミル、ピンミルあるいは水素粉砕を用いることができる。この場合、本発

明においては、特に制限されるものではないが、O、N、C量の低減を図り優れた磁気特性を得る観点から、水素粉砕が好ましく採用される。特に、ストリップキャストにより作製された合金の場合には、水素粉砕が適用することが好ましく、通常0.05mm～3mm、特に0.05mm～1.5mmに粗粉砕された粗粉を得ることができる。

[0031] 上記微粉砕工程においては、上記粗粉を、例えばN₂、He、Arなどの非酸化性ガス気流によるジェットミルを用いて粉砕する方法を採用することができる。本発明においては、この微粉砕工程で、上記粗粉を、好ましくは0.2μm～15μm、より好ましくは0.5μm～10μmに微粉砕する。希土類焼結磁石のO、Nは主に微粉砕工程から混入することから、希土類焼結磁石中のO、Nの含有量を調整するためにはジェットミル雰囲気制御が必要である。希土類焼結磁石中のO含有量の調整はジェットミル雰囲気中のO量および露点の制御によって行い、粉砕時の雰囲気中のO量は1ppm以下、露点は-60℃以下にすることが好適である。

[0032] また、希土類焼結磁石中のN含有量は、例えば、(A) He、Arガス気流によるジェットミルで微粉砕を行う方法、(B) N₂ガス気流のジェットミル中に水素を導入して微粉砕を行う方法、もしくは(C) 水素を含有した粗粉を用いてN₂ガス気流のジェットミルで微粉砕を行う方法で、調整することができる。この場合、(B) 又は(C)の方法では、水素ガスを導入あるいは水素を含有した粗粉を用いることで、粉砕により生じた活性面へ水素が優先的に吸着し、窒素の吸着を阻害することで、希土類焼結磁石中のN量を低減することが可能となる。

[0033] ここで、原料合金の粗粉砕、微粉砕の一方又は両方の工程において、次工程である磁場中での成形において粉の配向性を上げるため、例えば、飽和脂肪酸もしくはそのエステルからなる潤滑剤を適宜添加することができる。その際、通常は、潤滑剤添加量を増やすことは配向の向上に有効であるものの、潤滑剤由来のCによって希土類焼結磁石中に多くのR-CO-N相が形成されることでH_{cj}が著しく低下するというジレンマが生じる。そこで、配向向上

を図る際に、上記（C）の方法により水素を含有した粗粉を用いて微粉碎を行った微粉に対して潤滑剤の増量を行うことが好ましい。その微粉から作製された希土類焼結磁石では、熱処理時に、内部に含有した水素が脱離する際、その水素によって微粉表面に化学吸着する潤滑剤をカルボニル還元反応等により分解し、さらに水素ガスによるクラッキング反応により揮発性の高い低級アルコールに分解、解離する作用によって、希土類焼結磁石中に残留するC含有量を低減できると考えられる。

[0034] 上記成形工程においては、 $400 \sim 1,600 \text{ kA/m}$ の磁界を印加し、合金粉末を磁化容易軸方向に配向させながら、圧縮成形機で圧粉成形する。このとき、成形体密度を $2.8 \sim 4.2 \text{ g/cm}^3$ にすることが好ましい。即ち、成形体の強度を確保して良好な取扱性を得る観点から、成形体密度は 2.8 g/cm^3 以上とすることが好ましい。また、成形後の成形体の強度を上げるためPVAや脂肪酸などのバインダーを添加することもできる。一方、十分な成形体強度を得つつ、加圧時の粒子の配向の乱れを抑制することで好適なBrを得る観点から、成形体密度は 4.2 g/cm^3 以下が好ましい。また、成形は合金微粉の酸化を抑制するため、窒素ガス、Arガスなどの不活性ガス雰囲気で行うことが好ましい。

