

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2002年9月12日 (12.09.2002)

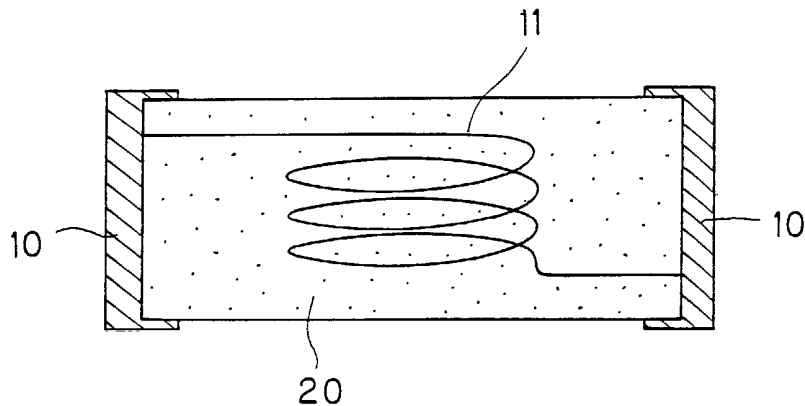
PCT

(10) 国際公開番号  
WO 02/070432 A1

- (51) 国際特許分類: C04B 35/32
- (21) 国際出願番号: PCT/JP01/06691
- (22) 国際出願日: 2001年8月3日 (03.08.2001)
- (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2001-56152 2001年3月1日 (01.03.2001) JP  
 特願2001-56153 2001年3月1日 (01.03.2001) JP  
 特願2001-56412 2001年3月1日 (01.03.2001) JP  
 特願2001-56413 2001年3月1日 (01.03.2001) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): ティーディーケイ株式会社 (TDK CORPORATION) [JP/JP]; 〒103-8272 東京都中央区日本橋一丁目13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): 梅田秀信 (UMEDA, Hidenobu) [JP/JP]. 村瀬 琢 (MURASE, Taku) [JP/JP]; 〒103-8272 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケイ株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 弁理士 血田秀夫, 外 (SARADA, Hideo et al.); 〒101-0043 東京都千代田区神田富山町28番地2 松井ビル4階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): CN, KR, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (DE, FR, GB, NL).
- 添付公開書類:  
 — 国際調査報告書
- 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: MAGNETIC OXIDE SINTER AND HIGH-FREQUENCY CIRCUIT PART EMPLOYING THE SAME

(54) 発明の名称: 磁性酸化物焼結体およびこれを用いた高周波回路部品



(57) Abstract: A magnetic oxide sinter at least 80% of which is accounted for by Y-type hexagonal ferrite and which comprises cobalt oxide, copper oxide, iron oxide, and AO (AO is at least one of BaO and SrO) as major ingredients in given amounts by mol% and MO (MO is at least one of NiO, ZnO, and MgO) as a preferred optional major ingredient in a given amount by mol% and further contains bismuth oxide (Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), a borosilicate glass, a borosilicate zinc glass, or a bismuth glass as a minor ingredient in a given amount by wt.%. Because of the constitution, it is usable in a high frequency region of from several hundreds of megahertz to the order of GHz while retaining satisfactory magnetic properties. In the sinter, the amount of phases other than the Y-type hexagonal ferrite is minimal. It can be produced through sintering at 1,000 °C or lower, especially around 900 °C.

[続葉有]



WO 02/070432 A1



---

(57) 要約:

Y型六方晶フェライトで80%以上占有されてなる磁性酸化物焼結体であって、該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルト、酸化銅、酸化鉄、およびAO(AOは、BaOまたはSrOの少なくとも1種)を所定のモル%含有させ、さらに好ましくは主成分としてMO(MOは、NiO、ZnO、MgOの少なくとも1種)を所定のモル%含有させ、副成分として酸化ビスマス(Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)、硼珪酸ガラス、硼珪酸亜鉛ガラスまたはビスマスガラスを所定重量%含有させてなるように構成しているので、数百MHz~GHzといった高周波帯域まで磁気特性が良好で使用可能であり、かつY型六方晶フェライト以外の異相をできるだけ含まず1000°C以下特に、900°C付近で焼成可能である磁性酸化物焼結体およびこれを用いた高周波回路部品を提供することができる。

## 明 細 書

### 磁性酸化物焼結体およびこれを用いた高周波回路部品

#### 技術分野

本発明は、高周波回路部品用に使用される磁性酸化物焼結体およびこれを用いた高周波回路部品に関する。

#### 背景技術

(1) 近年、電子機器の小型化や高周波化に伴い、高周波帯域において高いインダクタンス、インピーダンスを持つ電子部品の需要が高まっている。小型で高いインダクタンス、インピーダンスを得るためには、いわゆる印刷工法やシート工法によって磁性体中に導電体を内蔵した積層構造のコイルを作製することが望ましい。

積層構造とすることでコイルの巻数を多くすることができ、構造も閉磁路となるため高いインダクタンス、インピーダンスが得られる。

焼結体に内蔵される導電体材料としては、電気抵抗率、融点、コストなどの点を考慮して一般に銀 (Ag) が多く用いられている。銀の融点は1000℃以下であるため、積層構造用の磁性体材料としては、従来より一般に、900℃の焼成でも高い焼結密度が得られるNiZn系フェライトが用いられてきた。

しかしながら、NiZn系フェライトは磁気異方性が低いために数百MHzの周波数で自然共鳴を起こしてしまい、GHzの周波数帯域で使用することができなかった。

高周波仕様として、非磁性体を用いた空心コイルが用いられることもあるが、非磁性体を用いると高いインダクタンスやインピーダンスを得ることが困難になる。

この一方で六方晶フェライトは、六角板状結晶の面内方向とこの面に垂直な方向とでは磁気異方性が異なっているため、自然共鳴を起こしにくく、GHzの周波数帯域まで高い透磁率を持つという特徴をもっている。しかしながら、この

ものは、所望の焼結密度や磁気特性を得るためには焼成温度を高くする必要がある。

これまで生成温度の高い六方晶フェライトにおいて、低融点酸化物を用いることでA<sub>g</sub>の融点以下で焼成するという試みもなされているが、軟磁性相生成率が低く、六方晶フェライトの磁気特性を十分に発揮することは困難であった。

本願に関連する類似の先行技術の一つに特開平9-167703号公報がある。当該公報では、Z型六方晶フェライト(Ba, Sr, Pb)<sub>3</sub>(Co<sub>1-x</sub>Cu<sub>x</sub>)<sub>2</sub>Fe<sub>24</sub>O<sub>42</sub>を中心に検討がなされ、低温焼成を試みるためにV<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, CuO, Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MoO<sub>3</sub>, WO<sub>3</sub>, PbOの添加を行っている。

