

(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
2012 年 8 月 9 日(09.08.2012)



(10) 国際公開番号

WO 2012/105346 A1

- (51) 国際特許分類:
H01F 41/02 (2006.01) C22C 38/00 (2006.01)
B22F 1/00 (2006.01) H01F 1/053 (2006.01)
B22F 3/00 (2006.01) H01F 1/06 (2006.01)
C22C 33/02 (2006.01) H01F 1/08 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/051265
- (22) 国際出願日: 2012 年 1 月 20 日(20.01.2012)
- (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 2011-019998 2011 年 2 月 1 日(01.02.2011) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): T D K株式会社(TDK Corporation) [JP/JP]; 〒1038272 東京都中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 奥田 修弘(OKUDA Nobuhiro) [JP/JP]; 〒1038272 東京都中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 T D K株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外(HASEGAWA Yoshiki et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目 1 番 1 号丸の内 M Y P L A Z A (明治安田生命

ビル) 9 階 創英国際特許法律事務所 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, 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, JP, 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, QA, RO, RS, RU, RW, 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).

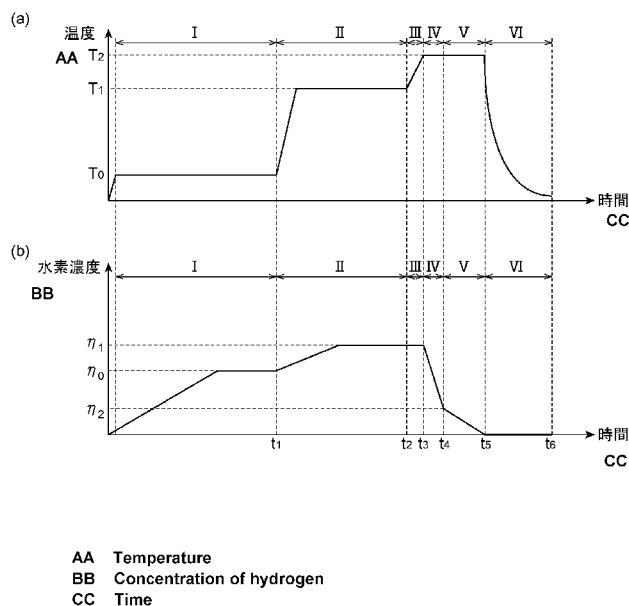
添付公開書類:

— 国際調査報告(条約第 21 条(3))

(54) Title: PROCESS FOR PRODUCTION OF RARE EARTH ALLOY POWDER, ANISOTROPIC BONDED MAGNET, AND SINTERED MAGNET

(54) 発明の名称: 希土類合金粉末の製造方法、並びに異方性ボンド磁石及び焼結磁石

【図1】



希土類元素を示す。)が希土類水素化物相を覆っており、 $R_2Fe_{14}B$ 相の面積割合が上記断面の面積全体を基準として、25~55%となる時点で、工程(b)から工程(c)に移行することを特徴とする水素化分解・脱水素再結合法による希土類合金粉末の製造方法。

(57) Abstract: A process for producing a rare earth alloy powder by a hydrogenation-decomposition/dehydrogenation-recombination method, which comprises (a) a step of hydrogenating/decomposing a raw material alloy containing a rare earth element to produce a decomposition product, (b) a step of releasing hydrogen from the decomposition product to reduce the hydrogen concentration in the decomposition product, and (c) a step of further releasing hydrogen from the decomposition product at a lower release rate than the hydrogen release rate employed in step (b) to produce the rare earth alloy powder, and which is characterized in that an $R_2Fe_{14}B$ phase (wherein R represents a rare earth element) covers a rare earth hydride phase in the cross section of the decomposition product, and step (b) advances to step (c) at the time point at which the ratio of the area of the $R_2Fe_{14}B$ phase to the total area of the cross section becomes 25-55%.

(57) 要約: (a) 希土類元素を含有する原料合金を水素化分解させて分解生成物を得る工程と、(b) 分解生成物から水素を放出させて分解生成物の水素濃度を低減する工程と、(c) 工程(b)における水素の放出速度よりも低い放出速度で分解生成物から水素を更に放出させて希土類合金粉末を得る工程と、を備え、分解生成物の断面において、 $R_2Fe_{14}B$ 相(Rは希土類元素を示す。)が希土類水素化物相を覆っており、 $R_2Fe_{14}B$ 相の面積割合が上記断面の面積全体を基準として、25~55%となる時点で、工程(b)から工程(c)に移行することを特徴とする水素化分解・脱水素再結合法による希土類合金粉末の製造方法。

WO 2012/105346 A1

明 細 書

発明の名称：

希土類合金粉末の製造方法、並びに異方性ボンド磁石及び焼結磁石

技術分野

[0001] 本発明は、希土類合金粉末の製造方法、並びに異方性ボンド磁石及び焼結磁石に関する。

背景技術

[0002] 磁石用の合金粉末を製造する方法として、HDDR法（水素化分解・脱水素再結合法）が知られている。HDDR法とは、水素化（Hydrogenation）、不均化（Disproportionation）、脱水素化（Desorption）、及び再結合（Recombination）を順次実行するプロセスである。

[0003] このHDDR法は、固相－気相反応を伴う方法であるため、その反応機構が複雑であり、製造条件によって、得られる磁石粉末の保磁力などの磁気特性が変動する。このため、HDDR法を用いた磁石粉末の製造において、製造条件を調整することによって磁石粉末の磁気特性を改善することが試みられている。例えば、特許文献1では、脱水素再結合の処理中に、雰囲気を制御することによって反応速度を変えて磁石粉末の磁気特性を改善することが提案されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2001-115220号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] しかしながら、上記特許文献1のように雰囲気を制御しても、十分に高い保磁力を得ることは困難である。このため、HDDR法を用いて優れた磁気特性を有する希土類合金粉末を製造する方法を確立することが求められてい

る。

[0006] 本発明は上記事情に鑑みてなされたものであり、HDDR法を改良した方法であって、優れた磁気特性を有する希土類合金粉末を製造可能な方法を提供することを目的とする。また、上記方法によって製造された希土類合金粉末を含む異方性ボンド磁石及び焼結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

[0007] 本発明に係る希土類合金粉末の製造方法は、水素化分解・脱水素再結合法による希土類合金粉末の製造方法であって、

(a) 希土類元素を含有する原料合金を水素化分解させて分解生成物を得る工程と、

(b) 分解生成物から水素を放出させて分解生成物の水素濃度を低減する工程と、

(c) 工程(b)における水素の放出速度よりも低い放出速度で分解生成物から水素を更に放出させて希土類合金粉末を得る工程と、

を備え、分解生成物の断面において、 $R_2Fe_{14}B$ 相(Rは希土類元素を示す。)が希土類水素化物相を覆っており、 $R_2Fe_{14}B$ 相の面積割合が上記断面の面積全体を基準として、25～55%となる時点で、工程(b)から工程(c)に移行することを特徴とする。

