

(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
2020年9月17日(17.09.2020)



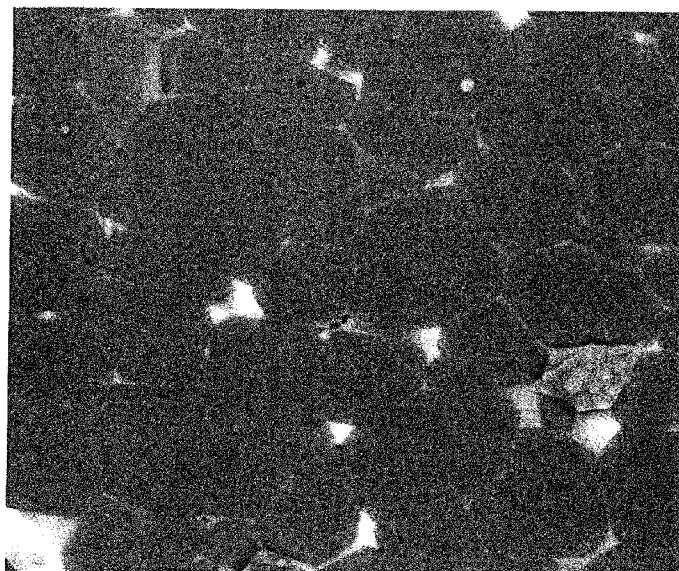
(10) 国際公開番号

WO 2020/184565 A1

- (51) 国際特許分類:
H01F 41/02 (2006.01) *H01F 1/057* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2020/010320
- (22) 国際出願日: 2020年3月10日(10.03.2020)
- (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 2019-046401 2019年3月13日(13.03.2019) JP
- (71) 出願人: T D K株式会社(TDK CORPORATION)
[JP/JP]; 〒1036128 東京都中央区日本橋二丁目5番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 藤川 佳則 (FUJIKAWA, Yoshinori);
〒1036128 東京都中央区日本橋二丁目5番1号 T D K株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 前田・鈴木国際特許業務法人 (MAEDA & SUZUKI); 〒1010003 東京都千代田区一ツ橋2丁目5番5号 岩波書店一ツ橋ビル8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, JO, JP, 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,

(54) Title: R-T-B-BASED PERMANENT MAGNET AND METHOD FOR MANUFACTURING SAME

(54) 発明の名称: R-T-B系永久磁石およびその製造方法



(57) Abstract: [Problem] To provide an R-T-B-based permanent magnet having improved magnetic properties. [Solution] An R-T-B-based permanent magnet which contains R that represents at least one rare earth element essentially including Nd or Pr, T that represents at least one iron-group element essentially including Fe, B that represents boron, and M that represents at least one element selected from Ga, Al, Cu and Si. The R-T-B-based permanent magnet includes main-phase grains which comprise $R_2T_{14}B$ crystals and two-grain grain boundaries each of which exists between adjacent two of the main-phase grains. The average thickness of the two-grain grain boundaries is 5

[続葉有]



WO 2020/184565 A1

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))

to 50 nm inclusive. The area ratio of an $R_6T_{13}M$ compound in an arbitrary cross section is 0.50% or less (including 0%).

(57) 要約: 【課題】 磁気特性を向上させた $R-T-B$ 系永久磁石を得る。【解決手段】 R は Nd または Pr を必須とする 1 種以上の希土類元素、 T は Fe を必須とする 1 種以上の鉄族元素、 B はホウ素であり、 Ga 、 Al 、 Cu および Si のうち少なくとも 1 種以上である M を含む $R-T-B$ 系永久磁石である。 $R-T-B$ 系永久磁石が、 $R_2T_{14}B$ 結晶からなる主相粒子と、隣接する二つの主相粒子の間に存在する二粒子粒界と、を含む。二粒子粒界の平均厚みは 5 nm 以上 50 nm 以下である。任意の断面における $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率が 0.50% 以下 (0% を含む) である。

明 細 書

発明の名称： R－T－B系永久磁石およびその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、R－T－B系永久磁石およびその製造方法に関する。

背景技術

[0002] R－T－B系永久磁石は、優れた磁気特性を有することが知られている。
そして、さらに磁気特性を向上させたR－T－B系永久磁石の開発が行われている。

[0003] 特許文献1には、各成分の含有量を特定の範囲内とし、特にBの含有量を低くすることで磁気特性を向上させた焼結磁石が記載されている。

[0004] 特許文献2には、特にRの含有量、Bの含有量、Gaの含有量を特定の範囲内に制御することで高い保磁力を有するR－T－B系焼結磁石が記載されている。

[0005] 特許文献3には、粒界中にR－Co－Cu－N濃縮部等の濃縮部が存在することで優れた耐食性と良好な磁気特性とを併せ持つR－T－B系焼結磁石が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：国際公開第2013／191276号

特許文献2：国際公開第2014／157448号

特許文献3：特許第6414059号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] しかし、現在では、多くの用途で磁性部品の一層の小型化、軽量化、高効率化が求められている。そのため、R－T－B系焼結磁石などのR－T－B系永久磁石においてさらなる磁気特性の向上が求められている。

[0008] 本発明は、磁気特性を向上させたR－T－B系永久磁石を得ることを目的

とする。

課題を解決するための手段

- [0009] 上記の目的を達成するために、本発明に係る R-T-B 系永久磁石は、
R は Nd または Pr を必須とする 1 種以上の希土類元素、T は Fe を必須とする 1 種以上の鉄族元素、B はホウ素であり、Ga、Al、Cu および Si のうち少なくとも 1 種以上である M を含む R-T-B 系永久磁石であって、
前記 R-T-B 系永久磁石が、 $R_2T_{14}B$ 結晶からなる主相粒子と、隣接する二つの主相粒子の間に存在する二粒子粒界と、を含み、
前記二粒子粒界の平均厚みは 5 nm 以上 50 nm 以下であり、
任意の断面における $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率が 0.50% 以下（0% を含む）である。
- [0010] 本発明に係る R-T-B 系永久磁石は、上記の特徴を有することにより、磁気特性を向上させた R-T-B 系永久磁石となる。
- [0011] 上記の目的を達成するために、本発明に係る R-T-B 系永久磁石の製造方法は、
R は Nd または Pr を必須とする 1 種以上の希土類元素、T は Fe を必須とする 1 種以上の鉄族元素、B はホウ素であり、
 $R_2T_{14}B$ 結晶からなる主相粒子と、隣接する二つの主相粒子の間に存在する二粒子粒界と、を含む R-T-B 系永久磁石の製造方法であって、
成形体を形成する工程と、
金属が付着した成形体を焼結する工程と、を含み、
前記金属から金属炭化物を生成するための標準生成ギブスエネルギーが、R として前記成形体中に主に含まれる希土類元素から当該希土類元素の炭化物を生成するための標準生成ギブスエネルギーよりも低い。
- [0012] 上記の製造方法により得られる R-T-B 系永久磁石は、磁気特性を向上させた R-T-B 系永久磁石となる。
- [0013] 前記金属が Zr、Ti、Ta、Nb、V および Cr のうち少なくとも 1 種