また、当該公報においては主要相が、M型、Y型、W型、X型、U型の六方晶フェライトの低温焼成についても報告がなされている。特に、具体的な実施例で開示されている主要相をY型とするもの、すなわち(Ba)<sub>2</sub>(Co<sub>1-x</sub>Cu<sub>x</sub>)<sub>2</sub>Fe<sub>12</sub>O<sub>22</sub>については、Y型六方晶フェライトの占有率の記載がなく、不明であるものの、仮焼温度が700℃と極めて低いために占有率はたかだか50%程度、添加物を加えればその占有率はさらに低下し、本願のごとく80%を超えるものではないと言える。そのため、得られる磁気特性は決して満足のいくものではない。すなわち、当該公報における組成および物質の添加は、低温焼結を可能にするが、仮焼き温度の検討が十分になされておらず、焼結後における軟磁性相の生成率が低いために焼成後の磁気特性を十分に発揮することができない。そのため、高いインダクタンスやインピーダンスを得ることが困難であるという問題があると言える。

また、当該公報におけるCuOの含有量も本願と比べて少なく、添加物の効果を考慮したとしても900℃程度の焼成でY型六方晶フェライトの生成率を高めて、高い特性を得ることができないという問題があった。

(2) 上記(1)に示されるような問題点に加えて、さらに解決すべき以下の問題点がある。すなわち、従来のいわゆるY型六方晶フェライトの電気抵抗率は、高くてもせいぜい $1 \times 10^5 \Omega \cdot m$ 程度までであり、また高特性を得るためにCuやZnなどで置換したものについては、その電気抵抗率が $1 \times 10^4 \Omega \cdot m$ 程度であり、これらの値は、電子部品材料に求められる電気抵抗率 $1 \times 10^5 \Omega \cdot m$

を超える値と比べると低いといわざるを得ない。

さらに、六方晶フェライトはスピネル型フェライトに比べて誘電率が高いため、インダクタに発生する寄生容量が大きくなってしまい、インダクタが自己共振を起こしやすく、インダクタンスおよびインピーダンスが低くなってしまふなどの問題があった。

(3) 上記(1)に示されるような問題点をある程度解決するに至ったとしても、本出願に係る技術分野においては、さらなる磁気特性等の改善が望まれており、特に高周波帯域におけるさらなる透磁率の向上を図ることが要望される。

高周波帯域における透磁率をさらに向上させることにより、例えば、(i)インダクタンス部品として用いた場合に、より高いインダクタンスを得ることができる、また(ii)ノイズフィルタ部品として用いた場合に、高いインピーダンス特性を得ることができる。

(4) 上記(3)に示されるような問題点に加えて、さらに解決すべき以下の問題点がある。すなわち、従来のいわゆるY型六方晶フェライトの電気抵抗率は、高くてもせいぜい $1 \times 10^5 \Omega \cdot m$ 程度までであり、また高特性を得るためにCuやZnなどで置換したものについては、その電気抵抗率が $1 \times 10^4 \Omega \cdot m$ 程度であり、これらの値は、電子部品材料に求められる電気抵抗率 $1 \times 10^5 \Omega \cdot m$ を超える値と比べると低いといわざるを得ない。

さらに、六方晶フェライトはスピネル型フェライトに比べて誘電率が高いため、インダクタに発生する寄生容量が大きくなってしまい、インダクタが自己共振を起こしやすく、インダクタンスおよびインピーダンスが低くなってしまふなどの問題があった。

#### 発明の開示

このような上記各々の従来技術の問題点を解決するために本発明は創案されたものである。すなわち、上記(1)の従来技術の問題に対応して、本発明の第1グループの発明は創案されたものであって、その目的は、数百MHz~GHzといった高周波帯域まで磁気特性が良好で使用可能であり、かつY型六方晶フェライト以外の異相をできるだけ含まず1000°C以下特に、900°C付近で焼成可

能である磁性酸化物焼結体およびこれを用いた高周波回路部品を提供することにある。このような課題を解決するために、本発明は、Y型六方晶フェライトで80%以上占有されてなる磁性酸化物焼結体であって、該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトを $\text{CoO}$ 換算で3~15モル%、酸化銅を $\text{CuO}$ 換算で5.5~17モル%、酸化鉄を $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 換算で57~61モル%、残部を $\text{AO}$  ( $\text{AO}$ は、 $\text{BaO}$ または $\text{SrO}$ の少なくとも1種)として含み、副成分として酸化ビスマス ( $\text{Bi}_2\text{O}_3$ )を0.5~7wt%含有してなるように構成される。また、本発明は、磁性酸化物焼結体中に導電体が埋設された構造を備える高周波回路部品であって、前記磁性酸化物焼結体は、Y型六方晶フェライトで80%以上占有され、かつ、該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトを $\text{CoO}$ 換算で3~15モル%、酸化銅を $\text{CuO}$ 換算で5.5~17モル%、酸化鉄を $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 換算で57~61モル%、残部を $\text{AO}$  ( $\text{AO}$ は、 $\text{BaO}$ または $\text{SrO}$ の少なくとも1種)として含み、副成分として酸化ビスマス ( $\text{Bi}_2\text{O}_3$ )を0.5~7wt%含有してなるように構成される。

上記(2)の従来技術の問題に対応して、本発明の第2グループの発明は創案されたものであって、その目的は、1000°C以下特に、900°C付近で焼成可能であり、電気抵抗率が高く、誘電率が低い、Y型六方晶フェライトを主成分フェライトとする磁性酸化物焼結体およびこれを用いた高周波回路部品を提供することにある。このような課題を解決するために、本発明は、Y型六方晶フェライトで80%以上占有されてなる磁性酸化物焼結体であって、該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトを $\text{CoO}$ 換算で3~15モル%、酸化銅を $\text{CuO}$ 換算で5~17モル%、酸化鉄を $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 換算で57~61モル%、残部を $\text{AO}$  ( $\text{AO}$ は、 $\text{BaO}$ または $\text{SrO}$ の少なくとも1種)として含み、副成分として硼珪酸ガラス、硼珪酸亜鉛ガラスまたはビスマスガラスを0.6~7wt%含有してなるように構成される。また、本発明は、磁性酸化物焼結体中に導電体が埋設された構造を備える高周波回路部品であって、前記磁性酸化物焼結体は、Y型六方晶フェライトで80%以上占有され、かつ、該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトを $\text{CoO}$ 換算で3~15モル%、酸化銅を $\text{CuO}$ 換算で5~17モル%、酸化鉄を $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 換算で57~61モル%、残部を $\text{AO}$  ( $\text{AO}$ は、 $\text{B}$