[0008] 上記方法は、水素化分解・脱水素再結合法を改良した方法であり、優れた磁気特性を有する希土類合金粉末を製造することができる。このような希土類合金粉末が得られる主な要因としては、工程(c)における水素の放出速度を、工程(b)における水素の放出速度よりも小さくしていること、及び工程(b)から工程(c)に移行するタイミングを、 $R_2Fe_{14}B$ 相の粒成長の程度により規定していることが考えられる。つまり、工程(a)で得られた分解生成物に対する脱水素再結合処理を工程(b)及び工程(c)で実施することで、分解生成物中に生成した $R_2Fe_{14}B$ 相の核が粗大粒へと成長することを抑制でき、微細化した $R_2Fe_{14}B$ 相を有する希土類合金粉末が得られるものと考えられる。

[0009] 本発明の製造方法は、上記断面のモルフォロジーを観察することにより、工程（b）から工程（c）に移行するタイミングを決定する工程を更に備えたものであってもよい。当該工程を実施することで、例えば、新たな組成の希土類合金粉末を製造する場合や製造条件を変更した場合であっても、微細化した $R_2Fe_{14}B$ 相を有する希土類合金粉末を安定的に作製できる。

[0010] また、本発明は、上記の製造方法によって製造された異方性を有する希土類合金粉末と、樹脂とを含む異方性ボンド磁石を提供する。本発明の異方性ボンド磁石は、優れた磁気特性を有する異方性の希土類合金粉末を含んでいるため、優れた磁気特性を有する。

[0011] 更に、本発明は、上記の製造方法によって製造された異方性を有する希土類合金粉末の成形体を焼結して得られる焼結磁石を提供する。本発明の焼結磁石は、優れた磁気特性を有する異方性の希土類合金粉末を含んでいるため、優れた磁気特性を有する。

発明の効果

[0012] 本発明によれば、優れた磁気特性を有する希土類合金粉末を製造することができ、また、優れた磁気特性を有する異方性ボンド磁石及び焼結磁石を提供できる。

図面の簡単な説明

- [0013] [図1]本実施形態に係る希土類合金粉末の製造方法のタイムチャートである。
- [図2]本実施形態に係る希土類合金粉末の製造工程における、第1の脱水素再結合工程終了時点での分解生成物の微細構造を拡大して示す模式断面図である。
- [図3]本実施形態に係る異方性ボンド磁石を示す斜視図である。
- [図4]本実施形態に係る焼結磁石を示す斜視図である。
- [図5]本実施例に係る希土類合金粉末の製造工程における、第1の脱水素再結合工程終了時点での分解生成物の断面SEM写真である。
- [図6]第1の脱水素再結合工程終了時点での分解生成物の断面SEM写真である。

発明を実施するための形態

[0014] <希土類合金粉末の製造方法>

本実施形態の希土類合金粉末の製造方法は、いわゆる水素化分解・脱水素再結合法（HDDR法）による希土類合金粉末の製造方法である。この製造方法は、希土類元素の含有量が ρ （質量％）である原料合金を準備し、当該合金を、水素雰囲気中、温度 T_0 で所定時間保持する水素吸蔵工程と、温度 T_0 よりも高い温度 T_1 で水素化分解させて水素濃度 η_1 （質量％）の分解生成物を得る水素化分解工程（工程（a））と、温度 T_1 から温度 T_1 よりも高い温度 T_2 に昇温する昇温工程と、温度 T_2 で、分解生成物から水素を所定の速度で放出させて、分解生成物の水素濃度を η_1 （質量％）から η_2 （質量％）まで低減する第1の脱水素再結合工程（工程（b））と、第1の脱水素再結合工程よりも分解生成物からの水素の放出速度を低くして、分解生成物の水素濃度 η をさらに低減し、水素を実質的に含まない希土類合金粉末を得る第2の脱水素再結合工程（工程（c））と、希土類合金粉末を室温にまで冷却する冷却工程とを有する。

[0015] 図1は、本実施形態に係る希土類合金粉末の製造方法のタイムチャートである。図1の（a）は、温度のタイムチャートであり、図1の（b）は、原料合金、分解生成物及び希土類合金粉末の水素濃度のタイムチャートである。以下、図1を適宜参照しながら本実施形態の製造方法を説明する。

[0016] 水素吸蔵工程（図1中のI）は、希土類元素の含有量が ρ （質量％）である原料合金を、水素雰囲気中、温度 T_0 で所定時間保持して、原料合金に水素を吸蔵させる工程である。原料合金としては、 $R_2Fe_{14}B$ で表されるR-F e-B系合金を用いることができる。一層優れた磁気特性を有する希土類合金粉末を得る観点から、R-F e-B系合金の組成は、R：25～35質量％、B：1～1.6質量％、F e：63.4～74質量％であることが好ましい。Rとしては、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Luから選ばれる1種または2種以上とすることができる。このうち、製造コスト及び磁気特性の観点から、RはNdを含むこと

が好ましい。

[0017] 希土類金属における質量基準のRの含有量 ρ （質量％）は、用いられる希土類金属の種類にもよるが、好ましくは25～35質量％、より好ましくは27～33質量％である。

[0018] 上述の原料合金は、通常の鑄造方法、例えばストリップキャスト法、ブックモールド法、又は遠心鑄造法によって調製することができる。原料合金には、均質化熱処理を施してもよい。また、原料合金は、不純物を含んでいてもよい。

[0019] 均質化熱処理は、原料合金を、真空又はアルゴンや窒素などの不活性ガス雰囲気中、温度1000～1200℃で5～48時間保持することによって行う。このような均質化熱処理を行うことによって、原料合金を融解させて、原料合金を均質化させることができる。

[0020] 均質化させた原料合金は、スタンプミル又はジョークラッシャーなどの粉砕手段を用いて粉砕した後、篩分けすることが好ましい。これによって、粒径が10mm以下の粉末状の原料合金を調製することができる。

[0021] 水素吸蔵工程では、上述の粉末状の原料合金を、水素分圧が100～300kPaである水素雰囲気中、温度 T_0 で時間 t_1 まで保持する。これによって、原料合金の結晶格子中に水素が吸蔵されて、水素濃度 η_0 （質量％）の水素吸蔵合金を得ることができる。水素濃度 η_0 は、例えば、0.3～0.5質量％の範囲とする。なお、この段階では、原料合金は分解していない。

[0022] 水素吸蔵工程における温度 T_0 は、100～200℃であることが好ましい。また、水素吸蔵工程の所要時間 t_1 は、0.5～2時間であることが好ましい。

[0023] 水素化分解工程（図1中のII）では、水素吸蔵合金を、水素雰囲気中、温度 T_0 よりも高い温度 T_1 で保持することによって、水素化分解させて、水素濃度 η_1 （質量％）の分解生成物を得る。

[0024] 水素化分解工程における雰囲気の水素分圧は10～100kPa、温度 T_1 は700～850℃であることが好ましい。この条件で水素吸蔵合金の水素

化分解を行うことによって、磁気的な異方性を有する希土類合金粉末を得ることができる。水素分圧が 10 kPa 未満であると、水素化分解が十分に進行しない傾向があり、 100 kPa を超えると異方性の希土類合金粉末が得難くなる傾向がある。