以上であってもよい。

[0014] 前記金属が粉体であってもよい。

[0015] 前記金属が板状であってもよい。

[0016] 前記金属が箔状であってもよい。

図面の簡単な説明

[0017] [図1]本実施形態に係るR-T-B系永久磁石の断面のSEM画像である。

[図2]二粒子粒界が厚い従来のR-T-B系永久磁石の断面のSEM画像である。

[図3]二粒子粒界が薄い従来のR-T-B系永久磁石の断面のSEM画像である。

[図4]二粒子粒界の厚みの測定方法を説明する模式図である。

発明を実施するための形態

[0018] 以下、本発明を、具体的な実施形態に基づき説明する。

[0019] <R-T-B系永久磁石>

本実施形態に係るR-T-B系永久磁石は、 $R_2T_{14}B$ 結晶からなる主相粒子と、隣接する二つの主相粒子の間に存在する二粒子粒界と、を含む。RはNdまたはPrを必須とする1種以上の希土類元素、TはFeまたはFeおよびCoを必須とする1種以上の鉄族元素、Bはホウ素である。なお、Rとして含まれる希土類元素とは、長周期型周期表の第3族に属するScとYとランタノイド元素とをいう。鉄族元素とは、Fe、Co、Niのことをいう。なお、 $R_2T_{14}B$ 結晶からなる主相粒子の粒径は任意である。通常は、 $1\mu m$ 以上 $10\mu m$ 以下である。

[0020] 本実施形態に係るR-T-B系永久磁石は、任意の断面における $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率が0.50%以下である。 $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率が0.45%以下であってもよく、0.15%以下であることが好ましい。また、 $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率が0%であってもよい。すなわち、R-T-B系永久磁石が $R_6T_{13}M$ 化合物を含まなくてもよい。また、 $R_6T_{13}M$ 化合物は、 $La_6Co_{11}Ga_3$ 型結晶構造を有し、R:T:Mが原子数比で概ね6:

13 : 1 である化合物のことである。

[0021] R-T-B系永久磁石における $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率は、例えば走査型電子顕微鏡（SEM）を用いて測定することができる。まず、R-T-B系永久磁石を任意の断面で切断し、研磨する。そして、当該断面において少なくとも200個程度、好ましくは250個程度の主相粒子が見えるように観察範囲の大きさを決定する。また、観察倍率は1000倍以上5000倍以下とする。そして、当該断面をSEMで観察する。そして、SEMを用いて得られる反射電子像にて $R_6T_{13}M$ 化合物を特定し、 $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率を算出する。具体的にはSEMを用いて得られる反射電子像を画像解析ソフトにより解析し、 $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率を求める。一般的に、反射電子像は、原子番号の小さな元素が多く含まれる部分は暗く表示され、原子番号の大きな元素が多く含まれる部分は明るく表示される。例えば、粒界のうち希土類元素を多く含む部分、例えば後述するRリッチ相は明るく表示される。また、 $R_2T_{14}B$ 結晶からなる主相粒子は暗く表示される。そして、 $R_6T_{13}M$ 化合物は主相粒子の明るさとRリッチ相の明るさとの中間くらいの明るさで表示される。また、反射電子像における明るさがRリッチ相の明るさと主相粒子の明るさとの中間である化合物が $R_6T_{13}M$ 化合物か否かは、様々な測定法を実施することにより各化合物を同定することによって確認することができる。様々な測定法の例としては、例えば、SEM（走査電子顕微鏡）-EDS（エネルギー分散型X線分光法）、TEM（透過電子顕微鏡）-SAED（制限視野電子線回折）-EDS（エネルギー分散型X線分光法）、またはEPMA（波長分散型エネルギー分光法）が挙げられる。

[0022] 上記の解析をR-T-B系永久磁石の断面における異なる5視野の反射電子像についてそれぞれ行い、各反射電子像における $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率を算出する。その平均値を $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率とする。

[0023] 本実施形態に係るR-T-B系永久磁石は、二粒子粒界の平均厚みが5 nm以上50 nm以下である。また、7 nm以上33 nm以下であってもよい。また、二粒子粒界の平均厚みは、高分解能透過型電子顕微鏡（HRTEM

)を用いて測定可能である。

[0024] ここで、二粒子粒界の平均厚みは、少なくとも60箇所での測定結果の平均値とする。図4は本実施形態における二粒子粒界の厚みを測定する方法を具体的に示す模式図である。隣接する複数の主相結晶粒子1の間には、二粒子粒界2および粒界三重点3が形成されている。まず、厚みを測定する二粒子粒界2を決定する。そして、二粒子粒界2と当該二粒子粒界2に繋がっている粒界三重点3との境界6a、6bを決定する。境界6a、6bは、正確に決定する必要はなく、HRTM画像から目視にて決定してよい。境界6a、6bの近傍では二粒子粒界の厚みを測定しないためである。

[0025] 境界6a、6bを決定した後に、境界6aと境界6bとの間を4等分し、3つの等分線を引く。この3つの等分線の位置を二粒子粒界の厚みの測定箇所とする。すなわち、一つの二粒子粒界2について、3箇所での厚みを測定することになる。この測定を、少なくとも20個の二粒子粒界2について行い、得られた二粒子粒界の厚みを平均することで二粒子粒界の平均厚みが得られる。

[0026] 本実施形態に係るR-T-B系永久磁石は、 $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率が0.50%以下であり、かつ、二粒子粒界の平均厚みが5nm以上50nm以下である。 $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率が0.50%以下であることにより、R-T-B系永久磁石における主相粒子以外の副相が少なくなる。その結果、残留磁束密度が向上する。また、二粒子粒界の平均厚みが厚いことにより、保磁力が向上する。なお、二粒子粒界の平均厚みが厚すぎる場合には保磁力がさらに向上しやすくなる。しかし、R-T-B系永久磁石全体に占める二粒子粒界相の体積分率が大きくなり、残留磁束密度が低下しやすくなる。

[0027] 本実施形態に係るR-T-B系永久磁石は、図1に示すように、粒界三重点や副相の大きさが小さく、かつ、二粒子粒界が存在することがSEM画像で明確に確認できる。

[0028] これに対し、図2に示す従来のR-T-B系永久磁石では、二粒子粒界が

存在することがSEM画像で明確に確認できるが、粒界三重点や副相の大きさが大きい。この結果、残留磁束密度が低下しやすい。なお、図2に示す構造は、特にBの含有量が0.95質量%未満と小さく、Gaの含有量が0.20質量%以上と大きいR-T-B系永久磁石によく見られる構造である。

[0029] また、図3に示す従来のR-T-B系永久磁石では、二粒子粒界が細く、二粒子粒界が存在することがSEM画像で明確に確認できない。この結果、保磁力が低下しやすい。なお、図3に示す構造は、特にBの含有量が0.95質量%以上と大きく、Gaの含有量が0.20質量%未満と小さいR-T-B系永久磁石によく見られる構造である。また、単に図3に示すR-T-B系永久磁石のRを増やしても、二粒子粒界は太くなりにくく、粒界三重点や副相の大きさが大きくなりやすい。

[0030] 本実施形態に係るR-T-B系永久磁石はRとして少なくともNdまたはPrを含む。さらに好ましくはNdを含む。また、本実施形態に係るR-T-B系永久磁石はRとして重希土類元素を含有してもよい。しかし、重希土類元素の含有量が少なくても高い磁気特性を有するR-T-B系永久磁石が得られる。重希土類元素の含有量は、具体的には、1.0質量%以下（0質量%を含む）としてもよい。また、重希土類元素の含有量は、0.50質量%以下であることが好ましく、0.10質量%以下であることがさらに好ましい。本実施形態に係るR-T-B系永久磁石は、重希土類元素の含有量を低減しても高い保磁力を得ることができ、重希土類元素の含有量を削減できるためである。