aOまたはSrOの少なくとも1種)として含み、副成分として硼珪酸ガラス、硼珪酸亜鉛ガラスまたはビスマスガラスを0.6~7wt%含有してなるように構成される。

上記(3)の従来技術の問題に対応して、本発明の第3グループの発明は創案されたものであって、その目的は、数百MHz~GHzといった高周波帯域まで透磁率特性が極めて良好で、かつY型六方晶フェライト以外の異相をできるだけ含まず1000°C以下特に、900°C付近で焼成可能である磁性酸化物焼結体およびこれを用いた高周波回路部品を提供することにある。このような課題を解決するために、本発明は、Y型六方晶フェライトで80%以上占有されてなる磁性酸化物焼結体であって、該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトをCoO換算で3~15モル%、酸化銅をCuO換算で5~17モル%、酸化鉄をFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>換算で57~61モル%、MOを0~15wt%(MOは、NiO, ZnO, MgOの少なくとも1種であり、MOの含有率0は除く)、残部をAO(AOは、BaOまたはSrOの少なくとも1種)として含み、副成分として酸化ビスマス(Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)を0.5~7wt%含有してなるように構成される。また、本発明は、磁性酸化物焼結体中に導電体が埋設された構造を備える高周波回路部品であって、前記磁性酸化物焼結体は、Y型六方晶フェライトで80%以上占有され、かつ、該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトをCoO換算で3~15モル%、酸化銅をCuO換算で5~17モル%、酸化鉄をFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>換算で57~61モル%、MOを0~15wt%(MOは、NiO, ZnO, MgOの少なくとも1種であり、MOの含有率0は除く)、残部をAO(AOは、BaOまたはSrOの少なくとも1種)として含み、副成分として酸化ビスマス(Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)を0.5~7wt%含有してなるように構成される。

上記(4)の従来技術の問題に対応して、本発明の第4グループの発明は創案されたものであって、その目的は、1000°C以下特に、900°C付近で焼成可能であり、高周波帯域での透磁率特性が良く、電気抵抗率が高く、誘電率が低い、Y型六方晶フェライトを主成分フェライトとする磁性酸化物焼結体およびこれを用いた高周波回路部品を提供することにある。このような課題を解決するために、本発明は、Y型六方晶フェライトで80%以上占有されてなる磁性酸化物焼結体

であって、該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトを $\text{CoO}$ 換算で3～15モル%、酸化銅を $\text{CuO}$ 換算で5～17モル%、酸化鉄を $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 換算で57～61モル%、MOを0～15wt%（MOは、 $\text{NiO}$ 、 $\text{ZnO}$ 、 $\text{MgO}$ の少なくとも1種であり、MOの含有率0は除く）、残部をAO（AOは、 $\text{BaO}$ または $\text{SrO}$ の少なくとも1種）として含み、副成分として硼珪酸ガラス、硼珪酸亜鉛ガラスまたはビスマスガラスを0.6～7wt%含有してなるように構成される。また、本発明は、磁性酸化物焼結体中に導電体が埋設された構造を備える高周波回路部品であって、前記磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトを $\text{CoO}$ 換算で3～15モル%、酸化銅を $\text{CuO}$ 換算で5～17モル%、酸化鉄を $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 換算で57～61モル%、MOを0～15wt%（MOは、 $\text{NiO}$ 、 $\text{ZnO}$ 、 $\text{MgO}$ の少なくとも1種であり、MOの含有率0は除く）、残部をAO（AOは、 $\text{BaO}$ または $\text{SrO}$ の少なくとも1種）として含み、副成分として硼珪酸ガラス、硼珪酸亜鉛ガラスまたはビスマスガラスを0.6～7wt%含有してなるように構成される。

#### 図面の簡単な説明

図1は、実施例で用いたインダクタンス素子（高周波回路部品）の概略図面である。

#### 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の磁性酸化物焼結体について詳細に説明する。

##### (1) 第1の発明グループについての説明

本発明の第1の発明グループにおける磁性酸化物焼結体はセラミック焼結体であるために通常のセラミック作製プロセスで製造することができる。

本発明の第1の発明グループにおける磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトを $\text{CoO}$ 換算で3～15モル%（好ましくは、5～10モル%）、酸化銅を $\text{CuO}$ 換算で5.5～17モル%（好ましくは、10～15モル%）、酸化鉄を $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 換算で57～61モル%（好ましくは、59～60モル%）、残部をAO（AOは、 $\text{BaO}$ または $\text{SrO}$ の少なくとも1種）として含んでいる。AOの形



態は、BaOあるいはSrOの単独形態、またはBaOとSrOの混在形態である。

また、本発明の磁性酸化物焼結体は、副成分として酸化ビスマス $\text{Bi}_2\text{O}_3$ を0.5～7wt%（好ましくは0.6～5wt%）、含有している。

このような酸化ビスマス $\text{Bi}_2\text{O}_3$ は、後述する実施例からもわかるように添加時に当該酸化物の形態で混入され、焼結後も一般に当該酸化物の形態で残存する。

上記主成分の含有割合において、 $\text{CoO}$ が3モル%未満となると、例えば2GHzにおける透磁率が低下する（例えば2.0未満）という不都合が生じる傾向にあり、 $\text{CoO}$ が15モル%を超えると、例えば500MHzにおける透磁率が低下する（例えば2.0未満）という不都合が生じる傾向にある。

また、 $\text{CuO}$ が5.5モル%未満となると、仮焼き温度が1000℃を超えるという不都合が生じる傾向にあり、 $\text{CuO}$ が17モル%を超えると、透磁率が低下する（例えば2.0未満）という不都合が生じる傾向にある。

また、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ が57モル%未満となったり、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ が61モル%を超えたりすると透磁率が低下するという不都合が生じる傾向にある。

上記の副成分の含有割合において、上記 $\text{Bi}_2\text{O}_3$ の含有量が0.5wt%未満となると、1000℃以下の焼成で理論密度の90%以上が得られなくなるという不都合が生じる傾向にあり、上記 $\text{Bi}_2\text{O}_3$ の含有量が7wt%を超えると、透磁率が低下するという不都合が生じる傾向にある。

このような $\text{Bi}_2\text{O}_3$ 副成分の添加は、特に、上記の $\text{CuO}$ 量の含有と相俟って低温焼結を顕著に実現させることができる。磁気特性向上の相乗効果もある。焼成温度が低くなると、安価で電気抵抗の低いAgのような低融点の電極材料を内蔵した形で同時焼成し、電極一体型の閉磁路構成の素子を容易に製造できる。このようにして製造された素子は、例えば、小型でかつ高いQ値を持つインダクタ、あるいは小型で高周波帯の特に特定周波数でのインピーダンスが大きいノイズフィルター等の高周波素子（高周波回路部品）として利用される。

さらに本発明における磁性酸化物焼結体は、その80%以上、特に好ましくは、90%以上がY型六方晶フェライトで形成されている。ここに言う「%」は、エックス線回折強度のメインピーク比から算出したものである。

Y型六方晶フェライトの占有割合が80%未満となると、高周波において高い透磁率を得ることができなくなるという不都合が生じる。これにより、高いインダクタンスやインピーダンスを持つ高周波回路部品を得ることが困難となる。