[0035] 上記熱処理工程においては、成形工程で得られた成形体をArガスなどの非酸化性雰囲気中又は高真空中で焼結する。上記（C）の方法により水素を含有した粗粉を使用した場合、成形体中の水素ガスの放出（吸熱反応）に伴う成形体の温度低下、ならびに温度差によって生ずるクラックの発生を抑制するため、 $200 \sim 600^\circ\text{C}$ で5分から10時間、非酸化性雰囲気あるいは低真空雰囲気中で保持した後に焼成を行うことが好ましい。一般的に前記焼結は $950^\circ\text{C} \sim 1,200^\circ\text{C}$ の温度範囲で0.5～10時間保持することで行うことが好ましい。続いて、得られた焼結体に、 H_c を高めることを目的に、前記焼結温度より低い温度で熱処理を実施してもよい。この焼結後の熱処理は、高温熱処理と低温熱処理の2段階の熱処理を行っても良いし、低温熱処理のみを行っても良い。高温熱処理では、焼結体を $600 \sim 950^\circ\text{C}$ の温

度で熱処理することが好ましく、低温熱処理では400～600℃の温度で熱処理することが好ましい。

[0036] このようにして本発明の希土類焼結磁石を得ることができる。この希土類焼結磁石の平均結晶粒径は、上述したように、例えばレーザー顕微鏡により観察することにより、容易に測定することができる。具体的には、例えば磁石を研削、鏡面加工行った後、ナイトール液やピレラ液などの腐食液で表面を腐食した後、その面の反射電子像から画像解析により求めることができる。

[0037] また、得られた希土類焼結磁石を所定形状に研削した後、 R^2 の酸化物、 R^3 のフッ化物、 R^4 の酸フッ化物、 R^5 の水酸化物、 R^6 の炭酸塩、 R^7 の塩基性炭酸塩、 R^8 の単体金属もしくは合金から選ばれる1種又は2種以上（ $R^2\sim R^8$ は希土類元素から選ばれる1種以上）の拡散源を、上記希土類焼結磁石表面に存在させた状態で熱処理する、所謂粒界拡散処理を施すことができる。上記拡散源の磁石表面への固定方法は、粉末状の拡散源を含むスラリーに焼結磁石を浸漬して該スラリーを塗布し、乾燥するディップコート法や、スクリーンプリンティング法、あるいはスパッタやPLDなどの乾式成膜法など採用してもよい。粒界拡散熱処理の温度は焼結温度より低い温度であり、700℃以上が好ましく、時間は良好な焼結磁石の組織や磁気特性を得る観点から、特に制限されるものではないが、好ましくは5分～80時間、より好ましくは10分～50時間である。この粒界拡散処理によって粉末中に含まれる上記 $R^2\sim R^8$ を磁石中に拡散させて H_{cJ} のさらなる増大を図ることができる。なお、上記粒界拡散により導入される希土類元素は、説明の便宜上、上記のとおり $R^2\sim R^8$ としたが、粒界拡散後は、いずれも本発明希土類焼結磁石における上記R成分に包含される。また、特に制限されるものではないが、この $R^2\sim R^8$ を含む上記拡散源としては、Dy、Tb及びHoから選ばれる1種以上の元素を含有する金属、化合物又は金属間化合物を用いることが好ましく、これによってより効果的に H_{cJ} の増大を図ることができる。

[0038] 本発明の希土類焼結磁石は、上記元素組成及び上記関係式(1)を満足す

るものであればよく、上記R元素として必ずしも上記粒界拡散により導入されたR¹（R¹は上記粒界拡散処理によって導入されたR²～R⁸元素の総称である）を含む必要はないが、より良好なH_{cj}を得る観点から、上記粒界拡散により導入されたR¹を含むものであることが好ましい。この粒界拡散処理を適用した磁石は、R元素について特徴的な濃度分布を示す。即ち、上記拡散源を付与した磁石表面から少なくとも500μm以内において、主相粒子の表面近傍の少なくとも一部に、該主相粒子の中心部よりもR¹濃度の高い領域が存在する組織が形成される。

実施例

[0039] 以下、実施例、比較例を示し、本発明をより具体的に説明するが、本発明は下記実施例に制限されるものではない。

[0040] [実施例1, 2, 比較例1, 2]