[0025] 温度 T_1 が 700°C 未満であると、原料合金の水素化分解が十分に進行しない傾向がある。一方、温度 T_1 が 850°C を超えると、所望の分解生成物（水素化物）が得られ難くなる傾向がある。

[0026] 水素化分解工程の所要時間（図 1 中の $t_2 - t_1$ ）は、 $0.5 \sim 60$ 時間であることが好ましい。この時間が 0.5 時間未満であると、原料合金の水素化分解が十分に進行しない傾向があり、 60 時間を超えると磁気的な異方性を有する希土類合金粉末が得られ難くなる傾向がある。

[0027] 水素化分解工程で得られる分解生成物は、 RH_x などの水素化物、 $\alpha\text{-Fe}$ 及び Fe_2B などの鉄化合物を含んでいる。この段階における分解生成物は、 100 nm オーダーの微細なマトリックスを形成している。

[0028] 上述の分解生成物の水素濃度 η_1 （質量％）の上限は、通常、含まれる希土類元素が全て水素化物（ RH_x ， $x = 2 \sim 3$ ）となる濃度である。水素濃度 η_1 （質量％）は、希土類元素の種類にもよるが、例えば $0.35 \sim 0.6$ 質量％の範囲となる。

[0029] 昇温工程（図 1 中の III）では、分解生成物の温度を温度 T_1 から温度 T_1 よりも高い温度 T_2 に昇温する。温度 T_2 は、温度 T_1 よりも高く、 $720 \sim 950^\circ\text{C}$ であることが好ましく、 $750 \sim 950^\circ\text{C}$ であることがより好ましい。なお、昇温速度に特に制限はない。昇温工程の所要時間（図 1 中の $t_3 - t_2$ ）は、例えば $1 \sim 10$ 分間である。

[0030] 第 1 の脱水素再結合工程（図 1 中の IV）では、温度 T_1 よりも高い温度 T_2 で、分解生成物から水素を所定の放出速度で放出させて、分解生成物の水素濃度を、 η_1 （質量％）から η_2 （質量％）まで低減させる。この工程によって、水素化分解工程で得られた分解生成物のマトリックス中に希土類合金の核が生成すると考えられる。

[0031] 水素濃度 η_1 (質量%) である分解生成物からの水素の放出速度は、水素を放出させる前の分解生成物全体の質量を基準として、0.75～30質量%/時であることが好ましい。これによって、希土類合金の核をより均一に生成させることができる。また、分解生成物の水素濃度 η が、0.1～0.35質量%の範囲、好ましくは0.2～0.3質量%の範囲となるまで水素を放出させる。これによって、希土類合金の核をより均一に生成させることができる。なお、分解生成物の水素濃度 η_2 (質量%) は、分解生成物の質量を計測することによって知ることができる。

[0032] 分解生成物からの水素の放出速度は、雰囲気中の水素分圧の降下速度を制御することによって調整することができる。つまり、水素分圧の降下速度を大きくすれば、分解生成物からの水素の放出速度を大きくすることができる。水素分圧の降下速度は、例えばアルゴンガスを導入したり、減圧したりすることによって、調整することができる。第1の脱水素再結合工程における水素分圧の降下速度は、10～40kPa/分とすることが好ましく、12～20kPa/分とすることがより好ましい。

[0033] 第1の脱水素再結合工程における分解生成物の温度 T_2 は、温度 T_1 よりも高く、720～950℃に保つことが好ましく、750～950℃に保つことがより好ましい。分解生成物の温度 T_2 を、温度 T_1 よりも高くすることによって、分解生成物から水素が抜けやすくなり、希土類合金の核をより均一に生成させることができる。温度 T_2 と温度 T_1 との温度差は、20℃以上であってもよく、100℃以上であってもよい。該温度差を100℃以上にするによって、粒子のサイズの均一性を維持しつつ偏析物の個数を一層低減することができる。

[0034] 温度 T_2 が750℃未満であると、分解生成物からの水素の放出速度を十分に大きくすることができず、希土類合金の核生成が不均一になる傾向がある。一方、温度 T_2 が950℃を超えると、分解生成物からの水素の放出速度が大きくなりすぎるために、分解生成物の水素濃度 η を制御することが難しくなる傾向がある。

- [0035] 第1の脱水素再結合工程の時間（図1中の $t_4 - t_3$ ）は、例えば0.01～0.5時間である。なお、この時間は、分解生成物からの水素の放出速度に依存する。
- [0036] 第2の脱水素再結合工程（図1中のV）では、第1の脱水素再結合工程よりも分解生成物からの水素の放出速度を小さくして、分解生成物の水素濃度をさらに低減し、雰囲気中の水素分圧を1Pa未満にまで下げて希土類合金粉末を得る。
- [0037] 第2の脱水素再結合工程の温度は、第1の脱水素再結合工程における温度 T_2 と同じにすることが好ましい。これによって、分解生成物からの水素の放出を円滑に進行させることができる。
- [0038] 水素濃度 η_2 （質量%）である分解生成物からの水素の放出速度、すなわち分解生成物の水素濃度 η の降下速度は、水素を放出させる前（第1の脱水素再結合工程の開始前）の分解生成物全体の質量を基準として、0.01～0.4質量%/時とすることが好ましい。これによって、分解生成物中に析出した希土類合金の核の成長が徐々に進行することとなり、希土類合金の粒内に偏析物が残留することを抑制することができる。水素濃度 η の降下速度が0.4質量%を超えると、分解生成物に含まれる α -Feや鉄リッチ相が再結合できずに希土類合金の粒内に取り残されやすくなる傾向がある。一方、水素濃度 η の降下速度が0.01質量%未満であると、工程に所要する時間が長くなり過ぎて再結合した希土類合金の異常粒成長が起こりやすくなる傾向がある。
- [0039] 偏析物としては、 α -Feや、鉄リッチな化合物、及び原料合金に含まれるNbなどの不純物に由来する化合物等が挙げられる。このような偏析物が希土類合金粉末の一次粒子の粒内に存在すると、逆磁区が発生して高い保磁力が得られ難くなる。
- [0040] なお、第2の脱水素再結合工程では、最終的に分解生成物から水素をほぼ完全に除去できればよく、放出速度を二段階以上に分けて行う等、分解生成物から水素を一定の放出速度で放出させなくてもよい。例えば、放出速度を

二段階に分けて行う場合、希土類合金の核生成の開始直後は温度が不安定になりやすいので、再結合反応を一旦止めるか、再結合反応をなるべく緩やかに進行させるという観点から、一段階目の放出速度は0～0.4質量%/時であることが好ましく、0～0.1質量%/時であることがより好ましい。また、希土類合金の核生成開始から一定の時間が経過すれば温度は安定しやすくなるので、再結合反応を一段階目よりも速く進行させることができるという観点から、二段階目の放出速度は0.1～4質量%/時であることが好ましく、0.1～0.4質量%/時であることがより好ましい。

[0041] なお、一段階目から二段階目への放出速度の切り替えは、温度が安定してから行うことが好ましく、第2の脱水素再結合工程開始後、15分以上であることが好ましく、60分以上であることがより好ましい。