銀 (Ag) のような低融点電極材料と同時焼成する場合、本焼成温度が低くなるため、焼結後のY型六方晶フェライトを80%以上とするためには、仮焼時にY型六方晶フェライトを80%以上生成しておく必要がある。組成によって異なるが、850°C付近から $BaFe_{12}O_{19}$ および $BaFe_2O_4$ の分解が始まり、Y型六方晶フェライトの生成が始まる。

しかしながら、 $BaFe_{12}O_{19}$ および $BaFe_2O_4$ の分解が十分に進まなければY型六方晶フェライトの生成が進まない。従って、Y型六方晶フェライトを80%以上とするために、仮焼温度を850°C以上、特に、850~1000°Cとする必要がある。さらに、CuO量を5.5~17モル%含有させることが必要となる。仮焼温度が850°C未満となったり、CuO量が上記の範囲を外れると、80%を超えるY型六方晶フェライトの生成が困難となる。また、仮焼き温度が1000°Cを超えて高くなり過ぎると、細かい粉碎粉が得られなくなってしまう。細かい粉碎粉の作製は、低温焼成には極めて重要な技術である。

このような観点から、上述のごとく仮焼温度を850~1000°Cにおいて、Y型六方晶フェライトの生成率を高くするためには、主成分としての前記CuO量を5.5~17モル%含有させることが必要となる。

このような本発明における磁性酸化焼結体は、磁性酸化物焼結体中に導電体が埋設された構造を備える高周波回路部品、例えば、インピーダ、インダクタとして用いられる。

以下、具体的実施例を挙げて本発明をさらに詳細に説明する。

#### [実験例1-1]

(実施例サンプルおよび比較例サンプルの作製)

焼結後の組成が下記表1に示すような組成となるように各原料を秤量し、鋼鉄製ボールミルで15時間湿式混合した。次に、この混合粉を大気中、表1に記載された温度で2時間仮焼きした。次いで、表1に示されるごとく副成分として $Bi_2O_3$ を所定量添加した後、鉄鋼製ボールミルで15時間粉碎した。

このようにして得られた六方晶フェライト粉を造粒して、100MPaの圧力で所望の形状に成形した。

この成形体を大気中、表1に示される焼成温度で2時間焼結した。六方晶フェライト焼結体の組成は下記表1に示すとおりであり、これらの各サンプルについて、密度、並びに25°Cにおける周波数500MHzおよび2GHzの透磁率をそれぞれ測定して表1に示した。透磁率は周波数500MHzおよび2GHzの周波数において、それぞれ2.0以上の値を目標としている。

なお、Y型六方晶フェライトによる占有率は、焼結体の粉碎粉を用いて、X線回折ピークの強度比より算出した。

表 1

サンプル No.	主成分 (mol%)						副成分 (wt%)		仮焼温度 (°C)	焼成温度 (°C)	Y 型の占 有率 (%)	密度 (Mg/m <sup>3</sup> )	透磁率	
	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CoO	CuO	BaO	SrO	Bi <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	500MHz	2GHz						
	実施例 1	60	15	5.5	19.5	-	5	1000					930	95
実施例 2	60	10	10	20	-	5	950	930	95	5.3	2.6	2.6		
実施例 3	60	3	17	20	-	5	950	930	95	5.3	3.0	2.8		
実施例 4	57	15	5.5	22.5	-	5	1000	930	95	5.2	2.0	2.0		
実施例 5	61	14.5	5.5	19	-	5	1000	930	95	5.2	2.0	2.0		
実施例 6	60	5	15	10	10	5	950	930	95	5.3	3.2	3.2		
比較例 1	60	17	3	20	-	5	1100	930	95	5.0	1.8	1.8		
比較例 2	60	2	18	20	-	5	950	930	95	5.3	2.5	1.8		
比較例 3	56	15	5	24	-	5	1000	930	73	5.2	1.9	1.9		
比較例 4	62	15	5	20	-	5	1000	930	77	5.2	1.9	1.9		
実施例 7	60	5	15	20	-	0.5	950	930	100	5.2	3.7	3.7		
比較例 5	60	5	15	20	-	0.1	950	930	100	4.8	3.5	3.5		
実施例 8	60	15	5.5	19.5	-	7	1000	930	90	5.3	2.0	2.0		
比較例 6	60	15	5.5	19.5	-	10	1000	930	85	5.5	1.9	1.9		
実施例 9	60	15	5.5	19.5	-	5	900	930	83	5.0	2.0	2.0		
実施例 10	60	5	15	20	-	5	850	930	90	5.0	3.2	3.2		
比較例 7	60	15	5.5	19.5	-	5	850	930	46	4.7	1.8	1.8		
比較例 8	60	15	5.5	19.5	-	5	800	930	40	4.7	1.5	1.5		
比較例 9	60	15	5	20	-	1	700	930	30	4.5	1.5	1.5		

比較例 5 は Bi 量が少なく、密度が理論密度(5.4Mg/m<sup>3</sup>)の 90%を下回ってしまつたため好ましくない

## [実験例 1-11]

次に、本発明の磁性体を用いてインピーダンス素子を作製した。すなわち、焼結後の組成が上記表 1 の実施例 7 サンプルに示されるような組成となるように各原料を秤量し、鋼鉄製ボールミルで 15 時間湿式混合した。次に、この混合粉を大気中、950°C で 2 時間仮焼きした。次いで、副成分として  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  を 5 wt % 添加した後、鉄鋼製ボールミルで 15 時間粉碎した。

この仮焼き粉末に有機バインダーを混合し、ドクターブレード法により均一なグリーンシートを形成した。

比較のために NiCuZn 系スピネルフェライト粉末 (NiO = 45 モル%、CuO = 5 モル%、ZnO = 1.5 モル%、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  = 48 モル%、CoO = 0.5 モル%) を用いて作製したグリーンシートも準備した。

この一方で、銀を混合してなる導電性ペーストを用意し、先のグリーンシート上にコイルをスパイラル状となるように積層した。厚み方向に圧力を加えて圧着し、磁性体に電極がサンドイッチされたグリーンシート積層体を作製した。これを 930°C で 2 時間焼成した。得られた焼結体の側面の内部導電体の位置に銀ペーストを塗布し、外部電極を焼き付け、図 1 に概略的に示されるインピーダンス素子 (高周波回路部品) とした。なお、図 1 は素子内部構造の理解を容易にするためにモデル図として描かれている。図 1 において、符号 11 はインナーコンダクタ (Ag コイル) であり、符号 10 はターミナルコンダクタであり、符号 20 はフェライトを示している。

このようにして得られたインピーダンス素子のインピーダンスおよび透磁率を周波数 2 GHz で測定したところ、従来の NiCuZn 系スピネルフェライトではインピーダンスが 135 Ω (透磁率は 1.2) であったのに対して、本発明のものではインピーダンスが 208 Ω (透磁率は 3.7) と約 54% 以上改善されていた。