Ndメタル、Prメタル、Dyメタル、フェロボロン合金、電解Co、Alメタル、Cuメタル、Gaメタル、Siメタル、Zrメタルおよび電解鉄を用いて（メタルはいずれも純度99%以上）、所定の割合となるように秤量・配合し、それらの原料を溶解してストリップキャスト法により鑄造し、厚み0.2～0.4mmのフレーク状の原料合金を得た。得られたフレーク状の原料合金を水素加圧雰囲気中で水素脆化させることで粗粉碎粉を得た。次に、得られた粗粉碎粉に、潤滑剤としてステアリン酸を粗粉碎粉100質量%に対して0.20質量%添加・混合した後、気流式粉碎機（ジェットミル装置）を用いて窒素気流中で乾式粉碎し、微粉粒径（D₅₀）が2.8～3.0μmとなる微粉碎粉（合金粉末）を得た。なお、微粉粒径（D₅₀）は、気流分散法によるレーザー回折法で得られた体積基準メジアン径である。

[0041] この微粉碎粉を不活性ガス雰囲気中で成形装置の金型に充填し、15kOe（1.19MA/m）の磁界中で配向させながら、磁界に対して垂直方向に加圧成形した。この時の成形体密度は3.0～4.0g/cm³であった。得られた成形体を、600℃で2時間、Ar雰囲気中で保持したのち、真空中、1,040℃以上1,080℃以下（サンプル毎に焼結による緻密化が

十分起こる温度を選定)で5時間焼結し、Nd磁石素材を得た。得られたNd磁石素材の密度は 7.5 g/cm^3 以上であった。

[0042] 得られたNd磁石素材について、高周波誘導結合プラズマ発光分光分析法(ICP-OES)を使用して金属成分分析を行い、併せて酸素、炭素、窒素の分析を赤外線吸収ガス分析にて行った。結果を表1に示す。なお、表1記載値は原子%である。また、各Nd磁石素材について、レーザー顕微鏡による観察を行って平均結晶粒径を測定した。その結果を表2に示す。更に、このNd磁石素材を $15\text{ mm} \times 7\text{ mm} \times 12\text{ mm}$ のサイズの直方体形状に加工してサンプルを作成し、BHトレーサーによって B_r 、 H_{cJ} を測定した。結果を表2に示す。

[0043] このNd磁石素材を $20\text{ mm} \times 20\text{ mm} \times 2.2\text{ mm}$ のサイズの直方体形状に加工後、平均粒径 $0.5\text{ }\mu\text{m}$ の酸化テルビウム粒子を質量分率50%でエタノールと混合したスラリー中に浸漬して該スラリーを塗布し、乾燥させ、Nd磁石素材表面に酸化テルビウムの塗膜を形成した。次に、塗膜が形成されたNd磁石素材を真空中で、 950°C 、5時間で加熱した後、 200°C まで 20°C/min の冷却速度で冷却する高温熱処理を実施し、テルビウムを粒界拡散させた。次いで、 450°C で2時間加熱した後、 200°C まで 20°C/min の冷却速度で冷却する低温熱処理を実施して、Nd焼結磁石を得た。得られたNd焼結磁石の中心部を $6\text{ mm} \times 6\text{ mm} \times 2\text{ mm}$ のサイズの直方体形状に切り出し、パルストレーサーによって H_{cJ} の測定を行った。その結果を表2に示す。また、この磁石片の組織観察をEPMAによって行い、反射電子組成像と半定量分析結果から $R_6T_{13}M^1$ 相を特定し、磁石の全粒界相中に含む $R_6T_{13}M^1$ 相の割合を画像処理によって測定した。その結果を表2に示す。なお、表2において、本発明の規定を満たす項目は○、満たさない項目は×として示す。

[0044]

[表1]

	Nd	Pr	Fe	Co	Cu	Zr	Al	B	Si	Ga	O	N	C
比較例 1	11.38	3.15	76.96	0.50	0.63	0.14	0.20	5.51	0.12	0.73	0.32	0.08	0.24
比較例 2	11.38	3.16	76.91	0.49	0.62	0.14	0.20	5.62	0.12	0.73	0.28	0.09	0.27
実施例 1	11.37	3.14	76.86	0.49	0.62	0.14	0.17	5.75	0.12	0.72	0.28	0.09	0.27
実施例 2	11.36	3.15	76.71	0.49	0.62	0.14	0.20	5.84	0.12	0.73	0.29	0.09	0.25