[0031] Rの含有量には特に制限はないが、25質量%以上35質量%以下であってもよい。Rの含有量が25質量%以上であると、R-T-B系永久磁石の主相粒子となる $R_2T_{14}B$ 結晶の生成が十分に行われやすく、軟磁性を持つ α -Feなどの析出を抑制し、磁気特性の低下を抑制しやすくなる。Rの含有量が35質量%以下であると、R-T-B系永久磁石の残留磁束密度が向上する傾向にある。Rの含有量は29.0質量%以上32.5質量%以下であってもよい。

[0032] 本実施形態に係る R-T-B 系永久磁石における B の含有量は、0.50 質量%以上 1.5 質量%以下であってもよい。B の含有量は 0.85 質量%以上 1.05 質量%以下であることが好ましい。B の含有量が少ない場合には、粒界三重点や炭素を含む副相の面積割合が多くなりやすくなる。さらに、 $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率も大きくなりやすくなる。その結果、残留磁束密度が低下しやすくなる。さらに、重希土類元素の粒界拡散、特に Tb の粒界拡散を行う場合には Tb が粒界に集積しやすくなる。その結果、Tb の粒界拡散による保磁力上昇の効果を効率的に得にくくなり、残留磁束密度も低下しやすくなる。

[0033] T は、Fe 単独であってもよく、Fe の一部が Co で置換されていてもよい。T として Ni を含んでもよい。本実施形態に係る R-T-B 系永久磁石における Fe の含有量は、R-T-B 系永久磁石において不可避免の不純物を除いた場合の実質的な残部であってもよい。Co の含有量は 0 質量%以上 4 質量%以下であることが好ましく、0.20 質量%以上 3.0 質量%以下であってもよい。Co の含有量が 0.20 質量%以下の場合には耐食性が低下しやすくなる。Co の含有量が 3.0 質量%を超えても Co の含有量が 3.0 質量%以下の場合と比較して耐食性などの特性が向上しにくくなる。そして、コストが高くなる。

[0034] 本実施形態に係る R-T-B 系永久磁石は、R、T および B 以外の元素 M として、Ga、Al、Cu および／または Si を含んでもよい。また、R-T-B 系永久磁石は少なくとも Al および／または Cu を含むことが好ましい。各元素の含有量は任意である。例えば、M の合計含有量は 0.50 質量%以下であってもよく、0.30 質量%以下であってもよい。さらに、M の合計含有量は 0 質量%であってもよく、0.10 質量%以上であることが好ましい。なお、Ga の含有量は 0.20 質量%以下であることが好ましい。

[0035] M の含有量が多い場合には、粒界三重点や炭素を含む副相の面積割合が多くなりやすく、さらに、 $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率も大きくなりやすくなる。その結果、残留磁束密度が低下しやすくなる。さらに、重希土類元素の粒

界拡散、特にTbの粒界拡散を行う場合にはTbが粒界に集積しやすくなる。その結果、Tbの粒界拡散による保磁力上昇の効果を効率的に得にくくなり、残留磁束密度も低下しやすくなる。Mの含有量が少ない場合には、製造条件の変化に対する磁気特性（特にH_{cj}および角型性）の変化が大きくなる。その結果、量産時における磁気特性のばらつきが大きくなる。すなわち、製造安定性が低下する。

[0036] 本実施形態に係るR-T-B系永久磁石は、上記のR、T、BおよびM以外の元素として、Zrを含んでもよい。Zrを含む場合におけるZrの含有量は、R-T-B系永久磁石全体を100質量%として、1.5質量%以下であることが好ましい。R-T-B系永久磁石がZrを含むことにより、製造工程中の焼結時における結晶粒の異常成長を抑制することができる。焼結により得られる焼結体（焼結磁石）の組織を均一かつ微細な組織にすることができ、磁気特性を向上することができる。Zrの含有量は、0.03~0.25質量%であってもよい。また、本実施形態に係るR-T-B系永久磁石は、上記のR、T、BおよびM以外の元素として、Ti、Ta、Nb、VまたはCrを含んでもよい。これらの元素を含む場合におけるこれらの元素の含有量は、R-T-B系永久磁石全体を100質量%として、1.0質量%以下であってもよい。

[0037] 本実施形態に係るR-T-B系永久磁石は、上記した元素以外の元素として、さらに炭素を含んでもよい。炭素量は任意であるが、比較的少ないことが好ましい。例えば、R-T-B系永久磁石全体を100質量%として、炭素量が0.080質量%以下であることが好ましい。炭素量の下限は特にないが、例えば0.020質量%以上としてもよく、0.040質量%以上とすることが好ましい。炭素量が少なくなると軟磁性相であるR₂Fe₁₇化合物が粒界に生成しやすくなり、H_{cj}が低下しやすくなる。

[0038] R-T-B系永久磁石の炭素量を比較的、少なくすることにより、キュリー点を上昇させ、温度特性を改善させることができる。また、粒界におけるRとCとが結合した副相の生成を抑制できる。その結果、二粒子粒界の形成

に寄与するRリッチ相の比率が増加する。そして、 $R_6T_{13}M$ 化合物の含有量が少なくても厚い二粒子粒界の形成が促進される。さらに、重希土類元素の粒界拡散、特にTbの粒界拡散を行う場合にはTbが粒界に集積することを抑制しやすくなる。そして、Tbの粒界拡散による保磁力上昇の効果を効率的に得やすくなり、残留磁束密度も維持しやすくなる。

[0039] R-T-B系永久磁石は、その他の元素としてMn, Ca, Cl, S, F, O, N等の不可避免的不純物を、0.001質量%以上1.0質量%以下程度含んでいてもよい。

[0040] <R-T-B系永久磁石の製造方法>

次に、本実施形態に係るR-T-B系永久磁石の製造方法を説明する。

[0041] 本実施形態に係るR-T-B系永久磁石の製造方法は、少なくとも、成形体を形成する工程と、金属が付着した前記成形体を焼結する工程と、を含む。

[0042] 以下、R-T-B系永久磁石の製造方法について詳しく説明していくが、特記しない事項については、公知の方法を用いればよい。

[0043] [原料粉末の準備工程]

原料粉末は、公知の方法により作製することができる。本実施形態では、主に $R_2T_{14}B$ 相からなる一種類の原料合金を用いる一合金法でR-T-B系永久磁石を製造するが、二種類の原料合金を用いる二合金法により製造してもよい。

[0044] まず、本実施形態に係る原料合金の組成に対応する原料金属を準備し、当該原料金属から本実施形態に対応する原料合金を作製する。原料合金の作製方法に特に制限はない。例えば、ストリップキャスト法にて原料合金を作製することができる。

[0045] 原料合金を作製した後に、作製した原料合金を粉砕する（粉砕工程）。粉砕工程は、2段階で実施してもよく、1段階で実施してもよい。粉砕の方法には特に限定はない。例えば、各種粉砕機を用いる方法で実施される。例えば、粉砕工程を粗粉砕工程および微粉砕工程の2段階で実施し、粗粉砕工程