上記の結果より本発明の第 1 の発明グループにおける効果は明らかである。すなわち、本発明は、Y 型六方晶フェライトで 80% 以上占有されてなる磁性酸化物焼結体であって、該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトを CoO 換算で 3 ~ 15 モル%、酸化銅を CuO 換算で 5.5 ~ 17 モル%、酸化鉄を F

$e_2O_3$ 換算で57~61モル%、残部をAO (AOは、BaOまたはSrOの少なくとも1種)として含み、副成分として酸化ビスマス ( $Bi_2O_3$ )を0.5~7wt%を含有してなるように構成されているので、数百MHz~GHzといった高周波帯域まで磁気特性が良好で使用可能であり、かつY型六方晶フェライト以外の異相をできるだけ含まず1000°C以下特に、900°C付近で焼成可能である磁性酸化物焼結体およびこれを用いた高周波回路部品を提供することができる。

## (2) 第2の発明グループについての説明

本発明の第2の発明グループにおける磁性酸化物焼結体はセラミック焼結体であるために通常のセラミック作製プロセスで製造することができる。

本発明の第2の発明グループにおける磁性酸化物焼結体は、主成分として主成分として酸化コバルトをCoO換算で3~15モル% (好ましくは、3~5モル%)、酸化銅をCuO換算で5~17モル% (好ましくは、5.5~10モル%)、酸化鉄を $Fe_2O_3$ 換算で57~61モル% (好ましくは、59~60モル%)、残部をAO (AOは、BaOまたはSrOの少なくとも1種)として含んでいる。AOの形態は、BaOあるいはSrOの単独形態、またはBaOとSrOの混在形態である。

また、本発明の磁性酸化物焼結体は、副成分として硼珪酸ガラス、硼珪酸亜鉛ガラスまたはビスマスガラスを0.6~7wt% (好ましくは0.6~5wt%)、含有している。

硼珪酸ガラスとは、一般に $B_2O_3$ 、 $SiO_2$ を含むガラスを示し、硼珪酸亜鉛ガラスとは、一般に $B_2O_3$ 、 $SiO_2$ 、ZnOを含むガラスを示し、ビスマスガラスとは、一般に $Bi_2O_3$ を含むガラスを示す。これらの各ガラスの定義において上記の各成分が主成分である必要はない。

これらの副成分のガラスの含有形態としては、硼珪酸ガラス、硼珪酸亜鉛ガラスおよびビスマスガラスの中の1種を単独で用いても良いし、また、これらの中の2種または3種を混合して用いてもよい。2種以上を混合して用いる場合には、混合した総計重量%が上記の範囲に入るようにすればよい。

このようなガラスを添加することにより、高電気抵抗率化（電気抵抗率を高くすること）および低誘電率化（誘電率を低くすること）を得ることができる。従って、このような本願所定のガラスの添加により、高周波回路部品としての例えば、積層部品材料に必要な  $1 \times 10^5 \Omega \cdot m$  以上の電気抵抗率が得られる。さらに、本願所定のガラスの添加により、誘電率を低減させる効果も発現し、本発明焼結体を高周波部品として用いた場合、高い周波数において高いインピーダンスを得ることや、インピーダンスの広帯域化に効果がある。

なお、これらのガラス添加は添加時における状態がガラスであることが必要である。焼成後、用いたガラス成分は、ガラス状態の有無を問わず焼成体の中に存在する。

これらのガラスの中では、特に、硼珪酸亜鉛ガラスや硼珪酸ガラスが高電気抵抗率、低誘電率をより効果的に実現させるために好ましい。また、同じガラス添加量で比較した場合、90%以上の相対密度が得られる温度を下げるができるという観点からは、特に、ビスマスガラスが好ましい。

上記主成分の含有割合において、 $CaO$ が3モル%未満となると、例えば2GHzにおける透磁率が低下する（例えば2.0未満）という不都合が生じる傾向にあり、 $CaO$ が15モル%を超えると、例えば500MHzにおける透磁率が低下する（例えば2.0未満）という不都合が生じる傾向にある。

また、 $CuO$ が5モル%未満となると、仮焼き温度が1000°Cを超えるという不都合が生じる傾向にあり、 $CuO$ が17モル%を超えると、透磁率が低下する（例えば2.0以下）という不都合が生じる傾向にある。

また、 $Fe_2O_3$ が57モル%未満となったり、 $Fe_2O_3$ が61モル%を超えたりすると透磁率が低下するという不都合が生じる傾向にある。

上記の副成分の含有割合において、上記所定のガラスの含有量が0.6wt%未満となると、1000°C以下の焼成で理論密度の90%以上が得られなくなるという不都合が生じる傾向にあり、上記ガラスの含有量が7wt%を超えると、透磁率が低下するという不都合が生じる傾向にある。

このようなガラス副成分の添加は、特に、上記の $CuO$ 量の含有と相俟って低温焼結を顕著に実現させることができる。焼成温度が低くなると、安価で電気抵

抗の低いA<sub>g</sub>のような低融点の電極材料を内蔵した形で同時焼成し、電極一体型の閉磁路構成の素子を容易に製造できる。このようにして製造された素子は、例えば、小型でかつ高いQ値を持つインダクタ、あるいは小型で高周波帯の特に特定周波数でのインピーダンスが大きいノイズフィルター等の高周波素子（高周波回路部品）として利用される。

さらに本発明における磁性酸化物焼結体は、その80%以上、特に好ましくは、90%以上がY型六方晶フェライトで形成されている。ここに言う「%」は、エックス線回折強度のメインピーク比から算出したものである。

銀（A<sub>g</sub>）のような低融点電極材料と同時焼成する場合、本焼成温度が低くなるため、焼結後のY型六方晶フェライトを80%以上とするためには、仮焼時にY型六方晶フェライトを80%以上生成しておく必要がある。組成によって異なるが、850℃付近からBaFe<sub>12</sub>O<sub>19</sub>およびBaFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>の分解が始まり、Y型六方晶フェライトの生成が始まる。しかしながら、BaFe<sub>12</sub>O<sub>19</sub>およびBaFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>の分解が十分に進まなければY型六方晶フェライトの生成が進まない。従って、Y型六方晶フェライトを80%以上とするために、仮焼温度を850℃以上、特に、850℃～1000℃とする必要がある。さらに、CuO量を好ましくは5.5～17モル%含有させる必要がある。仮焼温度が850℃未満となったり、CuO量が所定量存在しないと、80%を超えるY型六方晶フェライトの生成が困難となる。また仮焼温度が1000℃を超えて高くなりすぎると、細かい粉碎粉が得られない。細かい粉碎粉の作製は、低温焼成には極めて重要な技術である。

このような観点から、上述のごとく仮焼温度を850～1000℃において、Y型六方晶フェライトの生成率を高くするためには、主成分としての前記CuO量を好ましくは5.5～17モル%含有させることが必要となる。