[0042] 第2の脱水素再結合工程の時間（図1中の $t_5 - t_4$ ）は、例えば0.3～5時間とすることができる。この時間は、分解生成物からの水素の放出速度に依存する。なお、第2の脱水素再結合工程における水素分圧の降下速度は、0.01～0.2kPa/分とすることが好ましい。

[0043] 最後に、冷却工程により、第2の脱水素再結合工程で得られた希土類合金粉末を室温にまで冷却する（図1中のV1）。以上の工程によって、一次粒子の粒内の偏析物が十分に低減された異方性の希土類合金粉末を得ることができる。この希土類合金粉末は、通常原料合金と同じ組成を有する。

[0044] 本実施形態の希土類合金粉末の製造方法は、脱水素再結合処理がなされている分解生成物の断面を拡大して観察することにより、第1の脱水素再結合工程から第2の脱水素再結合工程に移行するタイミングを決定する工程をさらに有していてもよい。当該工程により、第1及び第2の脱水素再結合工程における水素の放出速度を決定してもよい。当該工程を実施することで、例えば、新たな組成の希土類合金粉末を製造する場合や製造条件を変更した場合であっても、微細化した $R_2Fe_{14}B$ 相を有する希土類合金粉末を安定的に作製できる。この工程では、第1の脱水素再結合工程における分解生成物の断面を、例えば、SEMで表面分析して、モルフォロジーを観察する。

[0045] 図2は、本実施形態に係る希土類合金粉末の製造方法における、第1の脱水素再結合工程終了時点での分解生成物の微細構造を拡大して示す模式断面図である。このような微細構造は、分解生成物の断面を走査型電子顕微鏡で観察することによって確認することができる。

[0046] 第1の脱水素再結合工程終了時点では、希土類合金粉末（分解生成物）は、主として希土類水素化物相10、 α -Fe及びFe₂Bなどの鉄化合物相20、及びR₂Fe₁₄B相30から構成されており、希土類水素化物相10がR₂Fe₁₄B相30により覆われている。このとき、R₂Fe₁₄B相の面積割合は、断面の面積全体を基準として、25～55%であるが、好ましくは28～43%であり、より好ましくは30～40%である。すなわち、脱水素再結合工程において、R₂Fe₁₄B相30の核生成開始から終了までの時間をなるべく短くしてR₂Fe₁₄B相30の粒成長が緩やかに進行する時間を増やし、かつR₂Fe₁₄B相の面積割合を上記の数値範囲とすることで、最終的にR₂Fe₁₄B相30が粗大粒となることを抑制できる。これにより、R₂Fe₁₄B相30の微細な粒子が形成されることになるため、優れた保磁力を有する希土類合金粉末を得ることが可能となる。

[0047] 分解生成物の断面における、断面の面積全体を基準としたR₂Fe₁₄B相30の面積割合は、以下の方法によって算出することができる。分解生成物を樹脂に埋め込み、サンドペーパーおよびバフによる研磨で鏡面サンプルを作製し、走査型電子顕微鏡（SEM、倍率：20,000）でそのサンプルの反射電子像を観察する。約4.5μm×6.0μmの領域を2視野ずつ観察して、希土類水素化物相10、 α -Fe及びFe₂Bなどの鉄化合物相20、及びR₂Fe₁₄B相30それぞれの面積を、コントラストの違いを基にして画像解析処理により算出し、断面の面積全体を基準としたR₂Fe₁₄B相の面積割合を求めることができる。

[0048] 本実施形態の希土類合金粉末の製造方法では、第1の脱水素再結合工程終了時点で、分解生成物の断面において、希土類水素化物相がR₂Fe₁₄B相により覆われており、R₂Fe₁₄B相の面積割合が、断面の面積全体を基準とし

て、25～55%となっている。そして、第1の脱水素再結合工程における水素分圧の降下速度を第2の脱水素再結合工程の水素分圧の降下速度よりも大きくすることにより、第1の脱水素再結合工程における分解生成物からの水素放出速度を第2の脱水素再結合工程よりも大きくしている。また、第1の脱水素再結合工程の温度 (T_2) を、水素化分解工程の温度 (T_1) よりも高くしているため、第1の脱水素再結合工程において分解生成物からの水素放出速度を大きくすることができる。これによって、希土類合金における核生成が従来よりも微細で均一となり、また、核成長時において偏析物が粒内に析出するのを抑制することができると考えられる。

[0049] 本実施形態の希土類合金粉末の製造方法によって得られる希土類合金粉末は、微細化した $R_2Fe_{14}B$ 相を有しているため、希土類磁石用の合金粉末として好適に用いることができる。すなわち、上記製造方法によって得られる希土類合金粉末を用いて磁石を作製すれば、磁気特性（特に保磁力）に優れた磁石を得ることができる。

[0050] この希土類合金粉末は、磁気的な異方性を有する磁石粉末であることが好ましい。これによって、磁気特性に優れた異方性ボンド磁石や焼結磁石の原料として好適に用いることができる。

[0051] <異方性ボンド磁石>

図3は、本実施形態に係る異方性ボンド磁石を示す斜視図である。図3に示す異方性ボンド磁石50は、樹脂と該樹脂によって結合された異方性磁石粉末とを含む。異方性磁石粉末としては、上述の希土類合金粉末を用いることができる。樹脂としては、エポキシ樹脂、フェノール樹脂等の熱硬化性樹脂や、スチレン系、オレフィン系、ウレタン系、ポリエステル系、ポリアミド系のエラストマー、アイオノマー、エチレンプロピレン共重合体（EPM）、エチレンーエチルアクリレート共重合体等の熱可塑性樹脂が挙げられる。なかでも、熱硬化性樹脂が好ましく、エポキシ樹脂又はフェノール樹脂がより好ましい。

[0052] 本実施形態の異方性ボンド磁石50は、異方性の磁石粉末が特定方向に配

向しているため、優れた磁気特性を有する。異方性ボンド磁石50における磁石粉末と樹脂との含有比率は、磁石粉末100質量部に対して、樹脂を例えば0.5～20質量部含むことが好ましい。磁石粉末100質量部に対して、樹脂の含有量が0.5質量部未満であると、保形性が損なわれる傾向があり、樹脂が20質量部と超えると、十分に優れた磁気特性が得られ難くなる傾向がある。

[0053] このような異方性ボンド磁石は通常の方法で製造することができる。製造方法の一例について以下に説明する。まず、上述の樹脂を含む樹脂バインダーと磁石粉末とを加圧混練機（加圧ニーダー）で混練して樹脂バインダーと磁石粉末とを含む異方性ボンド磁石用コンパウンド（組成物）を調製する。異方性ボンド磁石用コンパウンドには、必要に応じて、カップリング剤やその他の添加材を加えてもよい。

[0054] 上述の異方性ボンド磁石用コンパウンドを調製した後、このコンパウンドを圧縮して磁場中で成形する成形工程を行うことにより、異方性ボンド磁石を得ることができる。圧縮成形は、機械プレスや油圧プレス等の圧縮成形機を用いて行うことができる。このようにして、配向した異方性の磁石粉末と樹脂とを含む異方性ボンド磁石を得ることができる。この異方性ボンド磁石は、 $R_2Fe_{14}B$ 相30の粒子が微細な異方性の磁石粉末を含有するとともに、当該磁石粉末が特定の方向に配向しているため、優れた磁気特性を有する。

