

(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12月23日(23.12.2021)



(10) 国際公開番号

WO 2021/256509 A1

(51) 国際特許分類:  
*H01F 1/059* (2006.01) *C22C 38/00* (2006.01)  
*B22F 1/00* (2006.01) *H01F 41/02* (2006.01)  
*B22F 9/20* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2021/022875

(22) 国際出願日: 2021年6月16日(16.06.2021)

(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 2020-106311 2020年6月19日(19.06.2020) JP

(71) 出願人: 日亜化学工業株式会社 (NICHIA CORPORATION) [JP/JP]; 〒7748601 徳島県阿南市上中町岡491番地100 Tokushima (JP).

(72) 発明者: 前原 永 (MAEHARA, Hisashi); 〒7748601 徳島県阿南市上中町岡491番地100 日亜化学工業株式会社内 Tokushima (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人 安富国際特許事務所 (YASUTOMI & ASSOCIATES); 〒5320003 大阪府大阪市淀川区宮原3丁目5番36号 Osaka (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, 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, 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))

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING ANISOTROPIC MAGNETIC POWDER, AND ANISOTROPIC MAGNETIC POWDER

(54) 発明の名称: 異方性磁性粉末の製造方法および異方性磁性粉末

(57) Abstract: The present invention provides: an anisotropic magnetic powder which has a low oxygen concentration, a small average particle diameter, a narrow particle size distribution and a high residual magnetic flux density; and a method for producing this anisotropic magnetic powder. The present invention relates to a method for producing an anisotropic magnetic powder, said method comprising: a pretreatment step wherein a partial oxide is obtained by subjecting an oxide containing Sm and Fe to a heat treatment in a reducing gas atmosphere; a step wherein alloy particles are obtained by subjecting the partial oxide to a heat treatment in the presence of a reducing agent; a step wherein a nitride is obtained by nitriding the alloy particles; and a step wherein a magnetic powder is obtained by subjecting the nitride to an alkali treatment.

(57) 要約: 本発明は、酸素濃度が低く、平均粒子径が小さく、粒度分布が狭く、残留磁束密度の高い異方性磁性粉末と、その製造方法を提供する。本発明は、SmとFeを含む酸化物を、還元性ガス雰囲気下で熱処理することにより、部分酸化物を得る前処理工程、前記部分酸化物を、還元剤の存在下で熱処理することにより、合金粒子を得る工程、前記合金粒子を窒化して窒化物を得る工程、および、前記窒化物をアルカリ処理し、磁性粉末を得る工程を含む、異方性磁性粉末の製造方法に関する。



WO 2021/256509 A1

## 明 細 書

**発明の名称**：異方性磁性粉末の製造方法および異方性磁性粉末  
**技術分野**

[0001] 本発明は、異方性磁性粉末の製造方法および異方性磁性粉末に関する。

### 背景技術

[0002] 特許文献1には、SmFeN系焼結磁石が開示されており、焼結に使用する磁性粉末として平均粒子径が小さく、酸素含有量が少ない磁性粉末が開示されている。しかしながら、平均粒子径が20 $\mu$ m以上である磁性粉末をジェットミルで粉碎して磁性粉末を作製しており、粒度分布の幅が広い粉末しか作製することができない。

[0003] ところで、特許文献2には、還元拡散工程で使用したカルシウムを除去するために、窒化処理して得られた磁性粉末を酸で洗浄する方法が開示されている。しかしながら、カルシウム除去を目的としており、少なくとも実施例には、酸素含有量が高い磁性粉末しか開示されていない。

### 先行技術文献

#### 特許文献

[0004] 特許文献1：特開2017-55072号公報

特許文献2：特開2015-70102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、酸素濃度が低く、平均粒子径が小さく、粒度分布が狭く、残留磁束密度の高い異方性磁性粉末と、そ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

[0006] 本発明の一態様にかかる異方性磁性粉末の製造方法は、SmとFeを含む酸化物を、還元性ガス雰囲気下で熱処理することにより、部分酸化物を得る前処理工程、

前記部分酸化物を、還元剤の存在下で熱処理することにより、合金粒子を得る工程、

前記合金粒子を窒化して窒化物を得る工程、および、

前記窒化物をアルカリ処理し、磁性粉末を得る工程を含む。

[0007] また、本発明の一態様にかかる異方性磁性粉末は

レーザー回折式粒径分布測定装置を用いて乾式条件で測定した平均粒径が1.5 μm以上7 μm以下であり、下記式

$$\text{スパン} = (D90 - D10) / D50$$

(ここで、D10、D50、D90は、体積基準による粒度分布の積算値がそれぞれ10%、50%、90%に相当する粒径である。)

で定義されるスパンが1.6以下であり、Sm、Fe、N、Oを含み、Oの量が0.05質量%以上0.65質量%以下である。

### 発明の効果

[0008] 本発明の異方性磁性粉末の製造方法では、窒化物をアルカリ処理するため、酸素濃度が低く、平均粒子径が小さく、粒度分布が狭く、残留磁束密度が高い異方性磁性粉末を製造することができる。

### 発明を実施するための形態

[0009] 以下、本発明の実施形態を詳述する。ただし、以下に示す実施形態は、本発明の技術思想を具体化するための一例であり、本発明を以下のものに限定するものではない。なお、本明細書において「工程」との語は、独立した工程だけではなく、他の工程と明確に区別できない場合であってもその工程の所期の目的が達成されれば、本用語に含まれる。また「～」を用いて示された数値範囲は、「～」の前後に記載される数値をそれぞれ最小値及び最大値として含む範囲を示す。

[0010] 本実施形態の異方性磁性粉末の第1の製造方法は、SmとFeを含む酸化物を、還元性ガス雰囲気下で熱処理することにより、部分酸化物を得る前処理工程、前記部分酸化物を、還元剤の存在下で熱処理することにより、合金粒子を得る工程、前記合金粒子を窒化して窒化物を得る工程、および、前記窒

化物をアルカリ処理し、磁性粉末を得る工程を含むことを特徴とする。窒化物に含まれる未反応の金属カルシウムや副生成した窒化カルシウムを水により処理をすると、発熱と、発熱に伴う酸化が生じるが、水に代わりアルカリ溶液にて処理することにより発熱と、発熱に伴う酸化を抑制することができるので、酸素濃度が低く、平均粒子径が小さく、粒度分布が狭く、残留磁束密度の高い磁性粉末を得ることができる。

[0011] [前処理工程]

前処理工程で使用するSmとFeを含む酸化物は、例えば、Sm酸化物とFe酸化物を混合することにより得られてもよいがSmとFeを含む溶液と沈殿剤を混合し、SmとFeとを含む沈殿物を得る工程（沈殿工程）、および、前記沈殿物を焼成することにより、SmとFeを含む酸化物を得る工程（酸化工程）によって、製造することができる。

[0012] [沈殿工程]