このような本発明における磁性酸化焼結体は、磁性酸化物焼結体中に導電体が埋設された構造を備える高周波回路部品、例えば、例えば、インピーダ、インダクタとして用いられる。

以下、具体的実施例を挙げて本発明をさらに詳細に説明する。

#### [実験例2-1]

(実施例および比較例サンプルの作製)



焼結後の組成が下記表 2 に示すような組成となるように各原料を秤量し、鋼鉄製ボールミルで 15 時間湿式混合した。次に、この混合粉を大気中、表 2 に記載された温度で 2 時間仮焼きした。次いで、表 2 に示されるごとく所定のガラスを所定量添加した後、鉄鋼製ボールミルで 15 時間粉碎した。

このようにして得られた六方晶フェライト粉を造粒して、100MPa の圧力で所望の形状に成形した。

この成形体を大気中、表 2 に示される温度で 2 時間焼結した。六方晶フェライト焼結体の組成は下記表 2 に示すとおりであり、これらの各サンプルについて、25°C における周波数 500MHz および 2GHz の透磁率、並びに電気抵抗率、誘電率、をそれぞれ測定して表 2 に示した。透磁率は周波数 500MHz および 2GHz の周波数において、2.0 以上の値を目標としている。また、電気抵抗率は  $1 \times 10^5 \Omega \cdot m$  の値を目標としている。誘電率は低ければ低いほど良い。ちなみに、後述の実験結果より、電気抵抗率が  $1 \times 10^5 \Omega \cdot m$  の値を超えていれば誘電率は 30 以下の低い値を示している。

なお、Y 型六方晶フェライトによる占有率は、焼結体の粉碎粉を用いて、X 線回折ピークの強度比より算出した。

表 2

サンプル No.	主成分 (mol%)				添加成分 (wt%)			焼成温度 (°C)	Y 型の 占有率 (%)	透磁率		電気 抵抗率 ( $\Omega \cdot m$ )	誘電率	
	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CoO	CuO	BaO	SrO	ビスマス ガラス	硼珪酸 ガラス			硼珪酸 亜鉛 ガラス	500MHz			2GHz
実施例 2-1-1	60	15	5.5	19.5	-	5	-	-	930	95	2.1	2.1	1 × 10 <sup>6</sup>	27
実施例 2-1-2	60	10	10	20	-	5	-	-	930	95	2.6	2.6	1 × 10 <sup>6</sup>	27
実施例 2-1-3	60	3	17	20	-	5	-	-	930	95	3.0	2.8	9 × 10 <sup>5</sup>	30
実施例 2-1-4	57	15	5.5	22.5	-	5	-	-	930	95	2.0	2.0	1 × 10 <sup>6</sup>	27
実施例 2-1-5	61	15	5.5	18.5	-	5	-	-	930	95	2.0	2.0	1 × 10 <sup>6</sup>	27
実施例 2-1-6	60	5	15	10	10	5	-	-	930	95	3.2	3.2	1 × 10 <sup>6</sup>	27
比較例 2-1-1	60	20	0	20	-	5	-	-	930	95	1.8	1.8	1 × 10 <sup>6</sup>	27
比較例 2-1-2	60	2	18	20	-	5	-	-	930	95	2.5	1.8	9 × 10 <sup>5</sup>	30
比較例 2-1-3	56	15	5	20	-	5	-	-	930	73	1.9	1.9	1 × 10 <sup>6</sup>	27
比較例 2-1-4	62	15	5	20	-	5	-	-	930	77	1.9	1.9	1 × 10 <sup>6</sup>	27
実施例 2-1-7	60	15	5.5	19.5	-	5	-	-	930	95	2.1	2.1	1 × 10 <sup>6</sup>	27
実施例 2-1-8	60	15	5.5	19.5	-	5	-	-	930	83	2.0	2.0	1 × 10 <sup>6</sup>	27
比較例 2-1-5	60	15	5	20	-	5	-	-	930	46	1.8	1.8	1 × 10 <sup>6</sup>	27
比較例 2-1-6	60	15	5	20	-	5	-	-	930	0	1.5	1.5	1 × 10 <sup>6</sup>	27
比較例 2-1-7	60	5	15	20	-	0.3	-	-	930	100	3.5	3.5	5 × 10 <sup>4</sup>	35
実施例 2-1-9	60	5	15	20	-	0.6	-	-	930	100	3.7	3.7	1 × 10 <sup>5</sup>	30
実施例 2-1-10	60	5	15	20	-	7	-	-	930	95	2.0	2.0	2 × 10 <sup>6</sup>	27
比較例 2-1-8	60	5	15	20	-	10	-	-	930	95	1.9	1.9	3 × 10 <sup>6</sup>	27

表 2 (続き)

サンプル No.	主成分 (mol%)					添加成分 (wt%)				仮焼温度 (°C)	焼成温度 (°C)	Y 型の 占有率 (%)	透磁率		電気 抵抗率 ( $\Omega \cdot m$ )	誘電率
	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CoO	CuO	BaO	SrO	ビスマス ガラス	硼珪酸 ガラス	硼珪酸 亜鉛 ガラス	500MHz				2GHz			
比較例 2-1-9	60	5	15	20	-	-	0.3	-	-	950	930	100	3.3	3.3	$8 \times 10^4$	32
実施例 2-1-11	60	5	15	20	-	-	0.6	-	-	950	930	100	3.5	3.5	$1 \times 10^5$	29
実施例 2-1-12	60	5	15	20	-	-	5	-	-	950	930	95	3.1	3.1	$3 \times 10^6$	25
実施例 2-1-13	60	5	15	20	-	-	7	-	-	950	930	95	2.1	2.1	$9 \times 10^6$	25
比較例 2-1-10	60	5	15	20	-	-	10	-	-	950	930	95	2.0	1.9	$2 \times 10^7$	25
比較例 2-1-11	60	5	15	20	-	-	-	-	0.3	950	930	100	3.5	3.5	$8 \times 10^4$	31
実施例 2-1-14	60	5	15	20	-	-	-	-	0.6	950	930	100	3.7	3.7	$2 \times 10^5$	28
実施例 2-1-15	60	5	15	20	-	-	-	-	5	950	930	95	3.3	3.3	$6 \times 10^6$	25
実施例 2-1-16	60	5	15	20	-	-	-	-	7	950	930	95	2.2	2.2	$3 \times 10^7$	25
比較例 2-1-12	60	5	15	20	-	-	-	-	10	950	930	95	1.9	1.9	$5 \times 10^7$	25
実施例 2-1-17	60	5	15	20	-	-	-	5	-	850	930	90	3.5	3.1	$9 \times 10^5$	30
実施例 2-1-18	60	5	15	20	-	-	-	5	-	950	930	95	3.3	3.3	$1 \times 10^6$	27