(at%)

[0045] [表2]

	平均結晶粒径 [μm]	粒界相中に占める $R_6T_{13}M^1$ 相の割合 [体積%]	式 (1)	M^1 含有量	Br [kG]	粒界拡散前 H_{cJ} [kOe]	粒界拡散後 H_{cJ} [kOe]
比較例 1	3.6	18	×	○	13.31	19.6	28.3
比較例 2	3.5	12	×	○	13.54	18.8	28.6
実施例 1	3.6	7	○	○	13.81	17.5	28.4
実施例 2	3.6	3	○	○	13.92	15.6	28.8

[0046] [実施例 3～5、比較例 3, 4]

実施例 1 と同様な手順で磁石の作製を行った。その際、表 3 に示したように、Nd 量、Pr 量を実施例 1 と比較して削減し Fe 量を増加させ、更に B 量を表 3 に示すように変化させて磁石を作製した。得られた各磁石について、実施例 1 と同様にして、平均結晶粒径、 $R_6T_{13}M^1$ 相の占有率、 M^1 含有量、Br、 H_{cJ} を測定した。結果を表 4 に示す。なお、表 4 においても、本発明の規定を満たす項目は○、満たさない項目は×として示す。

[0047] [表3]

	Nd	Pr	Fe	Co	Cu	Zr	Al	B	Si	Ga	O	N	C
比較例 3	10.97	3.08	77.70	0.53	0.20	0.14	0.24	5.56	0.12	0.71	0.39	0.13	0.24
比較例 4	10.71	3.11	77.95	0.50	0.19	0.15	0.24	5.68	0.14	0.72	0.32	0.10	0.21
実施例 3	10.83	3.16	77.68	0.50	0.20	0.14	0.27	5.81	0.12	0.72	0.29	0.09	0.26
実施例 4	10.87	3.10	77.72	0.50	0.20	0.15	0.17	5.90	0.12	0.72	0.32	0.09	0.25
実施例 5	10.92	3.11	77.35	0.50	0.19	0.14	0.24	6.04	0.12	0.73	0.32	0.14	0.26

(at%)

[0048]

[表4]

	平均結晶粒径 [μm]	粒界相中に占める $R_6T_{13}M^1$ 相の割合 [体積%]	式 (1)	M^1 含有量	Br [kG]	粒界拡散前 H_{cJ} [kOe]	粒界拡散後 H_{cJ} [kOe]
比較例 3	3.5	16	×	○	13.70	18.0	26.2
比較例 4	3.6	11	×	○	13.84	18.0	27.2
実施例 3	3.6	6	○	○	14.11	17.0	28.0
実施例 4	3.5	4	○	○	14.19	16.0	28.5
実施例 5	3.6	3	○	○	14.12	15.8	28.3

[0049] 実施例 1～実施例 5 と比較例 1～比較例 4 とを比較考察すると、本発明で規定の M^1 含有量を満たした上で、更に式 (1) の条件を満たす場合 (実施例 1～5)、高い Br と高い H_{cJ} が得られることが分かる。これはストイキオメトリよりも多く B を含むことで $R_6T_{13}M^1$ 相の生成が必要最小限となり、これにより Br の低下を抑制し、かつ安定して高い H_{cJ} を達成できたと考えられる。一方、式 (1) の条件を満たさず B がストイキオメトリよりも少ない場合 (比較例 1～4)、 $R_6T_{13}M^1$ 相の形成により高い H_{cJ} は達成できるが、主相の $R_2T_{14}B$ 相の量が減少するため顕著に Br が低下することが分かる。

[0050] [実施例 6～9、比較例 5, 6]

実施例 1 と同様な手順で磁石の作製を行った。その際、表 5 に示したように、Nd 量、Pr 量を実施例 1 と比較して削減し Fe 量を増加させた。得られた各磁石について、実施例 1 と同様にして、平均結晶粒径、 $R_6T_{13}M^1$ 相の占有率、 M^1 含有量、Br、 H_{cJ} を測定した。結果を表 4 に示す。なお、表 4 においても、本発明の規定を満たす項目は○、満たさない項目は×として示す。