沈殿工程では、強酸性の溶液にSm原料、Fe原料を溶解して、SmとFeを含む溶液を調製する。Sm<sub>2</sub>Fe<sub>17</sub>N<sub>3</sub>を主相として得る場合、SmおよびFeのモル比（Sm：Fe）は1.5：17～3.0：17が好ましく、2.0：17～2.5：17がより好ましい。La、W、Co、Ti、Sc、Y、Pr、Nd、Pm、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Luなどの原料を上述した溶液に加えても良い。残留磁束密度の点で、Laを含むことが好ましい。保持力と角型比の点で、Wを含むことが好ましい。温度特性の点で、Co、Tiを含むことが好ましい。

[0013] Sm原料、Fe原料としては、強酸性の溶液に溶解できるものであれば限定されない。例えば、入手のしやすさの点で、Sm原料としては酸化サマリウムが、Fe原料としてはFeSO<sub>4</sub>が挙げられる。SmとFeを含む溶液の濃度は、Sm原料とFe原料が実質的に酸性溶液に溶解する範囲で適宜調整することができる。酸性溶液としては溶解性の点で硫酸などが挙げられる。

[0014] SmとFeを含む溶液と沈殿剤を反応させることにより、SmとFeを含む不溶性の沈殿物を得る。ここで、SmとFeを含む溶液は、沈殿剤との反応

時にSmとFeを含む溶液となっていればよく、たとえばSmとFeを含む原料を別々の溶液として調製し、各々の溶液を滴下して沈殿剤と反応させても良い。別々の溶液として調製する場合においても各原料が実質的に酸性溶液に溶解する範囲で適宜調整する。沈殿剤としては、アルカリ性の溶液でSmとFeを含む溶液と反応して沈殿物が得られるものであれば限定されず、アンモニア水、苛性ソーダなどが挙げられ、苛性ソーダが好ましい。

[0015] 沈殿反応は、沈殿物の粒子の性状を容易に調整できる点から、SmとFeを含む溶液と、沈殿剤とを、それぞれ水などの溶媒に滴下する方法が好ましい。SmとFeを含む溶液と沈殿剤との供給速度、反応温度、反応液濃度、反応時のpH等を適宜制御することにより、構成元素の分布が均質で、粒度分布が狭く、粉末形状の整った沈殿物が得られる。このような沈殿物を使用することによって、最終製品である磁性粉末の磁気特性が向上する。反応温度は、0～50℃とすることができ、35～45℃が好ましい。反応液濃度は、金属イオンの総濃度として0.65mol/L～0.85mol/Lが好ましく、0.7mol/L～0.85mol/Lがより好ましい。反応pHは、5～9が好ましく、6.5～8がより好ましい。

[0016] SmとFeを含む溶液は、磁気特性の点で、さらにLa、W、CoおよびTiからなる群から選ばれる1種以上の金属を含むことが好ましい。例えば、残留磁束密度の点で、Laを含むことが好ましく、保持力と角型比の点で、Wを含むことが好ましく、温度特性の点で、Co、Tiを含むことが好ましい。La原料としては、強酸性の溶液に溶解できるものであれば限定されず、例えば、入手のしやすさの点で、La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、LaCl<sub>3</sub>などが挙げられる。Sm原料とFe原料とともに、La原料、W原料、Co原料、Ti原料が実質的に酸性溶液に溶解する範囲で適宜調整し、酸性溶液としては溶解性の点で硫酸が挙げられる。W原料としては、タングステン酸アンモニウムが挙げられ、Co原料としては、硫酸コバルトが挙げられ、チタン原料としては硫酸チタニアが挙げられる。SmとFeを含む溶液とは別に、水に実質的に溶解する範囲で調整することが好ましい。

- [0017] S m と F e を含む溶液が、さらに L a、W、C o および T i からなる群から選ばれる 1 種以上の金属を含む場合、S m、F e と、L a、W、C o および T i からなる群から選ばれる 1 種以上を含む不溶性の沈殿物を得る。ここで、該溶液は、沈殿剤との反応時に L a、W、C o および T i からなる群から選ばれる 1 種以上となっていればよく、例えば各原料を別々の溶液として調製し、各々の溶液を滴下して沈殿剤と反応させても良いし、S m と F e を含む溶液と一緒に調整しても良い。
- [0018] 沈殿工程で得られた異方性磁性粉末粒子により、最終的に得られる磁性粉末の粉末粒径、粉末形状、粒度分布がおおよそ決定される。得られた粒子の粒径をレーザー回折式湿式粒度分布計により測定した場合、全粉末が 0.05 ~ 20  $\mu\text{m}$ 、好ましくは 0.1 ~ 10  $\mu\text{m}$  の範囲にほぼ入るような大きさと分布であることが好ましい。また、異方性磁性粉末粒子の平均粒径は、粒度分布における小粒径側からの体積累積 50% に相当する粒径として測定され、0.1 ~ 10  $\mu\text{m}$  の範囲内にあることが好ましい。
- [0019] 沈殿物を分離した後は、続く酸化工程の熱処理において残存する溶媒に沈殿物が再溶解して、溶媒が蒸発する際に沈殿物が凝集したり、粒度分布、粉末径等が変化したりすることを抑制するために、分離物を脱溶媒しておくことが好ましい。脱溶媒する方法として具体的には、例えば溶媒として水を使用する場合、70 ~ 200  $^{\circ}\text{C}$  のオープン中で 5 ~ 12 時間乾燥する方法が挙げられる。
- [0020] 沈殿工程の後に、得られる沈殿物を分離洗浄する工程を含んでもよい。洗浄する工程は上澄み溶液の導電率が 5  $\text{mS}/\text{m}^2$  以下となるまで適宜行う。沈殿物を分離する工程としては、例えば、得られた沈殿物に溶媒（好ましくは水）を加えて混合した後、濾過法、デカンテーション法等を用いることができる。
- [0021] [酸化工程]
- 酸化工程とは、沈殿工程で形成された沈殿物を焼成することにより、S m と F e とを含む酸化物を得る工程である。例えば、熱処理により沈殿物を酸化

物に変換することができる。沈殿物を熱処理する場合、酸素の存在下で行われる必要があり、例えば、大気雰囲気下で行うことができる。また、酸素存在下で行われる必要があるため、沈殿物中の非金属部分に酸素原子を含むことが好ましい。

[0022] 酸化工程における熱処理温度（以下、酸化温度）は特に限定されないが、700～1300℃が好ましく、900～1200℃がより好ましい。700℃未満では酸化が不十分となり、1300℃を超えると、目的とする磁性粉末の形状、平均粒径および粒度分布が得られない傾向にある。熱処理時間も特に限定されないが、1～3時間が好ましい。

[0023] 得られる酸化物は、酸化物粒子内においてR、鉄の微視的な混合が充分になされ、沈殿物の形状、粒度分布等が反映された酸化物粒子である。

[0024] [前処理工程]

前処理工程とは、上述のSmとFeを含む酸化物を、還元性ガス雰囲気下で熱処理することにより、酸化物の一部が還元された部分酸化物を得る工程である。

[0025] ここで、部分酸化物とは、酸化物の一部が還元された酸化物をいう。酸化物の酸素濃度は特に限定されないが、10質量%以下が好ましく、8質量%以下がより好ましい。10質量%を超えると、還元工程においてCaとの還元発熱が大きくなり、焼成温度が高くなることで異常な粒子成長をした粒子ができてしまう傾向がある。ここで、部分酸化物の酸素濃度は、非分散赤外吸収法（ND-IR）により測定することができる。