は例えば水素粉碎処理を行うことが可能である。具体的には、原料合金に対して室温で水素を吸蔵させた後に、Arガス雰囲気下で400℃以上650℃以下、0.5時間以上2時間以下で脱水素を行うことが可能である。また、微粉碎工程は、粗粉碎後の粉末に対して、例えばオレイン酸アミド、ステアリン酸亜鉛などの潤滑剤を添加したのちに、例えばジェットミル、湿式アトライター等を用いて行うことができる。得られる微粉碎粉末（原料粉末）の粒径には特に制限はない。例えば、粒径（D50）が1μm以上10μm以下の微粉碎粉末（原料粉末）となるように微粉碎を行うことができる。

[0046] なお、R-T-B系永久磁石に含まれる炭素量を低減するために上記の潤滑剤の添加量を低減してもよいが、低減しなくてもよい。理由は後述する。

[0047] [成形工程]

成形工程では、粉碎工程により得られた微粉碎粉末（原料粉末）を所定の形状に成形する。成形方法には特に限定はないが、本実施形態では、微粉碎粉末（原料粉末）を金型内に充填し、磁場中で加圧する。

[0048] 成形時の加圧は、30MPa以上300MPa以下で行うことが好ましい。印加する磁場は、950kA/m以上1600kA/m以下であることが好ましい。印加する磁場は静磁場に限定されず、パルス状磁場とすることもできる。また、静磁場とパルス状磁場を併用することもできる。微粉碎粉末（原料粉末）を成形して得られる成形体の形状は特に限定されるものではなく、例えば直方体、平板状、柱状等、所望とするR-T-B系永久磁石の形状に応じて任意の形状とすることができる。

[0049] [焼結工程]

焼結工程は、成形体を真空または不活性ガス雰囲気中で焼結し、焼結体を得る工程である。焼結温度は、組成、粉碎方法、粒度と粒度分布の違い等、諸条件により調整する必要があるが、成形体に対して、例えば、真空中または不活性ガスの存在下、1000℃以上1200℃以下、1時間以上10時間以下で加熱する処理を行うことにより焼結する。これにより、高密度の焼結体（永久磁石）が得られる。

- [0050] 本実施形態における R-T-B 系永久磁石の製造方法では、焼結に先立ち、成形体に金属を付着させる。金属の種類は、金属から金属炭化物を生成するための標準生成ギブスエネルギーが、焼結体に主に含まれる希土類元素（例えば Nd）から当該希土類元素の炭化物を生成するための標準生成ギブスエネルギーよりも低くなるように選択する。また、金属は純金属であることが好ましく、1 種類の純金属を用いてもよく 2 種類以上の純金属を用いてもよい。なお、焼結体に主に含まれる希土類元素とは、焼結体に最も多く含まれる希土類元素を指す。
- [0051] 成形体に付着させる金属としては、例えば Zr、Ti、Ta、Nb、V および Cr が挙げられる。特に Zr を用いることが好ましい。
- [0052] 当該金属を付着させる方法は任意である。例えば、当該金属の粉末上に成形体を載せる方法、当該金属の粉末を成形体に振りかける方法、当該金属の粉末の中に成形体を埋める方法、当該金属の板の上に成形体を載せる方法、当該金属の板を成形体に載せる方法、当該金属の箔で成形体を包む方法、焼結トレイ自体を当該金属で構成する方法、当該金属の網の上に成形体を載せる方法、成形工程において上下のパンチ面の一方もしくは両方に当該金属の粉末を配設して成形することで成形体の表面の少なくとも一部に当該金属からなる層を形成する方法、当該金属を塗布する方法、当該金属を蒸着する方法が挙げられる。さらに、上記の方法を組み合わせ用いてもよい。特に当該金属の粉末を用いる方法が好ましい。
- [0053] なお、成形体に当該金属を付着させることにより炭素の含有割合を低減する効果は、成形体の各面のうち、面積の広い面に付着させるほど大きくなる。
- [0054] また、当該金属の箔を用いる方法では、焼結前には全ての面に当該金属を接触させることが容易であり、接触面積を高めることが容易である。一方、焼結が進行するにつれ、成形体の体積が減少する。したがって、焼結が進行するにつれ、当該金属の箔が成形体と接触しなくなり、接触面積が小さくなってしまう場合がある。

[0055] 当該金属を成形体に付着させた状態で焼結を行うことで、成形体内部の炭素が希土類永久磁石表面に移動して当該金属と反応し炭化物となる。一方、金属は磁石内部にほとんど侵入せず磁石表面に留まる。この結果、希土類永久磁石中の炭素の含有割合を低減することができる。

[0056] この方法で炭素量を低減する場合には、潤滑剤を低減することで炭素量を低減する場合と比較して残留磁束密度を好適に維持しやすい。潤滑剤を低減する場合には、成形工程において配向度が低下しやすく、最終的に得られる磁石の残留磁束密度が低下しやすくなるためである。したがって、目的とする磁石の保磁力および残留磁束密度を考慮して潤滑剤の添加量を決定することが好ましい。

[0057] [時効処理工程]

時効処理工程は、焼結工程後の焼結体（永久磁石）に対して、焼結温度よりも低い温度で加熱することにより行う。時効処理の温度および時間には特に制限はないが、例えば450℃以上900℃以下で0.2時間以上3時間以下、行うことができる。なお、この時効処理工程は省略してもよい。

[0058] また、時効処理工程は1段階で行ってもよく、2段階で行ってもよい。2段階で行う場合には、例えば1段階目を700℃以上900℃以下で0.2時間以上3時間以下とし、2段階目を450℃以上700℃以下で0.2時間以上3時間以下としてもよい。また、1段階目と2段階目とを連続して行ってもよく、1段階目の後に一度室温近傍まで冷却してから再加熱して2段階目を行ってもよい。

[0059] 時効処理前、または時効処理後に、成形体に付着させた金属を除去する。例えば、R-T-B系焼結磁石の全面、または、金属を付着させた面を50μm以上、研磨することで金属を除去してもよい。

[0060] 以上、本発明のR-T-B系永久磁石の好適な実施形態について説明したが、本発明のR-T-B系永久磁石は上記の実施形態に制限されるものではない。本発明のR-T-B系永久磁石は、その要旨を逸脱しない範囲で様々な変形、種々の組み合わせが可能である。

[0061] さらに、本実施形態に係る R-T-B 系永久磁石を切断、分割して得られる磁石を用いることができる。

[0062] 具体的には、本実施形態に係る R-T-B 系永久磁石は、モータ、コンプレッサー、磁気センサー、スピーカ等の用途に好適に用いられる。

[0063] また、本実施形態に係る R-T-B 系永久磁石は、単独で用いてもよく、2 個以上の R-T-B 系永久磁石を必要に応じて結合させて用いてもよい。結合方法に特に制限はない。例えば、機械的に結合させる方法や樹脂モールドで結合させる方法がある。

[0064] 2 個以上の R-T-B 系永久磁石を結合させることで、大きな R-T-B 系永久磁石を容易に製造することができる。2 個以上の R-T-B 系永久磁石を結合させた磁石は、特に大きな R-T-B 系永久磁石が求められる用途、例えば、IPM モータ、風力発電機、大型モータ等に好ましく用いられる。

実施例

[0065] 次に、本発明を具体的な実施例に基づきさらに詳細に説明するが、本発明は、以下の実施例に限定されない。

[0066] (実験例 1)

(永久磁石作製工程)