[0051] [表5]

	Nd	Pr	Fe	Co	Cu	Zr	Al	B	Si	Ga	O	N	C
比較例 5	11.03	2.93	78.31	0.49	0.18	0.14	0.24	5.91	0.02	0.00	0.35	0.08	0.31
実施例 6	10.92	3.01	77.98	0.65	0.19	0.15	0.22	5.85	0.05	0.28	0.33	0.11	0.27
実施例 7	10.91	3.03	77.92	0.54	0.18	0.14	0.22	5.85	0.02	0.46	0.34	0.11	0.27
実施例 8	11.07	3.00	77.60	0.51	0.19	0.14	0.22	5.81	0.05	0.75	0.31	0.11	0.26
実施例 9	11.17	3.04	77.08	0.52	0.19	0.14	0.22	5.82	0.05	1.13	0.30	0.11	0.23
比較例 6	11.02	3.03	76.51	0.50	0.19	0.15	0.22	5.83	0.02	1.70	0.30	0.11	0.22

(at%)

[0052] [表6]

	平均結晶粒径 [μm]	粒界相中に占める $\text{R}_6\text{T}_{13}\text{M}^1$ 相の割合 [体積%]	式 (1)	M^1 含有量	Br [kG]	粒界拡散前 H_{cJ} [kOe]	粒界拡散後 H_{cJ} [kOe]
比較例 5	3.5	0	○	×	14.32	14.8	24.7
実施例 6	3.6	2	○	○	14.27	16.4	27.1
実施例 7	3.6	3	○	○	14.23	16.4	27.3
実施例 8	3.6	5	○	○	14.12	16.0	27.7
実施例 9	3.5	9	○	○	14.02	16.2	28.4
比較例 6	3.5	14	○	×	13.72	16.3	28.5

[0053] 実施例 6～実施例 9 と比較例 5, 6 を比較考察すると、 M^1 元素の量が少ない場合（比較例 5）は $\text{R}_6\text{T}_{13}\text{M}^1$ 相が形成せず高い H_{cJ} が得られず、一方で M^1 元素の量が多い場合（比較例 6）は、 $\text{R}_6\text{T}_{13}\text{M}^1$ 相の形成量が多くなることで主相量が減少し、Br が顕著に低下することが分かる。式（1）と M^1 含有量の両方の要件を満たす場合は実施例 6～9 のように高い Br と高い H_{cJ} が得られる。

[0054] 以上のとおり、本発明の要件を満足する実施例 1～9 の磁石は粒界拡散後 H_{cJ} が 27 kOe を超えており、電気自動車などの高い耐熱性が要求される用途で利用可能である。また Br も 13.7 kG を上回る特性が得られており、モータの小型化が可能となる。

請求の範囲

[請求項1] R (Rは希土類元素から選ばれる1種以上の元素であり、Ndを必須とする。)、T (Tは鉄族元素から選ばれる1種以上の元素であり、Feを必須とする。)、B、M¹ (M¹はAl、Si、Cr、Mn、Cu、Zn、Ga、Ge、Mo、Sn、W、Pb、Biから選ばれる1種以上の元素である。)、及びM² (M²はTi、V、Zr、Nb、Hf、Taから選ばれる1種以上の元素である。)を含み、R₂T₁₄B相を主相とする希土類焼結磁石であって、上記M¹を0.5~2.0原子%含み、かつ上記R、T、M²、Bの原子百分率をそれぞれ[R]、[T]、[M²]、[B]とした場合に、下記の関係式(1)を満足し、

$$([T] / 14) + [M^2] \leq [B] \leq ([R] / 2) + ([M^2] / 2) \dots (1)$$

更に磁石中の全粒界相の0.1~10体積%が、R₆T₁₃M¹相で占められていることを特徴とする希土類焼結磁石。

[請求項2] Rの含有量が12.5~16.0原子%、Bの含有量が5.5~8.0原子%、M¹の含有量が0.5~2.0原子%、M²の含有量が0.5原子%以下である請求項1記載の希土類焼結磁石。