[0026] 還元性ガスは水素（H<sub>2</sub>）、一酸化炭素（CO）、メタン（CH<sub>4</sub>）等の炭化水素ガスなどから適宜選択されるが、コストの点で水素ガスが好ましく、ガスの流量は、酸化物が飛散しない範囲で適宜調整される。前処理工程における熱処理温度（以下、前処理温度）は、300℃以上950℃以下が好ましく、下限は400℃以上がより好ましく、750℃以上がさらに好ましい。上限は900℃未満がより好ましい。前処理温度が300℃以上であるとSmとFeを含む酸化物の還元が効率的に進行する。また950℃以下である

と酸化物粒子が粒子成長、偏析することが抑制され、所望の粒径を維持することができる。また、還元性ガスとして水素を用いる場合、使用する酸化物層の厚みを20mm以下に調整し、更に反応炉内の露点を-10℃以下に調整することが好ましい。

[0027] [還元工程]

還元工程とは、前記部分酸化物を、還元剤の存在下で熱処理することにより、合金粒子を得る工程であり、例えば部分酸化物をカルシウム融体またはカルシウムの蒸気と接触することで還元が行われる。熱処理温度は、磁気特性の点より、920℃以上1200℃以下が好ましく、950℃以上1150℃以下がより好ましく、980℃以上1100℃以下がさらに好ましい。

[0028] 還元工程における上述の熱処理とは別の熱処理として、1000℃以上1090℃以下の第1温度で熱処理した後、第1温度よりも低い980℃以上1070℃以下の第2温度で熱処理してもよい。第1温度は、1010℃以上1080℃以下が好ましく、第2温度は、990℃以上1060℃以下が好ましい。第1温度と第2温度の温度差は、第2温度が第1温度よりも15℃以上60℃以下の範囲で低いことが好ましく、15℃以上30℃以下の範囲で低いことがより好ましい。第1温度による熱処理と第2温度による熱処理は連続で行っても良く、これらの熱処理間において、第2温度の温度範囲より低い熱処理温度での熱処理を含むこともできるが、生産性の点で、連続で行うことが好ましい。各熱処理時間は、還元反応をより均一に行う観点から、120分未満が好ましく、90分未満がより好ましく、熱処理時間の下限は10分以上が好ましく、30分以上がより好ましい。

[0029] 金属カルシウムは、粒状又は粉末状の形で使用されるが、その粒子径は10mm以下が好ましい。これにより還元反応時における凝集をより効果的に抑制することができる。また、金属カルシウムは、反応当量（希土類酸化物を還元するのに必要な化学量論量であり、Feが酸化物の形である場合には、これを還元するために必要な分を含む）の1.1～3.0倍量の割合で添加することが好ましく、1.5～2.5倍量がより好ましい。

[0030] 還元工程では、還元剤である金属カルシウムとともに、必要に応じて崩壊促進剤を使用することができる。この崩壊促進剤は、後述するアルカリ処理工程に際して、生成物の崩壊、粒状化を促進させるために適宜使用されるものであり、例えば、塩化カルシウム等のアルカリ土類金属塩、酸化カルシウム等のアルカリ土類酸化物などが挙げられる。これらの崩壊促進剤は、希土類源として使用される希土類酸化物当り1～30質量%、好ましくは5～30質量%の割合で使用される。

[0031] [窒化工程]

窒化工程とは、還元工程で得られた合金粒子を窒化処理することにより、異方性の磁性粒子を得る工程である。上述の沈殿工程で得られる粒子状の沈殿物を用いていることから、還元工程にて多孔質塊状の合金粒子が得られる。これにより、粉碎処理を行うことなく直ちに窒素雰囲気中で熱処理して窒化することができるため、窒化を均一に行うことができる。

[0032] 合金粒子の窒化処理における熱処理温度（以下、窒化温度）は、好ましくは300～600℃、特に好ましくは400～550℃の温度とし、この温度範囲で雰囲気を窒素雰囲気に置換することにより行われる。熱処理時間は、合金粒子の窒化が十分に均一に行われる程度に設定されればよい。

[0033] [アルカリ処理工程]

窒化工程後に得られる生成物には、磁性粒子に加えて、副生する $\text{Ca}_3\text{N}_2$ 、 $\text{CaO}$ 、未反応の金属カルシウム等が含まれ、これらが複合した焼結塊状態となっている場合がある。そこで、この生成物をアルカリ溶液中に投入して、 $\text{Ca}_3\text{N}_2$ 、 $\text{CaO}$ 及び金属カルシウムを水酸化カルシウム（ $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ）懸濁物として磁性粒子から分離することができる。さらに残留する水酸化カルシウムは、磁性粒子を酢酸等で洗浄して十分に除去してもよい。

[0034] アルカリ処理工程に用いるアルカリ溶液としては、たとえば水酸化カルシウム水溶液、水酸化ナトリウム水溶液、アンモニア水溶液などが挙げられる。なかでも、排水処理、高pHの点で、水酸化カルシウム水溶液、水酸化ナトリウム水溶液が好ましい。

[0035] アルカリ処理工程に用いるアルカリ溶液のpHは特に限定されないが、9以上が好ましく、10以上がより好ましい。pHが9未満では、水酸化カルシウムになる際の反応速度が速く、発熱が大きくなるため、酸素濃度が高くなる傾向がある。

[0036] アルカリ処理工程において、アルカリで処理した後に得られた磁性粉末は、必要によりデカンテーションなどの方法で水分を低減することもできる。

[0037] [酸処理工程]

アルカリ処理工程の後に、さらに酸で処理する酸処理工程を含むことが好ましい。前述した窒化物のアルカリ処理により、カルシウム成分を除去しているが、酸素をある程度含有するSmリッチ層が残存して保護層として機能するため酸化されて酸素濃度が増大することを抑制している。該酸処理工程では、このSmリッチ層を除去して、磁性粉末全体中の酸素濃度を低減する。また、本発明の実施形態にある製造方法では、粉砕等を行わないため、異方性磁性粉末の平均粒子径が小さく、粒度分布が狭く、微粉を含まないため、酸素濃度の増加を抑制することが可能となる。

[0038] 酸処理工程に用いる酸としては、特に限定されず、たとえば塩化水素、硝酸、硫酸、酢酸などが挙げられる。なかでも、不純物が残留しない点で、塩化水素、硝酸が好ましい。

[0039] 酸処理工程に用いる酸の使用量は、磁性粉末100質量部に対して3.5質量部以上13.5質量部以下が好ましく、4質量部以上10質量部以下がより好ましい。3.5質量部未満では、磁性粉末表面の酸化物が残り、酸素濃度が高くなり、13.5質量部を超えると、大気に触れた際に酸化が起こりやすく、また、磁性粉末を溶解するため、コストも高くなる傾向がある。