原料金属として、Nd、電解鉄、低炭素フェロボロン合金を準備した。さらに、Ga、Al、Cu、Co、Zr を、純金属または Fe との合金の形で準備した。

[0067] 前記原料金属に対し、ストリップキャスト法により、後述する微粉碎で得られる原料粉末の組成が表 1 および表 2 に記載の組成となるように原料合金を作製した。原料合金における不可避的不純物等の含有量は 1 質量%以下となるようにした。また、前記原料合金の合金厚みは 0.2 mm ~ 0.6 mm とした。

[0068] なお、水素吸蔵粉碎から後述する焼結工程までは、常に酸素濃度 200 ppm 未満の低酸素雰囲気とした。

- [0069] 次いで、前記原料合金に対して室温で1時間、水素ガスをフローさせて水素を吸蔵させた。次いで雰囲気をArガスに切り替え、450℃で1時間、脱水素処理を行い、原料合金を水素粉砕した。さらに、冷却後にふるいを用いて400 μ m以下の粒度の粉末とした。
- [0070] 次いで、水素粉砕後の原料合金の粉末に対し、質量比で0.10%のオレイン酸アミドを潤滑剤として添加し、混合した。
- [0071] 次いで、衝突板式のジェットミル装置を用いて窒素気流中で微粉砕し、それぞれ平均粒径が4 μ m程度の微粉（原料粉末）を得た。なお、前記平均粒径は、レーザ回折式の粒度分布計で測定した平均粒径D50である。
- [0072] なお、不可避免の不純物等として、H, Si, Ca, La, Ce, Cr等が検出される場合がある。Siは主にフェロボロン原料および合金溶解時のろっぽから混入する。Ca, La, Ceは希土類の原料から混入する。また、Crは電解鉄から混入する可能性がある。
- [0073] 得られた微粉を磁界中で成形して直方体形状（長さ×幅×厚み＝20mm×20mm×15mm）の成形体を作製した。このときの印加磁場は1200kA/mの静磁界である。また、成形時の加圧力は120MPaとした。なお、磁界印加方向と加圧方向とを直交させるようにした。この時点での成形体の密度を測定したところ、全ての成形体の密度が4.10Mg/m³以上4.25Mg/m³以下の範囲内であった。
- [0074] 次に、前記成形体を焼結する前に表1に記載の金属を接触させた。なお、比較例1、2、4では、成形体に金属を接触させずに焼結させた。
- [0075] 金属の形態が粉末である場合には、成形体の質量を100質量%として3質量%の金属粉末を接触させた。具体的には、上記の成形体の最も広い面積を有する2つの面、すなわち、2つの20mm×20mmの面に、それぞれ1.5質量%ずつ、金属粉末を接触させた。また、金属粉末は、各面において均一に付着するようにした。なお、実施例13はZrとTiとを重量比で66:34となるように混合した金属粉末を接触させた。
- [0076] 金属の形態が板状である場合には、厚さ1mmの金属板を接触させた。具

体的には、上記の成形体の最も広い面積を有する2つの面の全体に金属板を接触させた。

[0077] 金属の形態が箔状である場合には、厚さ $10\mu\text{m}$ の金属箔を接触させた。具体的には、成形体全体を金属箔で包み、成形体の全ての面の全体に金属箔が接触するようにした。

[0078] 次に、前記成形体を焼結し、永久磁石を得た。焼結条件は、 1060°C で4時間保持とした。焼結雰囲気は真空中とした。このとき焼結密度は $7.50\text{Mg}/\text{m}^3$ 以上 $7.55\text{Mg}/\text{m}^3$ 以下の範囲にあった。その後、Ar雰囲気、大気圧中で、第一時効温度 $T1=900^{\circ}\text{C}$ で1時間の第一時効処理を行い、さらに、第二時効温度 $T2=500^{\circ}\text{C}$ で1時間の第二時効処理を行った。

[0079] その後、得られた永久磁石から付着させた金属および焼結によって生じた残渣や表面の凹凸を除去した。具体的には、永久磁石の全面を $50\mu\text{m}$ ずつ、研磨した。

[0080] 得られた永久磁石の組成は蛍光X線分析で評価した。なお、Bの含有量はICPで評価し、炭素量は酸素気流中燃焼-赤外吸収法により評価した。その結果、炭素量以外は原料合金の組成と得られた永久磁石の組成とが実質的に同一であることを確認した。すなわち、付着させた金属は上記の研磨によりほぼ全量が除去され、永久磁石には実質的に含まれなかった。炭素量を表1に示す。

[0081] 得られた永久磁石について、BHトレーサーで磁気特性（残留磁束密度 B_r および保磁力 H_{c_j} ）の評価を行った。本実験例では、保磁力は $1230\text{kA}/\text{m}$ 以上を良好とした。残留磁束密度は 1400mT 以上を良好とした。

[0082] 得られた永久磁石について、 $\text{R}_6\text{T}_{13}\text{M}$ 化合物の面積比率を測定した。得られた永久磁石の断面をSEMで観察し、 $\text{R}_6\text{T}_{13}\text{M}$ 化合物の面積比率を算出した。なお、観察範囲は $0.25\text{mm}\times0.25\text{mm}$ とした。また、観察範囲に少なくとも1200個の主相粒子が含まれることを確認した。結果を表1

に示す。表 1 にて N. D. と記載されている試料は、 $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率が測定限界である 0.10% を下回る試料である。

[0083] 二粒子粒界の平均厚みは上記の断面について H R T E M を用いて観察し、上述した通りの方法で測定した。結果を表 1 に示す。

[0084] [表1]

	原料粉末 の組成	焼結時に成形体に 接触させる金属		二粒子粒界 の平均厚み	$R_6T_{13}M$ 化合物 の面積比率	炭素量	Br	Hcj
		金属元素 の種類	金属 の形態			質量%	mT	kA/m
比較例 1	組成 1	無し	-	2	0.10	0.089	1460	1210
比較例 2	組成 2	無し	-	19	0.95	0.115	1390	1350
比較例 3	組成 1	W	粉末	2	N.D.	0.088	1460	1210
比較例 4	組成 3	無し	-	4	0.20	0.101	1430	1220
実施例 1	組成 1	Zr	粉末	33	0.10	0.063	1460	1450
実施例 2	組成 1	Zr	箔状	24	0.10	0.071	1465	1345
実施例 3	組成 1	Zr	板状	19	0.10	0.070	1465	1355
実施例 4	組成 1	Ti	粉末	15	0.15	0.071	1465	1300
実施例 5	組成 1	Ti	箔状	10	0.15	0.076	1460	1245
実施例 6	組成 1	Ti	板状	12	0.15	0.073	1465	1250
実施例 7	組成 1	Ta	粉末	18	0.10	0.069	1460	1405
実施例 8	組成 1	Ta	箔状	14	N.D.	0.074	1460	1305
実施例 9	組成 1	Ta	板状	15	N.D.	0.072	1460	1310
実施例 10	組成 1	Nb	粉末	13	N.D.	0.071	1465	1320
実施例 11	組成 1	Nb	箔状	7	N.D.	0.076	1460	1245
実施例 12	組成 1	Nb	板状	9	N.D.	0.075	1465	1265
実施例 13	組成 1	Zr,Ti混合粉	粉末	19	0.10	0.069	1460	1400
実施例 14	組成 4	Zr	粉末	19	0.45	0.079	1435	1375

[0085] [表2]