[0055] なお、異方性ボンド磁石の製造方法は、上述の圧縮成形による方法に限定されるものではなく、例えば射出成形によって成形してもよい。この場合は、異方性ボンド磁石用コンパウンドを、必要に応じてバインダー（熱可塑性樹脂）の溶融温度まで加熱し、流動状態とした後、このコンパウンドを所定の形状を有し磁場が印加された金型内に射出して磁場中成形を行う。その後、冷却し、金型から所定形状を有する成形品（異方性ボンド磁石）を取り出す。このようにして異方性ボンド磁石を製造することができる。

[0056] <焼結磁石>

図4は、本実施形態に係る焼結磁石60を模式的に示す斜視図である。図4に示す焼結磁石60は、異方性磁石粉末を含む焼結体からなる。異方性磁石粉末としては、上述の希土類合金粉末を用いることができる。本実施形態の焼結磁石60は、異方性の磁石粉末が特定方向に配向しているため、優れた磁気特性を有する。

[0057] このような焼結磁石60は通常の方法で製造することができる。製造方法の一例について以下に説明する。まず、上述の異方性の磁石粉末を圧縮して磁場中で成形することにより成形体を作製する。圧縮成形は、機械プレスや油圧プレス等の圧縮成形機を用いて行うことができる。この場合、印加する磁場強度は800kA/m以上であると好ましく、成形圧力は100～500MPa程度であると好ましい。また、成形体の作製に際し、異方性の磁石粉末に、バインダ（例えば、PVA）を適量加えてもよい。次に、調製した成形体を、1000～1200℃で0.5～5時間程度焼結し、急冷して焼結体を作製する。焼結雰囲気は、アルゴンガス等の不活性ガス雰囲気であると好ましい。なお、必要に応じ、さらに不活性ガス雰囲気中で、400～900℃、好ましくは450～700℃で1～5時間、焼結体を加熱する時効処理を行ってもよい。このようにして、焼結磁石を得ることができる。この焼結磁石は、 $R_2Fe_{14}B$ 相30の粒子が微細な異方性の磁石粉末を含有するとともに、当該磁石粉末が特定の方向に配向しているため、優れた磁気特性を有する。ただし、焼結磁石の製造方法は、上述の方法に限定されるものではない。

[0058] 以上、本発明の好適な実施形態について説明したが、本発明は上記実施形態に何ら限定されるものではない。例えば、異方性ボンド磁石は、上述の形状に限定されるものではなく、金型を変えることによって所望の形状（例えば、柱状、平板状又はC型形状）を有する異方性ボンド磁石とすることができる。

実施例

[0059] 本発明の内容を実施例及び比較例を用いて以下に詳細に説明するが、本発

明は以下の実施例に限定されるものではない。

[0060] (実施例 1)

ストリップキャスト法によって、以下の組成を有する $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 原料合金を調製した。

[0061] Nd : 28.00 質量%

Fe : 70.01 質量%

B : 1.08 質量%

Ga : 0.36 質量%

Nb : 0.30 質量%

[0062] この原料合金は、上述の元素の他に、微量の不可避不純物（原料合金全体の 0.2～0.3 質量%）を含んでいた。この原料合金を、真空中、1000～1200℃の温度範囲で 24 時間保持した（均質化熱処理工程）。均質化熱処理後の $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 原料合金を、スタンプミルを用いて粉碎し、篩分けを行って、粉末状（粒径 1～2 mm）の原料合金を得た。

[0063] この原料合金を、モリブテン製の容器に充填し、赤外線加熱方式を有する管状熱処理炉に装填し、以下の条件で水素化分解・脱水素再結合法による処理（HDDR 処理）を施した。なお、当該処理のタイムチャートは図 1 に示すとおりであった。

[0064] まず、管状熱処理炉内に水素ガスを導入し、水素ガス雰囲気下、水素分圧 100 kPa、温度（ T_0 ）100℃の条件で原料合金粉末を 2 時間保持する水素吸蔵工程（図 1 中の I）を行った。これによって、原料合金に水素を吸蔵させて、水素吸蔵合金を得た。

[0065] 続いて、炉内の水素分圧を下げるとともに炉内温度を 10℃/秒で昇温し、水素吸蔵合金を、水素分圧 40 kPa、温度 T_1 （= 800℃）の条件で 1.5 時間保持する水素化分解工程を行った（図 1 中の II）。これによって、水素吸蔵合金を水素化分解させて分解生成物を得た。

[0066] その後、炉内温度を 10℃/秒で温度 T_2 （= 850℃）まで昇温した（昇温工程、図 1 中の III）。炉内温度を T_2 まで昇温した後、真空ポンプを用

いて水素ガスを排気し、炉内の圧力（水素分圧）を 16 kPa / 分の速度で下げることによって、分解生成物に含まれる水素の放出を開始した（第1の脱水素再結合工程、図1中のI V）。

[0067] 第1の脱水素再結合工程では、分解生成物から、水素を放出させる前の分解生成物全体の質量を基準として、 $3.5 \text{ 質量\%/時}$ の水素放出速度 a で水素を放出させて、分解生成物中の水素濃度を、水素濃度 η_2 ($0.230 \text{ 質量\%}$) にまで低減した。

[0068] 分解生成物中の水素濃度が水素濃度 η_2 にまで下がったら、炉内からの水素ガスの排気速度を変更して、炉内圧力（水素分圧）の降下速度を 0.1 kPa / 分とした。これによって、分解生成物からの水素放出速度 b を、水素を放出させる前の分解生成物全体の質量を基準として $0.35 \text{ 質量\%/時}$ に調整した。なお、水素放出速度 a から水素放出速度 b に変更したときの水素分圧（排気速度切り替え圧力）は、 6 kPa であった。その後、炉内の圧力（＝水素分圧）が 1 Pa 未満になるまで、水素の放出を継続して行うことにより、分解生成物から水素をほぼ完全に除去した（第2の脱水素再結合工程、図1中のV）。なお、第1の脱水素再結合工程に所要した時間は約2分間であり、第2の脱水素再結合工程に所要した時間は40～50分間であった。

[0069] 炉内の圧力（水素分圧）が 1 Pa 未満となった時点で、水素の放出を停止した。その後、炉内を室温（約 20°C ）まで冷却し、HDDR処理された異方性の $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 粉末を得た。

[0070] [磁気特性の評価]

得られた $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 粉末を、不活性雰囲気中で乳鉢を用いて粉碎し、篩い分けを行って、 $53 \sim 212 \mu\text{m}$ の粒径を有する $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 粉末とした。この粉末とパラフィンとをケースに詰めて、パラフィンを融解させた状態で1テスラの磁場を印加して磁石粉末を配向させた。磁石粉末の配向方向と平行な方向に6テスラのパルス磁場を印加し、振動試料型磁力計（VSM）を用いて磁化－磁場曲線を測定して磁気特性を求めた。残留磁束密度（ B_r ）及び保磁力（ H_{c_j} ）の測定結果を表1に示す。