[0040] 酸処理工程において、酸で処理した後に得られた磁性粉末は、必要によりデカンテーションなどの方法で水分を低減することもできる。

[0041] [脱水工程]

酸処理工程の後に、脱水処理する工程を含むことが好ましい。脱水処理によって、真空乾燥前の固形分中の水分を低減させ、真空乾燥前の固形分が水分

をより多く含むことにより生じる乾燥時の酸化の進行を抑制することができる。ここで、脱水処理は、圧力や遠心力を加えることで、これら処理前後における固形分中に含まれる水分値を低減する処理のことを意味し、単なるデカンテーションや濾過や乾燥は含まない。脱水処理方法は特に限定されないが、圧搾、遠心分離などが挙げられる。

[0042] 脱水処理後の磁性粉末に含まれる水分量は特に限定されないが、酸化の進行を抑制する点から13質量%以下が好ましく、10質量%以下がより好ましい。

[0043] 酸処理して得られた磁性粉末、または、酸処理後、脱水処理して得られた磁性粉末は、真空乾燥することが好ましい。乾燥温度は特に限定されないが、70℃以上が好ましく、80℃がより好ましい。乾燥時間も特に限定されないが、1時間以上が好ましく、3時間以上がより好ましい。

[0044] 本発明の一態様にかかる異方性磁性粉末の製造方法は、SmとFeを含む酸化物を、還元性ガス雰囲気下で熱処理することにより、部分酸化物を得る前処理工程、  
前記部分酸化物を、還元剤の存在下、920℃以上1200℃以下で熱処理することにより、合金粒子を得る工程、  
前記合金粒子を窒化して窒化物を得る工程、  
前記窒化物を洗浄して磁性粉末を得る工程、および、  
前記磁性粉末を酸処理する工程を含み、  
前記酸処理する工程において、磁性粉末100質量部に対する酸の量が、3.5質量部以上13.5質量部以下である。

[0045] 本実施形態の異方性磁性粉末の第2の製造方法は、SmとFeを含む酸化物を、還元性ガス雰囲気下で熱処理することにより、部分酸化物を得る前処理工程、前記部分酸化物を、還元剤の存在下、920℃以上1200℃以下で熱処理することにより、合金粒子を得る工程、前記合金粒子を窒化して窒化物を得る工程、前記窒化物を洗浄して磁性粉末を得る工程、および、前記磁性粉末を酸処理する工程を含み、前記酸処理する工程において、磁性粉末1

00質量部に対する酸の量が、3.5質量部以上13.5質量部以下であることを特徴とする。酸処理工程において、酸の量を磁性粉末100質量部に対し3.5質量部以上13.5質量部以下とすることにより、酸処理後大気に暴露した際に再酸化が起こりにくい程度に酸化されたSmリッチ層が磁性粉末表面を覆うようにすることができる。よって、酸素濃度が低く、平均粒子径が小さく、粒度分布の狭い異方性磁性粉末が得られる。なおここでいう前処理工程、合金粒子を得る工程、窒化物を得る工程および酸処理する工程は、上述の通りである。第1の製造方法と同様に脱水処理および分散処理を行っても良い。

[0046] 本実施形態における異方性磁性粉末は、レーザー回折式粒径分布測定装置を用いて乾式条件で測定した平均粒径が1.5 $\mu$ m以上7 $\mu$ m以下であり、下記式

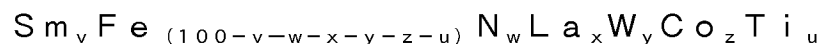
$$\text{スパン} = (D90 - D10) / D50$$

(ここで、D10、D50、D90は、体積基準による粒度分布の積算値がそれぞれ10%、50%、90%に相当する粒径である。)

で定義されるスパンが1.6以下であり、Sm、Fe、N、Oを含み、Oの量が0.05質量%以上0.65質量%以下であることを特徴とする。

[0047] 本実施形態における異方性磁性粉末は、例えば前述の製造方法により作製することができるが、磁性粉末を粉砕等による機械的な破碎を行っていないために酸素濃度が低く、平均粒子径が小さく、粒度分布が狭く（スパンが小さく）、残留磁束密度が高い異方性磁性粉末となる。

[0048] 本実施形態における異方性磁性粉末は、典型的には下記一般式



(式中、 $3 \leq v \leq 30$ 、 $5 \leq w \leq 15$ 、 $0 \leq x \leq 0.3$ 、 $0 \leq y \leq 2.5$ 、 $0 \leq z \leq 2.5$ 、 $0 \leq u \leq 2.5$ である。)

で表される。

[0049] 一般式において、vを3以上30以下と規定するのは、3未満では鉄成分の

未反応部分 ( $\alpha$ -Fe相) が分離して窒化物の保磁力が低下し、実用的な磁石ではなくなり、30を超えると、Smの元素が析出し、磁性粉末が大気中で不安定になり、残留磁束密度が低下するからである。また、wを5以上15以下と規定するのは、5未満では、ほとんど保磁力が発現できず、15を超えるとSmの元素や、鉄自体の窒化物が生成するからである。

[0050] 異方性磁性粉末の平均粒子径は1.5  $\mu\text{m}$ 以上7  $\mu\text{m}$ 以下であるが、3  $\mu\text{m}$ 以上7  $\mu\text{m}$ 以下が好ましく、4  $\mu\text{m}$ 以上6.5  $\mu\text{m}$ 以下がより好ましい。1.5  $\mu\text{m}$ 未満では、表面積が多いので酸化が起こりやすく、7  $\mu\text{m}$ を超えると、磁性粉末が多磁区構造になることで、磁気特性が低下する傾向がある。ここで、平均粒子径は、レーザー回折式粒径分布測定装置を用いて乾式条件で測定した粒子径を意味する。

[0051] 異方性磁性粉末の下記式

$$\text{スパン} = (D90 - D10) / D50$$

(ここで、D10、D50、D90は、体積基準による粒度分布の積算値がそれぞれ10%、50%、90%に相当する粒径である。)

で計算されるスパンは1.6以下であるが、1.3以下が好ましい。1.6を超えると、大きな粒子が存在しており、磁気特性が低下する傾向がある。

[0052] 異方性磁性粉末は酸素を含み、その含有量は0.05質量%以上0.65質量%以下であればよく、0.3質量%以下が好ましい。0.05質量%未満では、大気に曝露すると、酸化が起こりやすく、0.65質量%を超えると磁気特性が低下する傾向がある。ここで、酸素含有量は、非分散赤外吸収法 (ND-IR) により測定することができる。

[0053] 磁性粉末の円形度の平均値が、0.50以上が好ましく、0.70以上がより好ましく、0.75以上が特に好ましい。円形度が0.50を下回った場合、流動性が悪くなることで、磁場成形時に粒子間で応力がかかるため磁気特性が低下する。円形度の測定には、走査電子顕微鏡を用い、住友金属テクノロジーの粒子解析Ver. 3を画像解析ソフトとして用いる。3000倍で撮影したSEM画像を画像処理で二値化し、粒子1個に対して、円形度を