	含有割合(質量%)							
	R	T		B	M			
	Nd	Fe	Co	B	Al	Cu	Si	Ga
組成 1	31.0	残部	0.50	1.00	0.20	0.10	0.00	0.00
組成 2	31.0	残部	0.50	0.90	0.20	0.10	0.00	0.20
組成 3	31.0	残部	0.50	0.95	0.10	0.10	0.00	0.10
組成 4	31.0	残部	0.50	0.95	0.20	0.10	0.00	0.20

[0086] 表 1 より、成形体に金属元素として Z r、T i、T a、N b から選択される 1 種または 2 種を接触させて焼結した実施例 1 ～ 1 4 は、成形体に金属元素を接触させなかった比較例 1、2、4、および、成形体に金属元素として W を接触させた比較例 3 と比較して、炭素量が少なくなった。そして、二粒子粒界の平均厚みが 5 n m 以上 5 0 n m 以下であり、かつ、 $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率が 0.50% 以下となった。そして、B r および H c j が良好で

あった。

[0087] 比較例 1～4 のうち、B の含有量が比較的多い 1.00 質量%であり G a を含有しない比較例である比較例 1、3 は炭素量が多くなった。そして、図 3 に示すように二粒子粒界の平均厚みが低くなった。その結果、実施例と比較して H c j が低下した。なお、比較例 1、3 から R の量を増加させたとしても、粒界三重点の面積比率が増加しやすく二粒子粒界の平均厚みを 5 nm 以上とすることは困難である。

[0088] 比較例 1～4 のうち、B の含有量が比較的少ない 0.90 質量%であり G a の含有量が比較的多い 0.20 質量%である比較例 2 は炭素量が多くなった。そして、粒界三重点の面積比率が増大し、炭素を含む副相や R₆T₁₃M 相の面積比率が増大した。その結果、実施例と比較して B r が低下した。

[0089] 比較例 1～4 のうち、B の含有量が 0.95 質量%であり G a の含有量が 0.10 質量%である比較例 4 は炭素量が多くなり、二粒子粒界の平均厚みが低くなった。その結果、実施例と比較して H c j が低下した。

[0090] なお、金属元素として W を接触させた比較例 3 において、得られる永久磁石の炭素量が多くなったのは、W から W 炭化物を生成するための標準生成ギブスエネルギーが、N d から N d 炭化物を生成するための標準生成ギブスエネルギーよりも高いためである。これに対し、実施例 1～14 において得られる永久磁石の炭素量が少なくなったのは、Z r、T i、T a、N b からこれらの炭化物を生成するための標準生成ギブスエネルギーが、N d から N d 炭化物を生成するための標準生成ギブスエネルギーよりも低いためである。

[0091] (実験例 2)

実験例 2 では、原料粉末の組成を表 2 の組成 1 とし、焼結時に成形体に接触させる金属元素の種類を変化させた点以外は、実験例 1 と同様に実施した。結果を表 3 に示す。

[0092]

[表3]

	原料粉末 の組成	焼結時に成形体に 接触させる金属		二粒子粒界 の平均厚み nm	$R_6T_{13}M$ 化合物 の面積比率 %	炭素量 質量%	Br mT	Hcj kA/m
		金属元素 の種類	金属 の形態					
実施例21	組成 1	V	粉末	12	0.10	0.071	1465	1285
実施例22	組成 1	V	箔状	7	0.10	0.075	1460	1255
実施例23	組成 1	V	板状	8	0.10	0.074	1460	1255
実施例24	組成 1	Cr	粉末	13	0.10	0.072	1465	1295
実施例25	組成 1	Cr	箔状	7	0.10	0.075	1460	1255
実施例26	組成 1	Cr	板状	8	0.10	0.075	1460	1260

[0093] 表 3 より、金属元素の種類を V または Cr に変化させた実施例 21～26 は、比較例 1～4 と比較して炭素量が少なくなった。そして、二粒子粒界の平均厚みが 5 nm 以上であり、かつ、 $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率が 0.50 % 以下となった。そして、Br および Hcj が良好であった。

[0094] (実験例 3)

実験例 3 では、原料粉末の組成を表 4 に示す組成とした点以外は、実験例 1 と同様に実施した。結果を表 4 に示す。

[0095] [表4]

	含有割合(質量%)								二粒子粒界 の平均厚み	R ₆ T ₁₃ M化合物の 面積比率	炭素量	Br	Hcj
	R		T	M									
	Nd	Fe	Co	B	Al	Cu	Si	Ga					
									nm	%	質量%	mT	kA/m
実施例31	29.0	残部	0.50	1.00	0.20	0.10	0.00	0.00	25	N.D.	0.057	1475	1415
実施例1	31.0	残部	0.50	1.00	0.20	0.10	0.00	0.00	33	0.10	0.063	1460	1450
実施例32	32.5	残部	0.50	1.00	0.20	0.10	0.00	0.00	33	0.10	0.067	1415	1450
実施例33	31.0	残部	0.20	1.00	0.20	0.10	0.00	0.00	33	0.10	0.060	1460	1450
実施例1	31.0	残部	0.50	1.00	0.20	0.10	0.00	0.00	33	0.10	0.063	1460	1450
実施例34	31.0	残部	3.00	1.00	0.20	0.10	0.00	0.00	32	0.10	0.064	1460	1450
実施例35	31.0	残部	0.50	0.85	0.20	0.10	0.00	0.00	36	0.20	0.079	1410	1440
実施例1	31.0	残部	0.50	1.00	0.20	0.10	0.00	0.00	33	0.10	0.063	1460	1450
実施例36	31.0	残部	0.50	1.05	0.20	0.10	0.00	0.00	21	N.D.	0.059	1435	1430
実施例37	31.0	残部	0.50	1.00	0.10	0.10	0.00	0.00	33	N.D.	0.064	1460	1440
実施例1	31.0	残部	0.50	1.00	0.20	0.10	0.00	0.00	33	0.10	0.063	1460	1450
実施例38	31.0	残部	0.50	1.00	0.40	0.10	0.00	0.00	32	0.20	0.063	1415	1450
実施例39	31.0	残部	0.50	1.00	0.20	0.05	0.00	0.00	24	N.D.	0.069	1460	1440
実施例1	31.0	残部	0.50	1.00	0.20	0.10	0.00	0.00	33	0.10	0.063	1460	1450
実施例40	31.0	残部	0.50	1.00	0.20	0.20	0.00	0.00	34	0.15	0.059	1450	1455
実施例1	31.0	残部	0.50	1.00	0.20	0.10	0.00	0.00	33	0.10	0.063	1460	1450
実施例41	31.0	残部	0.50	1.00	0.20	0.10	0.10	0.00	26	0.14	0.066	1455	1440
実施例42	31.0	残部	0.50	1.00	0.20	0.10	0.20	0.00	22	0.19	0.068	1455	1440
実施例1	31.0	残部	0.50	1.00	0.20	0.10	0.00	0.00	33	0.10	0.063	1460	1450
実施例43	31.0	残部	0.50	1.00	0.20	0.10	0.00	0.10	25	0.15	0.067	1455	1440
実施例44	31.0	残部	0.50	1.00	0.20	0.10	0.00	0.20	21	0.20	0.069	1455	1440

[0096] 表 4 より、原料粉末の組成を変化させても、得られた実施例 31～44 は、比較例 1～4 と比較して炭素量が少なくなった。そして、二粒子粒界の平均厚みが 5 nm 以上 50 nm 以下であり、かつ、 $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率が 0.50 % 以下となった。そして、Br および Hcj が良好であった。