[0071] [微細構造の評価]

上記工程において、分解生成物中の水素濃度を、水素濃度 η_2 （水素分圧 6 kPa）にまで低減し（図 1 中の I V）、その後、アルゴンガスを流して急冷させることにより反応を止め、観察用サンプルを作製した。この観察用サンプルを用い、第 1 の脱水素再結合工程終了時点での $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 粉末の一次粒子の断面を SEM の反射電子像を用いて観察した結果を図 5 に示す。図 5 は、実施例 1 に係る希土類合金粉末の製造工程における、第 1 の脱水素再結合工程終了時点での分解生成物の断面 SEM 写真である。観察は 2 視野において行ったが、いずれの視野においても、図 5 に示すとおり Nd 水素化物相（図中の白色部）は $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相（図中の薄い灰色部）により覆われていた。また、断面の面積全体を基準としたときの、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相の面積割合は 33.7%（表 1 参照）であった。

[0072] 一方、実施例 1 との比較として、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相の粒成長が進んでしまっている場合の分解生成物の断面図を示す。図 6 は、第 1 の脱水素再結合工程において炉内の圧力（水素分圧）を 4 kPa / 分の速度で下げたこと以外は、実施例 1 の条件にて観察サンプルを作製したときの、第 1 の脱水素再結合工程終了時点での分解生成物の断面図である。図 6 に示すとおり、Nd 水素化物相が $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相により覆われているとは認められるものの、断面の面積全体を基準としたときの、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相の面積割合は 78.6% であった。この場合、第 2 の脱水素再結合工程以降 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相が粗大粒へと成長してしまうため、微細化した $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相を有する希土類合金粉末を得ることは難しい。

[0073] （実施例 2 ～ 5 及び比較例 1 ～ 2）

第 1 の脱水素再結合工程から第 2 の脱水素再結合工程に切り替える（水素放出速度 a から水素放出速度 b に変更する）際の排気速度切り替え圧力（水素分圧）を表 1 に示す値に変更したこと以外は、実施例 1 と同様にして、異方性の $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 粉末を得た。そして、実施例 1 と同様にして、磁気特性及び微細構造の評価を行った。いずれの実施例及び比較例 1 においても、N

d 水素化物相は $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相により覆われていたが、比較例 2 においては Nd 水素化物相の一部は $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相により覆われていなかった。実施例 2～5 及び比較例 1～2 の HDDR 処理条件及び評価結果を表 1 に纏めて示す。

[0074] [表1]

	排気速度 切替圧力(kPa)	$\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相の 面積割合(%) (2視野の平均値)	Br (kG)	Hcj (kOe)
実施例1	6	33.7	13.62	16.71
実施例2	3	54.2	13.34	15.55
実施例3	5	39.8	13.62	16.17
実施例4	8	29.3	13.35	16.25
実施例5	10	27.5	13.45	15.55
比較例1	2	59.5	13.06	13.10
比較例2	12	23.8	13.27	12.93

[0075] (実施例 6～8)

第 2 の脱水素再結合工程において、水素放出速度 b を以下のように変更したこと以外は、実施例 1 と同様にして、異方性の $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 粉末を得た。そして、実施例 1 と同様にして、磁気特性及び微細構造の評価を行った。いずれの実施例においても、 Nd 水素化物相は $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相により覆われていた。実施例 6～8 の HDDR 処理条件及び評価結果を表 2 に纏めて示す。

実施例 6：水素放出速度 b を 0.1 質量%/時に調整して 25 分間水素を放出した後（水素放出速度 b_1 ）、水素放出速度 b を 3.5 質量%/時に調整した（水素放出速度 b_2 ）。その後、炉内の圧力が 1 Pa 未満になるまで、水素の放出を継続して行うことにより、分解生成物から水素をほぼ完全に除去した。なお、第 2 の脱水素再結合工程に所要した時間は 35～40 分間であった。

実施例 7：水素放出速度 b を 0 質量%/時として 60 分間水素を放出せずに保持した後（水素放出速度 b_1 ）、水素放出速度 b を 0.35 質量%/時に調整した（水素放出速度 b_2 ）。その後、炉内の圧力が 1 Pa 未満になるまで、水素の放出を継続して行うことにより、分解生成物から水素をほぼ完全に

除去した。なお、第2の脱水素再結合工程に所要した時間は100～110分間であった。

実施例8：水素放出速度 b を0.4質量%/時に調整して25分間水素を放出した後（水素放出速度 b_1 ）、水素放出速度 b を0.18質量%/時に調整した（水素放出速度 b_2 ）。その後、炉内の圧力が1Pa未満になるまで、水素の放出を継続して行うことにより、分解生成物から水素をほぼ完全に除去した。なお、第2の脱水素再結合工程に所要した時間は65～75分間であった。

[0076] [表2]

	排気速度 切替圧力(kPa)	Nd ₂ Fe ₁₄ B相の 面積割合(%) (2視野の平均値)	水素放出速度 b_1 (質量%/時)	水素放出速度 b_2 (質量%/時)	Br (kG)	Hcj (kOe)
実施例1	6	33.7	0.35		13.62	16.71
実施例6	6	33.2	0.1	3.5	13.10	16.73
実施例7	6	32.4	0	0.35	13.44	16.29
実施例8	6	34.3	0.4	0.18	12.89	16.30

[0077] 表1及び2の結果から、実施例1～8のNd₂Fe₁₄B粉末中に、R₂Fe₁₄B相の微細な粒子が形成されており、優れた磁気特性（特に保磁力）を有することが確認された。