求める。本発明で規定する円形度とは、1000個～10000個程度の粒子を計測して求めた円形度の平均値を意味する。一般的に粒径が小さい粒子が多くなるほど円形度は高くなるため、1 $\mu$ m以上の粒子について円形度の測定を行った。円形度の測定においては定義式：円形度 =  $(4\pi S / L^2)$  を用いる。但し、Sは、粒子の二次元投影面積、Lは二次元投影周囲長である。

[0054] 本実施形態の異方性磁性粉末は酸素濃度が低いため、例えば、焼結磁石やボンド磁石として使用することができる。

[0055] ボンド磁石は、本実施形態の異方性磁性粉末と、樹脂より作製される。この異方性磁性粉末を含むことで、高い磁気特性を有する複合材料を構成することができる。

[0056] 複合材料に含まれる樹脂は、熱硬化性樹脂であっても、熱可塑性樹脂であってもよいが、熱可塑性樹脂であることが好ましい。熱可塑性樹脂として、具体的には、ポリフェニレンサルファイド樹脂 (PPS)、ポリエーテルエーテルケトン (PEEK)、液晶ポリマー (LCP)、ポリアミド (PA)、ポリプロピレン (PP)、ポリエチレン (PE) 等を挙げることができる。

[0057] 複合材料を得る際の異方性磁性粉末と樹脂の重量比 (樹脂/磁性粉末) は、0.10～0.15であることが好ましく、0.11～0.14であることがより好ましい。

[0058] 複合材料は、例えば、混練機を用いて、280～330℃で異方性磁性粉末と樹脂とを混合することにより得ることができる。

[0059] 複合材料を用いることにより、ボンド磁石を製造することができる。具体的には例えば、複合材料を熱処理しながら配向磁場で磁化容易磁区を揃える (配向工程)、次いで着磁磁場でパルス着磁する (着磁工程) により、ボンド磁石を得ることができる。

[0060] 配向工程における熱処理温度は、例えば90～200℃であることが好ましく、100～150℃であることがより好ましい。配向工程における配向磁場の大きさは、例えば720 kA/mとすることができる。また、着磁工程

における着磁磁場の大きさは、例えば1500～2500 kA/mとすることができ。

[0061] 焼結磁石は、本実施形態の異方性磁性粉末を成形し焼結することにより作製される。

本実施形態の異方性磁性粉末は、酸素濃度が低く、平均粒子径が小さく、粒度分布が狭く、残留磁束密度の高いことから焼結磁石に適している。

[0062] 焼結磁石は、例えば特開2017-055072に示されるように、磁性粉末を酸素濃度が0.5体積ppm以下の雰囲気中、300℃より高く600℃未満の温度、および1000MPa以上1500MPa以下の圧力下で焼結することにより作製される。

[0063] 焼結磁石は、例えば国際公開2015/199096に示されるように、磁性粉末を6kOe以上の磁場中で予備圧縮した後、600℃以下の温度、1～5GPaの成形面圧で温間圧密成形することにより作製される。

[0064] 焼結磁石は、例えば特開2016-082175に示されるように、磁性粉末と金属バインダを含む混合物を、1～5GPaの成形面圧で冷間圧密成形した後、350～600℃の温度で、1～120分加熱することにより作製される。

## 実施例

[0065] 以下、実施例について説明する。なお、特に断りのない限り、「%」は質量基準である。

[0066] [評価]

酸素含有量、窒素含有量、粒度分布は、以下の方法で評価した。

[0067] <酸素含有量>

酸素含有量は、非分散型赤外線吸収法（株式会社堀場製作所製のEMGA-820）により測定した。

[0068] <窒素含有量>

窒素含有量は、熱伝導度法（株式会社堀場製作所製のEMGA-820）により測定した。

## [0069] &lt;粒度分布&gt;

粒度分布は、レーザー回折式粒度分布測定装置（日本レーザー株式会社製のHELLOS&RODOS）により測定した。

## [0070] &lt;水分量&gt;

水分量は、真空乾燥前後の重量の差により測定した。

## [0071] 製造例1（中粒径のSmFe酸化物の作製）

純水2.0kgに $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$  5.0kgを混合溶解した。さらに $\text{Sm}_2\text{O}_3$  0.49kg、 $\text{La}_2\text{O}_3$  0.035kgと、70%硫酸0.74kgとを加えてよく攪拌し、完全に溶解させた。次に、得られた溶液に純水を加え、最終的にFe濃度が0.726mol/l、Sm濃度が0.112mol/lとなるように調整し、SmFeLa硫酸溶液とした。

## [0072] [沈殿工程]

温度が40℃に保たれた純水20kg中に、調製したSmFeLa硫酸溶液全量を反応開始から70分間で攪拌しながら滴下し、同時に15%アンモニア液を滴下させ、pHを7~8に調整した。これにより、SmFeLa水酸化物を含むスラリーを得た。得られたスラリーをデカンテーションにより純水で洗浄した後、水酸化物を固液分離した。分離した水酸化物を100℃のオーブン中で10時間乾燥した。

## [0073] [酸化工程]

沈殿工程で得られた水酸化物を大気中1000℃で1時間、焼成処理した。冷却後、原料粉末として赤色のSmFeLa酸化物を得た。

## [0074] 製造例2（大粒径のSmFe酸化物の作製）

製造例1において、 $\text{La}_2\text{O}_3$  0.035kgを加えたこと、酸化工程での大気中温度900℃に変更した以外は製造例1と同様に操作し、中粒径のSmFe酸化物を得た。

## [0075] 製造例3（小粒径のSmFe酸化物の作製）

製造例1において、15%アンモニア液と同時に18%のタングステン酸アンモニウム0.14kgを滴下させたこと、酸化工程での焼成温度900℃

に変更した以外は製造例1と同様に操作し、小粒径のSmFe酸化物を得た。

[0076] 実施例1（中粒子径の磁性粉末）

[前処理工程]

製造例1で得られたSmFeLa酸化物100gを、嵩厚10mmとなるように鋼製容器に入れた。容器を炉内に入れ、100Paまで減圧した後、水素ガスを導入しながら、前処理温度の850℃まで昇温し、そのまま15時間保持した。非分散赤外吸収法（ND-IR）（株式会社堀場製作所製のEMGA-820）により酸素濃度を測定したところ、5質量%であった。これにより、Smと結合している酸素は還元されず、Feと結合している酸素のうち、95%が還元される黒色の部分酸化物を得たことがわかった。

[0077] [還元工程]

前処理工程で得られた部分酸化物60gと平均粒径約6mmの金属カルシウム19.2gとを混合して炉内に入れた。炉内を真空排気した後、アルゴンガス（Arガス）を導入した。1045℃の第1温度まで上昇させて、45分間保持し、その後、1000℃の第2温度に冷却して30分間保持することにより、SmFeLa合金粒子を得た。

[0078] [窒化工程]

引き続き、炉内温度を100℃まで冷却した後、真空排気を行い、窒素ガスを導入しながら、温度を450℃まで上昇させて、そのまま23時間保持して、磁性粒子を含む塊状生成物を得た。