なお、実施例 2-1-17 における仮焼きは、850°C、10 時間で行った

## [実験例 2-11]

上記実験例 2-1 における実施例 2-1-6 サンプルの主成分において、添加成分の種類および添加量を下記表 3 に示すとおり変えて種々のサンプルを作製した。これらのサンプルについて、90%以上の相対密度（理論密度 100 に対して）が得られる温度を測定した。

結果を下記表 3 に示した。

表 3

副成分	ガラスの添加量				
	0.6wt%	1wt%	3wt%	5wt%	7wt%
硼珪酸ガラス	1000°C	1000°C	950°C	950°C	900°C
硼珪酸亜鉛ガラス	1000°C	1000°C	950°C	950°C	900°C
ビスマスガラス	1000°C	950°C	900°C	900°C	900°C

## [実験例 2-111]

次に、本発明の磁性体を用いてインダクタンス素子を作製した。すなわち、焼結後の組成が上記表 2 の実施例 2-1-6 サンプルの主成分に示されるような組成となるように各原料を秤量し、鋼鉄製ボールミルで 15 時間湿式混合した。次に、この混合粉を大気中、950°C で 2 時間仮焼きした。次いで、副成分としてビスマスガラスを 5 wt % 添加した後、鉄鋼製ボールミルで 15 時間粉碎した。

この仮焼き粉末に有機バインダーを混合し、ドクターブレード法により均一なグリーンシートを形成した。

比較のために NiZn 系スピネルフェライト粉末（NiO=45 モル%、CuO=5 モル%、ZnO=1.5 モル%、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>=48 モル%、CoO=0.5 モル%）を用いて作製したグリーンシートも準備した。

この一方で、銀を混合してなる導電性ペーストを用意し、先のグリーンシート上にコイルをスパイラル状となるように積層した。厚み方向に圧力を加えて圧着し、磁性体に電極がサンドイッチされたグリーンシート積層体を作製した。これを 930°C で 2 時間焼成した。得られた焼結体の側面の内部導電体の位置に銀ペーストを塗布し、外部電極を焼き付け、図 1 に概略的に示されるインピーダンス

素子（高周波回路部品）とした。なお、図1は素子内部構造の理解を容易にするためにモデル図として描かれている。図1において、符号11はインナーコンダクタ（Agコイル）であり、符号10はターミナルコンダクタであり、符号20はフェライトを示している。

得られたインダクタンス素子のインピーダンスおよび透磁率を2GHzで測定したところ、本発明のものではインピーダンスが208Ω（透磁率は3.7）が得られた。ちなみに、NiCuZnフェライトのインピーダンスは135Ω（透磁率1.2）であった。

上記の結果より本発明の第2の発明グループにおける効果は明らかである。すなわち、本発明は、Y型六方晶フェライトで80%以上占有されてなる磁性酸化物焼結体であって、該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトをCoO換算で3～15モル%、酸化銅をCuO換算で5～17モル%、酸化鉄をFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>換算で57～61モル%、残部をAO（AOは、BaOまたはSrOの少なくとも1種）として含み、副成分として硼珪酸ガラス、硼珪酸亜鉛ガラスまたはビスマスガラスを0.6～7wt%含有してなるように構成されているので、1000℃以下特に、900℃付近で焼成可能であり、電気抵抗率が高く、誘電率が低い、Y型六方晶フェライトを主成分フェライトとする磁性酸化物焼結体およびこれを用いた高周波回路部品を提供することができる。

### (3) 第3の発明グループについての説明

本発明の第3の発明グループにおける磁性酸化物焼結体はセラミック焼結体であるために通常のセラミック作製プロセスで製造することができる。

本発明の第3の発明グループにおける磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトをCoO換算で3～15モル%（好ましくは、3～5モル%）、酸化銅をCuO換算で5～17モル%（好ましくは、5.5～10モル%）、酸化鉄をFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>換算で57～61モル%（好ましくは、59～60モル%）、MOを0～15wt%、好ましくは1～15wt%、特に好ましくは5～15wt%（MOは、NiO、ZnO、MgOの少なくとも1種であり、MOの含有率0は除く）、残部をAO（AOは、BaOまたはSrOの少なくとも1種）として含んでいる。M

Oの形態は、NiO、ZnO、あるいはMgOの単独形態、または少なくとも2種以上の混在形態である。2種以上を混合して用いる場合には、混合した総計モル%が上記の範囲に入るようにすればよい。AOの形態は、BaOあるいはSrOの単独形態、またはBaOとSrOの混在形態である。

また、本発明の磁性酸化物焼結体は、副成分として酸化ビスマス $\text{Bi}_2\text{O}_3$ を0.5~7wt%（好ましくは0.6~5wt%）、含有している。

このような酸化ビスマス $\text{Bi}_2\text{O}_3$ は、後述する実施例からもわかるように添加時に当該酸化物の形態で混入され、焼結後も一般に当該酸化物の形態で残存する。

上記主成分の含有割合において、CoOが3モル%未満となると、例えば2GHzにおける透磁率が低下する（例えば2.0未満）という不都合が生じる傾向にあり、CoOが15モル%を超えると、例えば500MHzにおける透磁率が低下する（例えば2.0未満）という不都合が生じる傾向にある。

また、CuOが5モル%未満となると、仮焼き温度が1000°Cを超えるという不都合が生じる傾向にあり、CuOが17モル%を超えると、透磁率が低下する（例えば2.0未満）という不都合が生じる傾向にある。

また、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ が57モル%未満となったり、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ が61モル%を超えたりすると透磁率が低下するという不都合が生じる傾向にある。

上記の副成分の含有割合において、上記 $\text{Bi}_2\text{O}_3$ の含有量が0.5wt%未満となると、1000°C以下の焼成で理論密度の90%以上が得られなくなるという不都合が生じる傾向にあり、上記 $\text{Bi}_2\text{O}_3$ の含有量が7wt%を超えると、透磁率が低下するという不都合が生じる傾向にある。このような $\text{Bi}_2\text{O}_3$ 副成分の添加は、特に、上記のCuO量の含有と相俟って低温焼結を顕著に実現させることができる。磁気特性向上の相乗効果もある。焼成温度が低くなると、安価で電気抵抗の低いAgのような低融点の電極材料を内蔵した形で同時焼成し、電極一体型の閉磁路構成の素子を容易に製造できる。

このようにして製造された素子は、例えば、小型でかつ高いQ値を持つインダクタ、あるいは小型で高周波帯の特に特定周波数でのインピーダンスが大きいノイズフィルター等の高周波素子（高周波回路部品）として利用される。

MOとしてZnOを用いて、このものを0~15wt%（含有率0は除く）含

有させた場合には、透磁率を各段と向上させることができ、高周波回路部品を作製したときの高インピーダンス化（高いインピーダンスを得ること）およびインピーダンスの広帯域化に特に好ましい効果を発揮する。また、MOとしてNiOやMgOを用いて、0～15wt%（含有率0は除く）含有させた場合には、透磁率を向上させることはもとより、共鳴周波数を高くする効果がある。従って、高周波回路部品として、高いインピーダンスとインピーダンスの帯域を制御するのに特に好ましい効果を発揮する。