[0097] なお、Bの含有量が比較的多い実施例36は、Bの含有量以外、同条件で実施した実施例1と比較してBrおよびHcjが低下した。Bの含有量が多い場合には、希土類元素のホウ化物などの副相が生じやすいためである。

[0098] (実験例4)

実験例4では、金属粉末の量を変化させた点以外は実施例1と同様に実施した。結果を表5に示す。

[0099] [表5]

	粉末量	二粒子粒界の平均厚み	R ₆ T ₁₃ M化合物の面積比率	炭素量	Br	Hcj
	質量%	nm	%	質量%	mT	kA/m
比較例1	0.0	2	0.10	0.089	1460	1210
実施例51	1.0	11	0.10	0.080	1460	1275
実施例52	2.0	18	0.10	0.075	1460	1350
実施例1	3.0	33	0.10	0.063	1460	1450
実施例53	5.0	47	0.10	0.055	1435	1460
比較例51	10.0	58	0.15	0.035	1370	1440

[0100] 表5より、金属粉末の量が多いほど炭素量が低減し、二粒子粒界の平均厚みが厚くなった。そして、二粒子粒界の平均厚みが5nm以上50nm以下である各実施例は比較例1～4と比較して炭素量が少なくなった。そして、R₆T₁₃M化合物の面積比率が0.50%以下となった。そして、BrおよびHcjが良好であった。なお、比較例1、実施例1および実施例51～53では、金属粉末の量が少なくなるほどHcjが低下した。これは、金属粉末の量が少なくなるほど、希土類永久磁石中の炭素の含有割合を低減させる効果が小さくなり、二粒子粒界の平均厚みが薄くなる傾向があるためである。

[0101] これに対し、比較例51は二粒子粒界の平均厚みが厚くなりすぎた。その結果、Brが低下した。また、比較例51では、炭素量が少なくなったことに伴い、R₆T₁₃M化合物の面積比率が増加し、R₂Fe₁₇化合物が粒界に生成した。その結果、実施例1および実施例53と比較してHcjも低下した。

符号の説明

- [0102] 1 主相結晶粒子
2 二粒子粒界
3 粒界三重点
6 a、6 b 境界

請求の範囲

[請求項1] RはNdまたはPrを必須とする1種以上の希土類元素、TはFeを必須とする1種以上の鉄族元素、Bはホウ素であり、Ga、Al、CuおよびSiのうち少なくとも1種以上であるMを含むR-T-B系永久磁石であって、

前記R-T-B系永久磁石が、 $R_2T_{14}B$ 結晶からなる主相粒子と、隣接する二つの主相粒子の間に存在する二粒子粒界と、を含み、
前記二粒子粒界の平均厚みは5nm以上50nm以下であり、
任意の断面における $R_6T_{13}M$ 化合物の面積比率が0.50%以下(0%を含む)であるR-T-B系永久磁石。

[請求項2] RはNdまたはPrを必須とする1種以上の希土類元素、TはFeを必須とする1種以上の鉄族元素、Bはホウ素であり、

$R_2T_{14}B$ 結晶からなる主相粒子と、隣接する二つの主相粒子の間に存在する二粒子粒界と、を含むR-T-B系永久磁石の製造方法であって、

成形体を形成する工程と、

金属が付着した成形体を焼結する工程と、を含み、

前記金属から金属炭化物を生成するための標準生成ギブスエネルギーが、Rとして前記成形体中に主に含まれる希土類元素から当該希土類元素の炭化物を生成するための標準生成ギブスエネルギーよりも低いR-T-B系永久磁石の製造方法

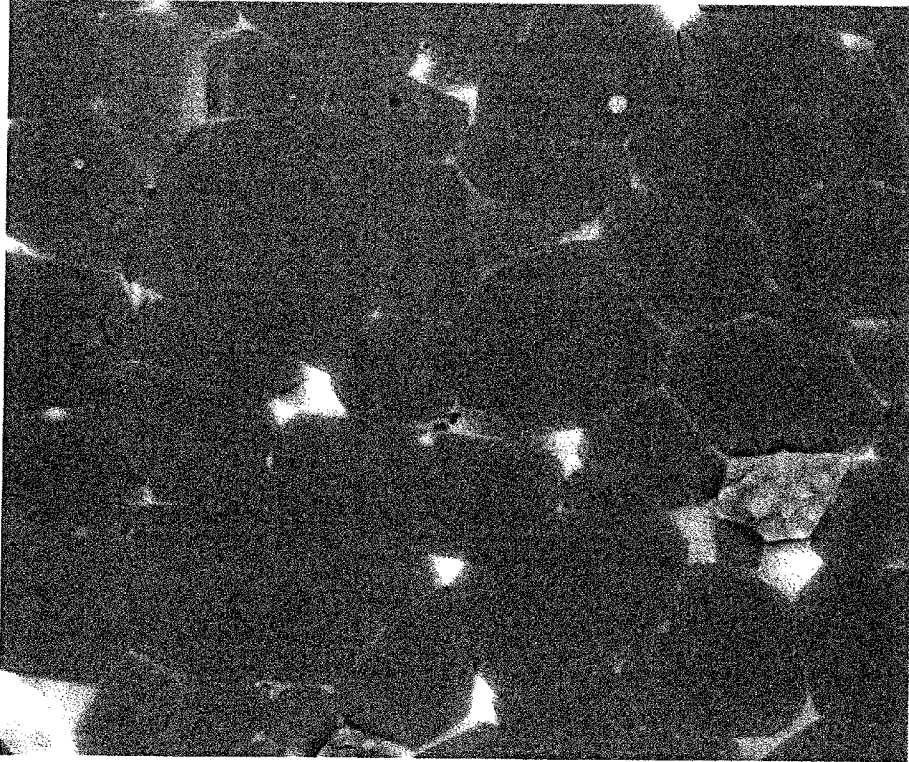
[請求項3] 前記金属がZr、Ti、Ta、Nb、VおよびCrのうち少なくとも1種以上である請求項2に記載のR-T-B系永久磁石の製造方法。

[請求項4] 前記金属が粉体である請求項2または3に記載のR-T-B系永久磁石の製造方法。

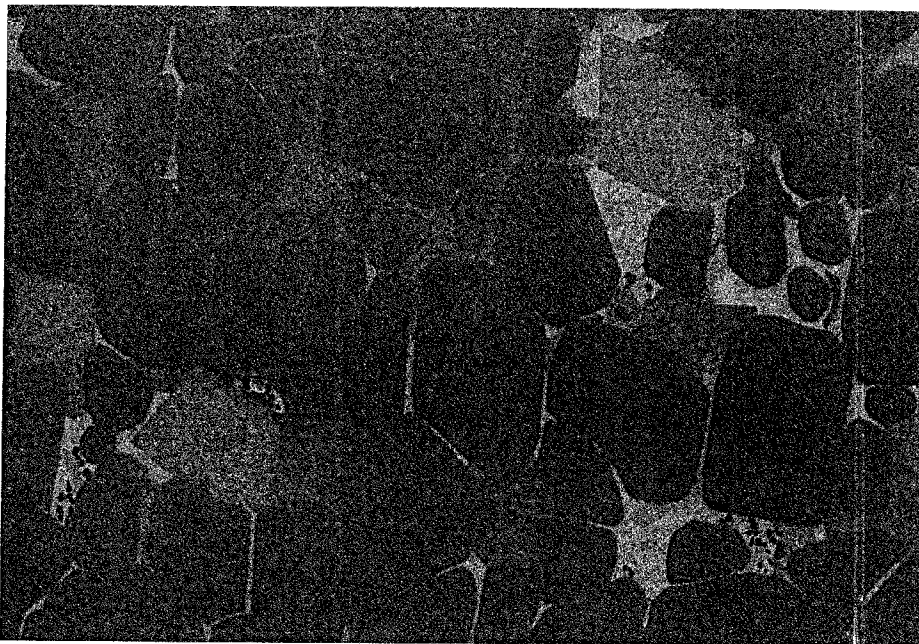
[請求項5] 前記金属が板状である請求項2または3に記載のR-T-B系永久磁石の製造方法。