[0079] [アルカリ処理工程]

窒化工程で得られた塊状の生成物を10重量%水酸化カルシウム水溶液（pH12.3）3kgに投入し、30分間攪拌した。静置した後、デカンテーションにより上澄みを排水した。純水への投入、攪拌及びデカンテーションを10回繰り返した。次いで99.9%酢酸2.5gを投入して15分間攪拌した。静置した後、デカンテーションにより上澄みを排水した。純水への投入、攪拌及びデカンテーションを2回繰り返した。固液分離した後、80

℃で真空乾燥を3時間行い、磁性粉末を得た。

[0080] 実施例2（中粒子径の磁性粉末）

実施例1の水洗工程において、10重量%水酸化カルシウム水溶液を10重量%水酸化ナトリウム水溶液（pH13.0）に変更したこと以外は、実施例1と同様に操作し、磁性粉末を作製した。

[0081] 実施例3（中粒子径の磁性粉末）

窒化工程までは、実施例1と同様に操作し、窒化物である塊状の生成物を得た。

[0082] [アルカリ処理工程]

得られた塊状の生成物を10重量%水酸化カルシウム溶液（pH12.3）3kgに投入し、30分間攪拌した。静置後、デカンテーションにより上澄みを排水した。純水への投入、攪拌及びデカンテーションを10回繰り返した。次いで99.9%酢酸2.5gを投入して15分間攪拌した。静置後、デカンテーションにより上澄みを排水した。純水への投入、攪拌及びデカンテーションを2回繰り返した。

[0083] [酸処理工程]

前記工程で得られた磁性粉末100質量部に対して、塩化水素として10質量部となるように6%塩酸水溶液を添加して、1分間、攪拌した。静置後、デカンテーションにより上澄みを排水した。純水への投入、攪拌及びデカンテーションを2回繰り返した。固液分離した後80℃で真空乾燥を3時間行い、磁性粉末を得た。

[0084] 実施例4（中粒子径の磁性粉末）

実施例3の水洗工程において、水酸化カルシウム水溶液を10重量%水酸化ナトリウム水溶液（pH13.0）に変更したこと以外は、実施例1と同様に操作し、磁性粉末を作製した。

[0085] 比較例1（中粒子径の磁性粉末）

実施例1の水洗工程において、水酸化カルシウム溶液を純水に変更したこと以外は、実施例1と同様に操作し、磁性粉末を作製した。

[0086] 各実施例および比較例で得られた磁性粉末を用いて、上述した方法により酸素含有量、窒素含有量および粒度分布を測定した。評価結果を表1および2に示す。

[0087] [表1]

実施例番号	アルカリ接触	酸処理	含有量 (質量%)					組成式				
			Sm	Fe	La	O	N	Sm	Fe	La	O	N
実施例1	あり	なし	23.2	75.3	0.54	0.76	3.65	8.5	74.3	0.21	2.6	14.4
実施例2	あり	なし	23.2	74.7	0.54	0.78	3.71	8.5	73.9	0.21	2.7	14.7
実施例3	あり	あり	23.8	74.7	0.28	0.36	3.25	9.0	76.3	0.12	1.3	13.3
実施例4	あり	あり	23.4	74.6	0.29	0.37	3.39	8.8	75.9	0.12	1.3	13.8
比較例1	なし	なし	22.6	75.1	0.44	0.87	3.76	8.3	73.8	0.17	3.0	14.7

[0088] [表2]

実施例番号	平均粒径 (μm)	粒度分布				円形度	σ (emu/g)
		D10	D50	D90	スパン (D90-D10)/D50		
実施例1	3.27	2.31	4.18	6.88	1.09	0.79	121.2
実施例2	3.32	2.22	3.96	6.75	1.14	0.77	121.5
実施例3	3.06	2.12	3.95	6.24	1.04	0.78	141.1
実施例4	3.04	2.22	3.84	6.22	1.04	0.76	140.8
比較例1	3.30	2.31	4.00	6.72	1.10	0.77	119.5

[0089] 表1および2の結果から、窒化物をアルカリ溶液と接触させた実施例1および2においては、純水と接触させた比較例1と比べて酸素濃度が低減し、残留磁束密度が高くなることを確認した。また、実施例3および4において、窒化物をアルカリ溶液と接触させ得られた磁性粉末に対して、更に酸処理することにより、実施例1および2と比べてさらに酸素濃度が低減し、残留磁束密度が高くなることを確認した。またスパンも1.04程度しかなく、粒度分布の狭い異方性磁性粉末であった。また比較例1と実施例1の酸素濃度の差 ( $0.87 - 0.76 = 0.11$ ) よりも実施例1と実施例3の酸素濃度の差 ( $0.76 - 0.36 = 0.4$ ) が大きいことから、酸素濃度を低減するにあたり、アルカリ処理よりも酸処理のほうが酸素濃度を低減する効果が大きいことが確認できた。

[0090] 実施例5 (中粒子径の磁性粉末)

[前処理工程]

製造例1で得られたSmFe酸化物100gを、嵩厚10mmとなるように鋼製容器に入れた。容器を炉内に入れ、100Paまで減圧した後、水素ガスを導入しながら、前処理温度の850℃まで昇温し、そのまま15時間保持した。非分散赤外吸収法（ND-IR）（株式会社堀場製作所製のEMGA-820）により酸素濃度を測定したところ、5質量%であった。これにより、Smと結合している酸素は還元されず、Feと結合している酸素のうち、95%が還元される黒色の部分酸化物を得たことがわかった。

[0091] [還元工程]

前処理工程で得られた部分酸化物60gと平均粒径約6mmの金属カルシウム19.2gとを混合して炉内に入れた。炉内を真空排気した後、アルゴンガス（Arガス）を導入した。1045℃の第1温度まで上昇させて、45分間保持し、その後、1000℃の第2温度に冷却して30分間保持することにより、Fe-Sm合金粒子を得た。

[0092] [窒化工程]

引き続き、炉内温度を100℃まで冷却した後、真空排気を行い、窒素ガスを導入しながら、温度を450℃まで上昇させて、そのまま23時間保持して、磁性粒子を含む塊状生成物を得た。

[0093] [水洗工程]

窒化工程で得られた塊状の生成物を純水3kgに投入し、30分間攪拌した。静置した後、デカンテーションにより上澄みを排水した。純水への投入、攪拌及びデカンテーションを10回繰り返した。次いで99.9%酢酸2.5gを投入して15分間攪拌した。静置した後、デカンテーションにより上澄みを排水した。純水への投入、攪拌及びデカンテーションを2回繰り返した。

[0094] [酸処理工程]

前記窒化工程で得られた粉末100質量部に対して、塩化水素として4.3質量部となるように、6%塩酸水溶液を添加して、1分間、攪拌した。静置した後、デカンテーションにより上澄みを排水した。純水への投入、攪拌及