[請求項3] O含有量が0.1質量%以下、N含有量が0.05質量%以下、C含有量が0.07質量%以下である請求項1又は2記載の希土類焼結磁石。

[請求項4] 平均結晶粒径が4μm以下である請求項1~3のいずれか1項に記載の希土類焼結磁石。

[請求項5] 希土類焼結磁石の表面から少なくとも500μm以内において、上記主相粒子の表面近傍の少なくとも一部に、該主相粒子の中心部よりもR¹ (R¹は、希土類元素から選ばれる1種以上の元素であり、上記Rの少なくとも一部を構成する)の濃度が高い領域が存在する請求項1~4のいずれか1項に記載の希土類焼結磁石。

[請求項6] 上記R¹は、焼結後の磁石に粒界拡散により導入されたものである
請求項5記載の希土類焼結磁石。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/045456

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C22C 38/00(2006.01) i; H01F 1/057(2006.01) i; B22F 3/00(2021.01) i
 FI: H01F1/057 170; C22C38/00 303D; C22C38/00 304; B22F3/00 F

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)
 B22F3/00; C22C38/00; H01F1/057

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

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2021
Registered utility model specifications of Japan	1996-2021
Published registered utility model applications of Japan	1994-2021

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	JP 2016-164958 A (HITACHI METALS, LTD.) 08	1-3
Y	September 2016 (2016-09-08) paragraphs [0018], [0023], [0042]-[0047], [0055], [0068]-[0070]	4-6
Y	JP 2017-157833 A (TDK CORPORATION) 07 September 2017 (2017-09-07) paragraphs [0035]-[0036], [0065]	4-6
Y	JP 2015-179841 A (HITACHI METALS, LTD.) 08 October 2015 (2015-10-08) paragraphs [0044]-[0047]	5, 6

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	“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
“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	“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
“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date	“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
“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)	“&” document member of the same patent family
“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	

Date of the actual completion of the international search 09 February 2021 (09.02.2021)	Date of mailing of the international search report 22 February 2021 (22.02.2021)
--	---

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
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2020/045456

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2016-164958 A	08 Sep. 2016	US 2017/0018342 A1 paragraphs [0081]- [0084], [0092]- [0093], [0158]- [0167], [0180], [0186]-[0187] WO 2015/129861 A1 CN 105960690 A	
JP 2017-157833 A	07 Sep. 2017	US 2017/0250015 A1 paragraphs [0048]- [0049], [0083] DE 10201720307 4 A CN 1071:30183 A	
JP 2015-179841 A	08 Oct. 2015	US 2017/0018342 A1 paragraphs [0149]- [0151] WO 2015/129861 A1 CN 105960690 A	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C22C 38/00(2006.01)i; H01F 1/057(2006.01)i; B22F 3/00(2021.01)i FI: H01F1/057 170; C22C38/00 303D; C22C38/00 304; B22F3/00 F		
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）） B22F3/00; C22C38/00; H01F1/057 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 - 2021年 日本国実用新案登録公報 1996 - 2021年 日本国登録実用新案公報 1994 - 2021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	JP 2016-164958 A（日立金属株式会社）08.09.2016（2016 - 09 - 08） 段落0018, 0023, 0042-0047, 0055, 0068-0070	1-3
Y		4-6
Y	JP 2017-157833 A（TDK株式会社）07.09.2017（2017 - 09 - 07） 段落0035-0036, 0065	4-6
Y	JP 2015-179841 A（日立金属株式会社）08.10.2015（2015 - 10 - 08） 段落0044-0047	5, 6
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> 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抵触するものではなく、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 09.02.2021	国際調査報告の発送日 22.02.2021	
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 木下 直哉 5D 3858 電話番号 03-3581-1101 内線 3551	

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2020/045456

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	2016-164958	A	08.09.2016	US	2017/0018342	A1	段落0081-0084, 0092-0093, 0158-0167, 0180, 0186-0187
				WO	2015/129861	A1	
				CN	105960690	A	
JP	2017-157833	A	07.09.2017	US	2017/0250015	A1	段落0048-0049, 0083
				DE	102017203074	A	
				CN	107130183	A	
JP	2015-179841	A	08.10.2015	US	2017/0018342	A1	段落0149-0151
				WO	2015/129861	A1	
				CN	105960690	A	