[請求項6] 前記金属が箔状である請求項2または3に記載のR－T－B系永久磁石の製造方法。

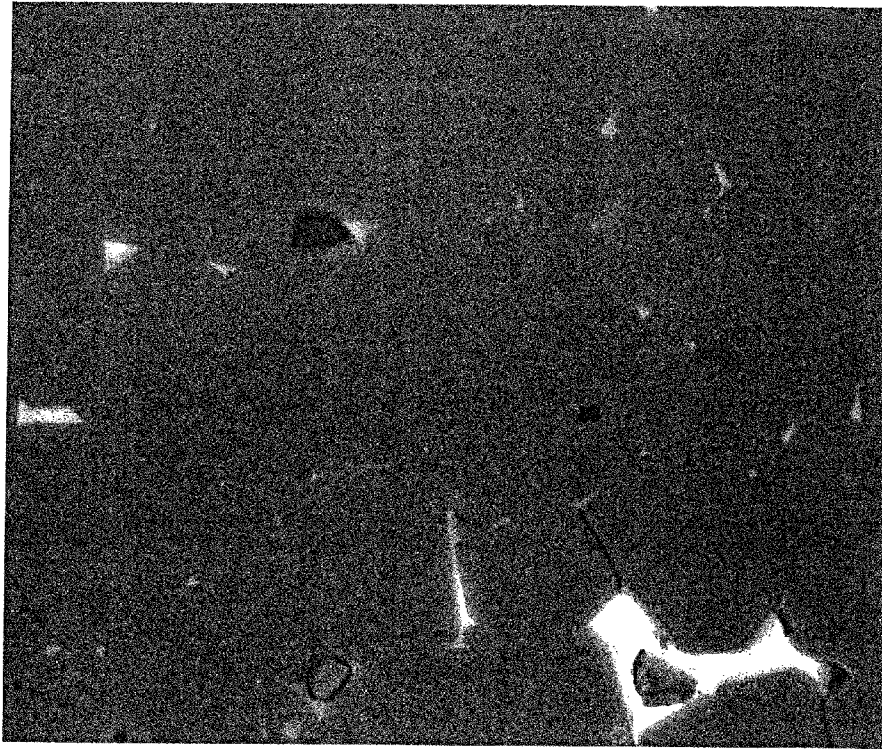
[図1]



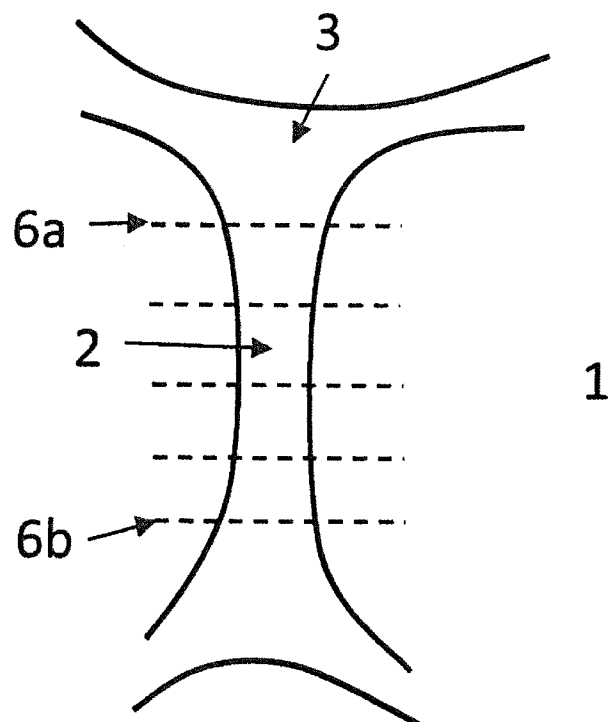
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/010320

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. H01F41/02 (2006.01) i, H01F1/057 (2006.01) i
FI: H01F1/057170, H01F41/02G

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)

Int.Cl. H01F41/02, 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	1971-2020
Registered utility model specifications of Japan	1996-2020
Published registered utility model applications of Japan	1994-2020

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.
A	JP 2005-276949 A (NEOMAX CO., LTD.) 06.10.2005 (2005-10-06)	1-6
A	JP 2006-265600 A (TDK CORPORATION) 05.10.2006 (2006-10-05)	1-6
A	WO 2007/077809 A1 (NEOMAX CO., LTD.) 12.07.2007 (2007-07-12)	1-6



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
14.05.2020

Date of mailing of the international search report
02.06.2020

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/JP2020/010320

JP 2005-276949 A 06.10.2005 (Family: none)

JP 2006-265600 A 05.10.2006 (Family: none)

WO 2007/077809 A1 12.07.2007 US 2008/0254285 A1
US 2010/0092660 A1
EP 1968080 A1
CN 101356601 A

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） H01F 41/02(2006.01)i; H01F 1/057(2006.01)i FI: H01F1/057 170; 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）） H01F41/02; 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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922 - 1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971 - 2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2020年</td> </tr> </table>			日本国実用新案公報	1922 - 1996年	日本国公開実用新案公報	1971 - 2020年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2020年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2020年				
日本国実用新案公報	1922 - 1996年													
日本国公開実用新案公報	1971 - 2020年													
日本国実用新案登録公報	1996 - 2020年													
日本国登録実用新案公報	1994 - 2020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												
A	JP 2005-276949 A（株式会社NEOMAX）06.10.2005（2005 - 10 - 06）	1 - 6												
A	JP 2006-265600 A（TDK株式会社）05.10.2006（2006 - 10 - 05）	1 - 6												
A	WO 2007/077809 A1（株式会社NEOMAX）12.07.2007（2007 - 07 - 12）	1 - 6												
☐ 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。														
<table border="0"> <tr> <td>* 参考文献のカテゴリー</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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）</td> <td>“&” 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td></td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td></td> </tr> </table>			* 参考文献のカテゴリー	“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	“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	“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	“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	“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	“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）	“&” 同一パテントファミリー文献	“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	
* 参考文献のカテゴリー	“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													
“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	“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													
“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	“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													
“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）	“&” 同一パテントファミリー文献													
“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														
国際調査を完了した日 14.05.2020	国際調査報告の発送日 02.06.2020													
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） 井上 健一 5D 9373 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/JP2020/010320

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	2005-276949	A	06.10.2005	(ファミリーなし)			
JP	2006-265600	A	05.10.2006	(ファミリーなし)			
WO	2007/077809	A1	12.07.2007	US	2008/0254285	A1	
				US	2010/0092660	A1	
				EP	1968080	A1	
				CN	101356601	A	