びデカンテーションを2回繰り返した。固液分離した後80℃で真空乾燥を3時間行い、磁性粉末を得た。

[0095] 実施例6～8および比較例2～5（中粒子径の磁性粉末）

表3に記載した酸使用量に変更した以外は、実施例5と同様に操作し、磁性粉末を作製した。

[0096] 各実施例および比較例で得られた磁性粉末を用いて、上述した方法により酸素含有量、窒素含有量および粒度分布を測定した。評価結果を表3に示す。

[0097] [表3]

実施例 番号	酸使用量 (部)	O含有量 (質量%)	N含有量 (質量%)	粒度分布			スパン (D90-D10)/D50	
				平均粒径 ( $\mu\text{m}$ )	D10	D50		D90
比較例2	0	0.98	3.41	4.37	2.26	6.77	4.17	1.08
比較例3	2.3	0.75	3.20	3.56	1.60	3.26	5.72	1.26
比較例4	3.3	0.75	3.20	3.49	1.77	3.28	5.46	1.13
実施例5	4.3	0.61	3.30	3.44	1.75	3.22	5.40	1.13
実施例6	5.3	0.40	3.36	3.49	1.76	3.25	5.51	1.15
実施例7	10.3	0.35	3.16	3.63	1.80	3.33	5.74	1.18
実施例8	13.3	0.33	3.17	3.65	1.75	3.36	5.77	1.20
比較例5	15.3	0.73	3.30	3.63	1.72	3.24	5.70	1.23

[0098] 表3の結果から、中粒子径の磁性粉末の場合、3.5質量部以上13.5質量部以下の酸で洗浄すると、酸素含有量が0.61質量%以下と非常に少ない磁性粉末が得られた。スパンも1.2程度しかなく、粒度分布の狭い異方性磁性粉末であった。

[0099] 実施例9～10（大粒子径の磁性粉末）

製造例2で作製したSmFe酸化物を使用したことおよび表4に記載した酸使用量に変更したこと以外は、実施例5と同様に操作し、大粒子径の磁性粉末を作製した。各実施例で得られた磁性粉末を用いて、上述した方法により酸素含有量、窒素含有量、粒度分布を測定した。評価結果を表4に示す。

[0100]

[表4]

実施例 番号	酸使用量 (部)	O含有量 (質量%)	N含有量 (質量%)	粒度分布			スパン (D90-D10)/D50	
				平均粒径 ( $\mu\text{m}$ )	D10	D50		D90
実施例9	5	0.20	3.10	5.16	2.60	4.57	7.86	1.15
実施例10	7	0.19	3.10	5.34	2.60	4.60	8.20	1.22

[0101] 表4の結果から、大粒子径の磁性粉末の場合、5質量部または7質量部の酸で洗浄すると、酸素含有量が0.20質量%以下と非常に少ない磁性粉末が得られた。スパンも1.2程度しかなく、粒度分布の狭い異方性磁性粉末であった。

[0102] 実施例11~13、比較例6（小粒子径の磁性粉末）

製造例3で作製したSmFe酸化物を使用したことおよび表5に記載した酸使用量に変更したこと以外は、実施例5と同様に操作し、小粒子径の磁性粉末を作製した。各実施例および比較例で得られた磁性粉末を用いて、上述した方法により酸素含有量、窒素含有量、粒度分布を測定した。評価結果を表5に示す。

[0103] [表5]

実施例 番号	酸使用量 (部)	O含有量 (質量%)	N含有量 (質量%)	粒度分布			スパン (D90-D10)/D50	
				平均粒径 ( $\mu\text{m}$ )	D10	D50		D90
実施例11	4.3	0.54	3.30	2.47	0.90	2.18	4.17	1.50
実施例12	10.3	0.45	3.27	2.50	0.91	2.22	4.19	1.48
実施例13	13.3	0.41	3.25	2.61	1.04	2.37	4.37	1.41
比較例6	15.3	0.74	3.27	2.72	1.06	2.45	4.63	1.46

[0104] 表5の結果から、小粒子径の磁性粉末の場合も、3.5質量部以上13.5質量部以下の酸で洗浄すると、酸素含有量が0.54質量%以下と非常に少ない磁性粉末が得られた。スパンも1.5程度しかなく、粒度分布の狭い異方性磁性粉末であった。

[0105] 実施例14~15

実施例9および11において、酸処理工程で得た固液分離後の固形分を、圧搾することにより脱水処理を行った後に、80℃で3時間、真空乾燥を行っ

たこと以外は、それぞれ実施例9および11と同様に操作し、磁性粉末を作製した。各実施例で得られた磁性粉末を用いて、上述した方法により、脱水処理後の固形分の水分量、得られた磁性粉末の酸素含有量、窒素含有量、粒度分布を測定した。評価結果を、実施例9および11で作製した磁性粉末の評価結果とともに、表6に示す。

[0106] [表6]

実施例 番号	水分値 (質量%)	O含有量 (質量%)	N含有量 (質量%)	粒度分布			スパン (D90-D10)/D50	
				平均粒径 ( $\mu\text{m}$ )	D10	D50		D90
実施例9	13.4	0.20	3.10	5.16	2.60	4.57	7.86	1.15
実施例14	7.9	0.15	3.27	5.11	2.58	4.51	7.77	1.15
実施例11	14.2	0.54	3.30	2.47	0.90	2.18	4.17	1.50
実施例15	9.1	0.43	3.41	2.53	1.00	2.17	4.19	1.47

[0107] 表6の結果から、実施例14において、脱水処理を行うことにより、水分量を大幅に低減でき、実施例9と比較して、得られた磁性粉末中の酸素含有量をさらに低減できた。また、実施例15においても、水分量を大幅に低減でき、実施例11と比較して、得られた磁性粉末中の酸素含有量をさらに低減できた。

### 産業上の利用可能性

[0108] 本発明の製造方法によって得られた異方性磁性粉末は、酸素濃度が低く、平均粒子径が小さく、粒度分布の狭く、残留磁束密度の高い異方性磁性粉末であるので、特に焼結磁石に好適に適用することができる。

## 請求の範囲

- [請求項1] S mとF eを含む酸化物を、還元性ガス雰囲気下で熱処理することにより、部分酸化物を得る前処理工程、  
前記部分酸化物を、還元剤の存在下で熱処理することにより、合金粒子を得る工程、  
前記合金粒子を窒化して窒化物を得る工程、および、  
前記窒化物をアルカリ処理し、磁性粉末を得る工程を含む、異方性磁性粉末の製造方法。
- [請求項2] 前記アルカリ処理後に、磁性粉末を酸処理する工程を含む、請求項1に記載の異方性磁性粉末の製造方法。
- [請求項3] 前記酸処理に用いる酸が、塩化水素または硝酸である請求項2に記載の異方性磁性粉末の製造方法。
- [請求項4] 前記酸処理する工程後に、脱水処理する工程を含む請求項2または3に記載の異方性磁性粉末の製造方法。
- [請求項5] レーザー回折式粒径分布測定装置を用いて乾式条件で測定した平均粒径が $1.5\mu\text{m}$ 以上 $7\mu\text{m}$ 以下であり、下記式  
スパン =  $(D90 - D10) / D50$   
(ここで、D10、D50、D90は、体積基準による粒度分布の積算値がそれぞれ10%、50%、90%に相当する粒径である。)で定義されるスパンが1.6以下であり、S m、F e、N、Oを含み、Oの量が0.05質量%以上0.65質量%以下である異方性磁性粉末。