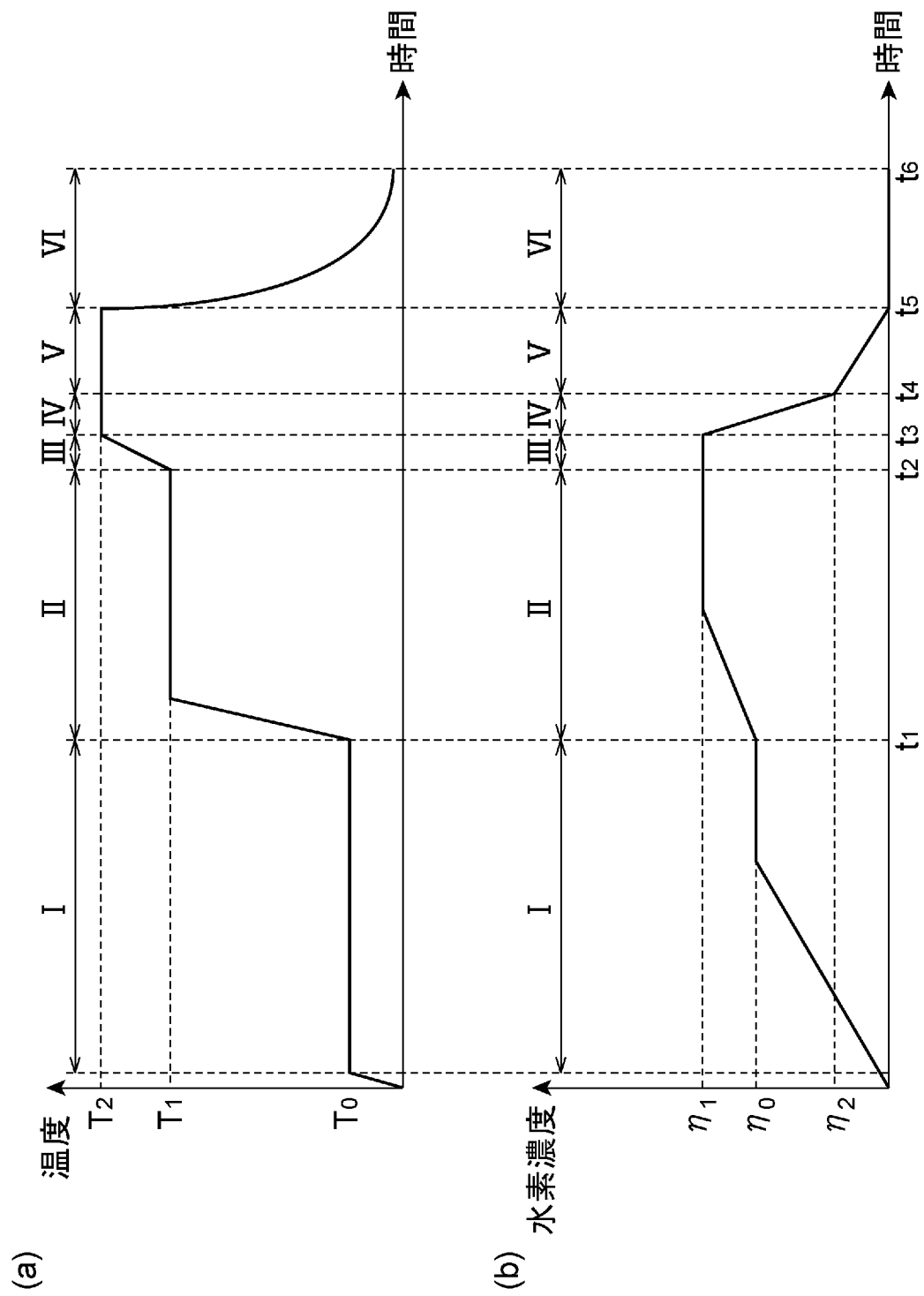
符号の説明

[0078] 10…希土類水素化物相、20…鉄化合物相、30…R₂Fe₁₄B相、50…異方性ボンド磁石、60…焼結磁石。

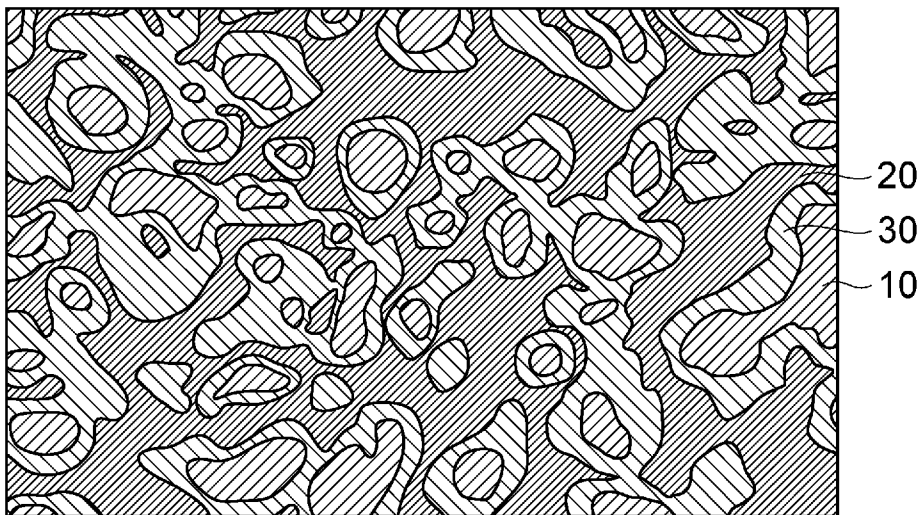
請求の範囲

- [請求項1] 水素化分解・脱水素再結合法による希土類合金粉末の製造方法であって、
- (a) 希土類元素を含有する原料合金を水素化分解させて分解生成物を得る工程と、
 - (b) 前記分解生成物から水素を放出させて前記分解生成物の水素濃度を低減する工程と、
 - (c) 工程 (b) における水素の放出速度よりも低い放出速度で前記分解生成物から水素を更に放出させて希土類合金粉末を得る工程と、を備え、
- 前記分解生成物の断面において、希土類水素化物相が $R_2Fe_{14}B$ 相 (Rは希土類元素を示す。) により覆われており、 $R_2Fe_{14}B$ 相の面積割合が、前記断面の面積全体を基準として、25～55%となる時点で、工程 (b) から工程 (c) に移行する、希土類合金粉末の製造方法。
- [請求項2] 前記断面のモルフォロジーを観察することにより、工程 (b) から工程 (c) に移行するタイミングを決定する工程を更に備える、請求項1に記載の方法。
- [請求項3] 請求項1又は2に記載の方法によって製造された異方性を有する希土類合金粉末と、樹脂とを含む異方性ボンド磁石。
- [請求項4] 請求項1又は2に記載の方法によって製造された異方性を有する希土類合金粉末を磁場中成形した成形体を焼結して得られる焼結磁石。

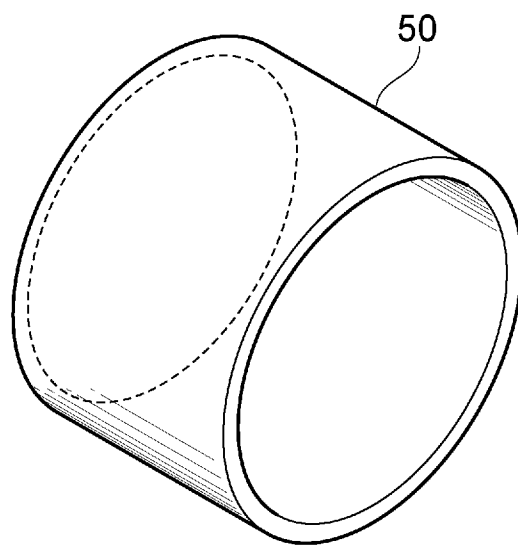
[図1]



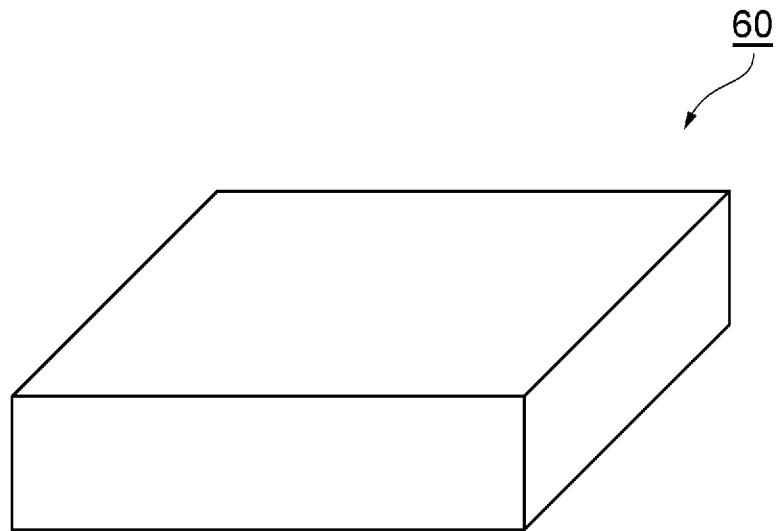
[図2]