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2021/022875

<p><b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>                  Int.Cl. H01F1/059(2006.01)i, B22F1/00(2006.01)i, B22F9/20(2006.01)i, C22C38/00(2006.01)i, H01F41/02(2006.01)i                  FI: H01F1/059160, B22F1/00Y, B22F9/20A, C22C38/00303D, H01F41/02G                  According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC</p>																	
<p><b>B. FIELDS SEARCHED</b></p> <p>Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)                  Int.Cl. H01F1/059, B22F1/00, B22F9/20, C22C38/00, H01F41/02</p> <p>Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched</p> <table style="width:100%; border:none;"> <tr> <td style="padding-left: 20px;">Published examined utility model applications of Japan</td> <td style="text-align: right;">1922-1996</td> </tr> <tr> <td style="padding-left: 20px;">Published unexamined utility model applications of Japan</td> <td style="text-align: right;">1971-2021</td> </tr> <tr> <td style="padding-left: 20px;">Registered utility model specifications of Japan</td> <td style="text-align: right;">1996-2021</td> </tr> <tr> <td style="padding-left: 20px;">Published registered utility model applications of Japan</td> <td style="text-align: right;">1994-2021</td> </tr> </table> <p>Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)</p>			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							
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																
<p><b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b></p> <table border="1" style="width:100%; border-collapse: collapse;"> <thead> <tr> <th style="width:10%;">Category*</th> <th style="width:70%;">Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages</th> <th style="width:20%;">Relevant to claim No.</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>Y A</td> <td>JP 2015-70102 A (NICHIA CHEM IND LTD.) 13 April 2015 (2015-04-13), claim 9, paragraphs [0012]-[0051], [0060]-[0076], fig. 3(a), 3(b)</td> <td>5 1-4</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>JP 2001-44013 A (HITACHI METALS LTD.) 16 February 2001 (2001-02-16), paragraphs [0004], [0008]-[0010]</td> <td>5</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>JP 2004-31761 A (NICHIA CHEM IND LTD.) 29 January 2004 (2004-01-29), paragraphs [0009]-[0013], [0031]-[0040], [0057]-[0090]</td> <td>5</td> </tr> <tr> <td>P, X P, A</td> <td>JP 2020-102606 A (NICHIA CHEM IND LTD.) 02 July 2020 (2020-07-02), claim 6, paragraphs [0005]-[0048], [0061]-[0084]</td> <td>5 1-4</td> </tr> </tbody> </table>			Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	Y A	JP 2015-70102 A (NICHIA CHEM IND LTD.) 13 April 2015 (2015-04-13), claim 9, paragraphs [0012]-[0051], [0060]-[0076], fig. 3(a), 3(b)	5 1-4	Y	JP 2001-44013 A (HITACHI METALS LTD.) 16 February 2001 (2001-02-16), paragraphs [0004], [0008]-[0010]	5	Y	JP 2004-31761 A (NICHIA CHEM IND LTD.) 29 January 2004 (2004-01-29), paragraphs [0009]-[0013], [0031]-[0040], [0057]-[0090]	5	P, X P, A	JP 2020-102606 A (NICHIA CHEM IND LTD.) 02 July 2020 (2020-07-02), claim 6, paragraphs [0005]-[0048], [0061]-[0084]	5 1-4
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.															
Y A	JP 2015-70102 A (NICHIA CHEM IND LTD.) 13 April 2015 (2015-04-13), claim 9, paragraphs [0012]-[0051], [0060]-[0076], fig. 3(a), 3(b)	5 1-4															
Y	JP 2001-44013 A (HITACHI METALS LTD.) 16 February 2001 (2001-02-16), paragraphs [0004], [0008]-[0010]	5															
Y	JP 2004-31761 A (NICHIA CHEM IND LTD.) 29 January 2004 (2004-01-29), paragraphs [0009]-[0013], [0031]-[0040], [0057]-[0090]	5															
P, X P, A	JP 2020-102606 A (NICHIA CHEM IND LTD.) 02 July 2020 (2020-07-02), claim 6, paragraphs [0005]-[0048], [0061]-[0084]	5 1-4															
<p><input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C.      <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.</p>																	
<p>* Special categories of cited documents:</p> <table style="width:100%; border:none;"> <tr> <td style="width:50%; vertical-align: top;"> <p>“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>“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)</p> <p>“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> </td> <td style="width:50%; vertical-align: top;"> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“&amp;” document member of the same patent family</p> </td> </tr> </table>			<p>“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>“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)</p> <p>“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>	<p>“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</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“&amp;” document member of the same patent family</p>													
<p>“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>“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)</p> <p>“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>	<p>“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</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“&amp;” document member of the same patent family</p>																
<p>Date of the actual completion of the international search 03 September 2021</p>		<p>Date of mailing of the international search report 14 September 2021</p>															
<p>Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan</p>		<p>Authorized officer</p> <p>Telephone No.</p>															

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
Information on patent family members

International application No.  
PCT/JP2021/022875

JP 2015-70102 A	13 April 2015	(Family: none)
JP 2001-44013 A	16 February 2001	(Family: none)
JP 2004-31761 A	29 January 2004	(Family: none)
JP 2020-102606 A	02 July 2020	(Family: none)

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） H01F 1/059(2006.01)i; B22F 1/00(2006.01)i; B22F 9/20(2006.01)i; C22C 38/00(2006.01)i; H01F 41/02(2006.01)i FI: H01F1/059 160; B22F1/00 Y; B22F9/20 A; C22C38/00 303D; H01F41/02 G		
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）） H01F1/059; B22F1/00; B22F9/20; C22C38/00; H01F41/02 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 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
Y A	JP 2015-70102 A（日亜化学工業株式会社）13.04.2015（2015-04-13） 請求項9, 段落[0012]-[0051], [0060]-[0076], 図3(a)-3(b)	5 1-4
Y	JP 2001-44013 A（日立金属株式会社）16.02.2001（2001-02-16） 段落[0004], [0008]-[0010]	5
Y	JP 2004-31761 A（日亜化学工業株式会社）29.01.2004（2004-01-29） 段落[0009]-[0013], [0031]-[0040], [0057]-[0090]	5
P, X P, A	JP 2020-102606 A（日亜化学工業株式会社）02.07.2020（2020-07-02） 請求項6, 段落[0005]-[0048], [0061]-[0084]	5 1-4
<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、一般的な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 03.09.2021		国際調査報告の発送日 14.09.2021
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） 久保田 昌晴 5D 4230 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/JP2021/022875

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2015-70102 A	13.04.2015	(ファミリーなし)	
JP 2001-44013 A	16.02.2001	(ファミリーなし)	
JP 2004-31761 A	29.01.2004	(ファミリーなし)	
JP 2020-102606 A	02.07.2020	(ファミリーなし)	