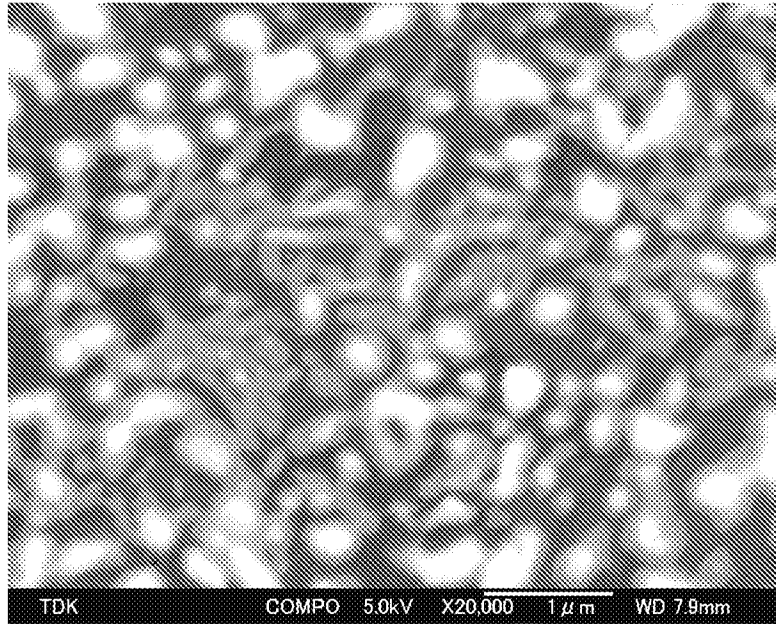
[図3]



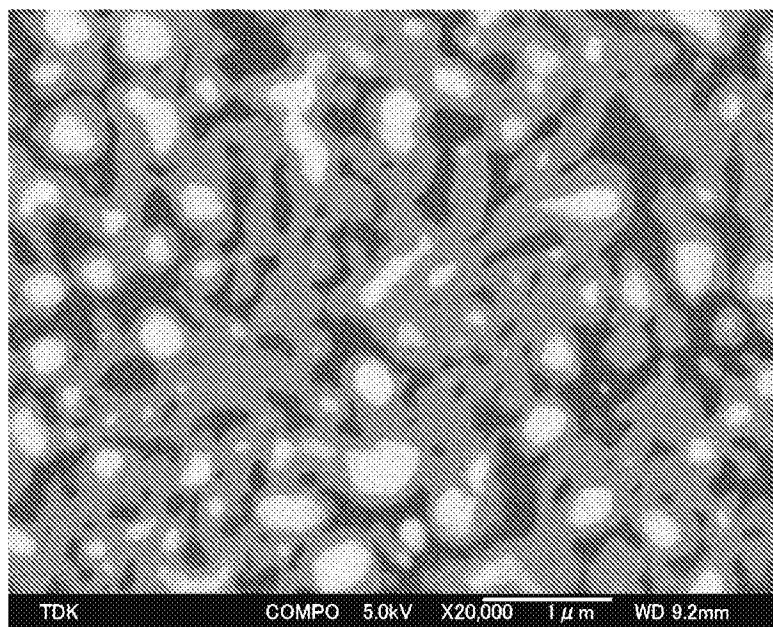
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/051265

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01F41/02(2006.01)i, B22F1/00(2006.01)i, B22F3/00(2006.01)i, C22C33/02(2006.01)i, C22C38/00(2006.01)i, H01F1/053(2006.01)i, H01F1/06(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, B22F1/00, B22F3/00, C22C33/02, C22C38/00, H01F1/053, H01F1/06, 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	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

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

JSTPlus (JDreamII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2010-255098 A (TDK Corp.), 11 November 2010 (11.11.2010), paragraphs [0006] to [0047], [0055] to [0082]; table 1; fig. 1 & CN 101850425 A	1, 3
X	JP 2001-115220 A (Sumitomo Special Metals Co., Ltd.), 24 April 2001 (24.04.2001), paragraphs [0001], [0014] to [0018], [0038] to [0046], [0053] to [0063]; tables 2, 3; fig. 1, 2 (Family: none)	1, 3, 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
11 April, 2012 (11.04.12)

Date of mailing of the international search report
24 April, 2012 (24.04.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/051265

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	JP 2001-155912 A (Sumitomo Special Metals Co., Ltd.), 08 June 2001 (08.06.2001), paragraphs [0015] to [0024], [0039] to [0113], [0122] to [0144], [0153] to [0164]; table 8; fig. 1, 3 (Family: none)	1, 3, 4 2
Y	Takeshi NISHIUCHI et al., "Relationship between microstructural changes and positron lifetime in Nd-Fe-B based magnet during manufacturing process", Hitachi Metals Technical Review, 2009, vol.25, pages 30 to 37, fig. 5, 7(b2) (c)	2

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H01F41/02 (2006.01)i, B22F1/00 (2006.01)i, B22F3/00 (2006.01)i, C22C33/02 (2006.01)i, C22C38/00 (2006.01)i, H01F1/053 (2006.01)i, H01F1/06 (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 (I P C))

Int.Cl. H01F41/02, B22F1/00, B22F3/00, C22C33/02, C22C38/00, H01F1/053, H01F1/06, 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	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 2 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 2 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 2 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)

JSTPlus (JDreamII)

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 2010-255098 A (T D K株式会社) 2010.11.11, 段落【0006】 - 【0047】, 【0055】 - 【0082】, 表 1, 図 1 & CN 101850425 A	1, 3
X	JP 2001-115220 A (住友特殊金属株式会社) 2001.04.24, 段落【0001】, 【0014】 - 【0018】, 【0038】 - 【0046】, 【0053】 - 【0063】, 表 2, 3, 図 1, 2 (ファミリーなし)	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

1 1 . 0 4 . 2 0 1 2

国際調査報告の発送日

2 4 . 0 4 . 2 0 1 2

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 1 0 0 - 8 9 1 5
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)

長谷川 直也

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 5 5 9

5 0

4 5 4 9

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	JP 2001-155912 A (住友特殊金属株式会社)	1, 3, 4
Y	2001.06.08, 段落【0015】 - 【0024】 , 【0039】 - 【0113】 , 【0122】 - 【0144】 , 【0153】 - 【0164】 , 表 8, 図 1, 3 (ファミリーなし)	2
Y	西内武司 他, Nd-Fe-B 系磁石作製プロセスにおける微細組織変化と 陽電子寿命, 日立金属技報, 2009, Vol. 25, p. 30-37, 図 5, 7(b2)(c)	2