さらに本発明における磁性酸化物焼結体は、その80%以上、特に好ましくは、90%以上がY型六方晶フェライトで形成されている。ここに言う「%」は、エックス線回折強度のメインピーク比から算出したものである。

Y型六方晶フェライトの占有割合が80%未満となると、高周波において高い透磁率を得ることができなくなるという不都合が生じる。これにより、高いインダクタンスやインピーダンスを持つ高周波回路部品を得ることが困難となる。

銀（Ag）のような低融点電極材料と同時焼成する場合、本焼成温度が低くなるため、焼結後のY型六方晶フェライトを80%以上とするためには、仮焼時にY型六方晶フェライトを80%以上生成しておく必要がある。組成によって異なるが、850℃付近からBaFe<sub>12</sub>O<sub>19</sub>およびBaFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>の分解が始まり、Y型六方晶フェライトの生成が始まる。

しかしながら、BaFe<sub>12</sub>O<sub>19</sub>およびBaFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>の分解が十分に進まなければY型六方晶フェライトの生成が進まない。従って、Y型六方晶フェライトを80%以上とするために、仮焼温度を850℃以上、特に、850～1000℃とする必要がある。さらに、CuO量を、好ましくは5.5～17モル%含有させることが必要となる。仮焼温度が850℃未満となったり、CuO量が上記の範囲を外れると、80%を超えるY型六方晶フェライトの生成が困難となる。また、仮焼き温度が1000℃を超えて高くなり過ぎると、細かい粉碎粉が得られなくなってしまう。細かい粉碎粉の作製は、低温焼成には極めて重要な技術である。

このような観点から、上述のごとく仮焼温度を850～1000℃において、Y型六方晶フェライトの生成率を高くするためには、主成分としての前記CuO量を、好ましくは5.5～17モル%含有させることが必要となる。

このような本発明における磁性酸化焼結体は、磁性酸化物焼結体中に導電体が埋設された構造を備える高周波回路部品、例えば、インピーダ、インダクタとして用いられる。

以下、具体的実施例を挙げて本発明をさらに詳細に説明する。

[実験例 3 - I]

(実施例サンプルおよび比較例サンプルの作製)

焼結後の組成が下記表 4 に示されるような組成となるように各原料を秤量し、鋼鉄製ボールミルで 15 時間湿式混合した。次に、この混合粉を大気中、表 4 に記載された温度で 2 時間仮焼きした。次いで、表 4 に示されるごとく副成分として  $Bi_2O_3$  を所定量添加した後、鉄鋼製ボールミルで 15 時間粉碎した。

このようにして得られた六方晶フェライト粉を造粒して、100MPa の圧力で所望の形状に成形した。

この成形体を大気中、表 4 に示される温度で 2 時間焼結した。六方晶フェライト焼結体の組成は下記表 4 に示すとおりであり、これらの各サンプルについて、25°C における周波数 500MHz および 2GHz の透磁率をそれぞれ測定して表 4 に示した。透磁率は周波数 500MHz の周波数において 2.5 以上、および 2GHz の周波数において、2.0 以上の値を目標としている。

なお、Y 型六方晶フェライトによる占有率は、焼結体の粉碎粉を用いて、X 線回折ピークの強度比より算出した。



表 4

サンプル No.	主成分 (mol%)										副成分 (wt%)		仮焼温度 (°C)	焼成温度 (°C)	Y型の 占有率 (%)	密度 (Mg/m <sup>3</sup> )	透磁率	
	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CoO	CuO	ZnO	NiO	MgO	BaO	SrO	Bi <sub>2</sub> O <sub>3</sub>			500MHz					2GHz	
	実施例 3-1	60	10	5.5	5	-	-	19.5	-	5	1000	930					95	5.2
実施例 3-2	60	5	10	5	-	-	20	-	5	950	930	95	5.3	3.8	3.8			
実施例 3-3	60	3	17	5	-	-	15	-	5	950	930	95	5.3	4.3	3.9			
実施例 3-4	57	10	5.5	5	-	-	22.5	-	5	1000	930	95	5.1	3.0	3.0			
実施例 3-5	61	9.5	5.5	5	-	-	19	-	5	1000	930	95	5.3	3.0	3.0			
実施例 3-6	60	5	15	5	-	-	10	10	5	950	930	95	5.1	3.9	3.9			
比較例 3-1	60	17	3	5	-	-	15	-	5	1100	930	95	5.0	1.8	1.8			
比較例 3-2	60	2	13	5	-	-	20	-	5	950	930	95	5.2	2.5	1.8			
比較例 3-3	56	10	5	5	-	-	24	-	5	1000	930	73	5.0	2.6	1.8			
比較例 3-4	62	10	5	5	-	-	18	-	5	1000	930	77	5.1	2.4	2.3			
実施例 3-7	60	10	5.5	5	-	-	19.5	-	5	1000	930	95	5.2	3.4	3.7			
実施例 3-8	60	10	5.5	5	-	-	19.5	-	5	900	930	83	5.0	3.3	3.5			
比較例 3-5	60	10	5	5	-	-	20	-	5	850	930	46	4.7	2.8	2.8			
比較例 3-6	60	10	5	5	-	-	20	-	5	800	930	0	4.7	1.8	1.8			
比較例 3-7	60	15	5	-	-	-	20	-	1	700	930	30	4.5	1.5	1.5			
実施例 3-9	60	3	15	2	-	-	20	-	0.5	950	930	100	5.0	3.8	3.8			
比較例 3-8	60	3	15	2	-	-	20	-	0.3	950	930	100	4.8	3.6	3.6			
実施例 3-10	60	10	5.5	5	-	-	19.5	-	7	1000	930	90	5.3	3.5	3.7			
比較例 3-9	60	10	5	5	-	-	20	-	10	1000	930	85	5.5	3.0	1.9			

比較例 3-5、および 3-8 は、密度が理論密度 (5.4Mg/m<sup>3</sup>) の 90% を下回ってしまつたため好ましくない

表 4 (続き)

サンプル No.	主成分 (mol%)										副成分 (wt%)		焼成温度 (°C)	Y型の 占有率 (%)	密度 (Mg/m <sup>3</sup> )	透磁率	
	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CoO	CuO	ZnO	NiO	MgO	BaO	SrO	Bi <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	500MHz	2GHz						
実施例 3-11	60	5	5.5	10	-	-	19.5	-	5	-	1000	930	95	5.2	5.1	4.2	
実施例 3-12	60	3	5.5	15	-	-	16.5	-	5	-	1000	930	95	5.2	10.1	2.2	
実施例 3-13	60	10	5.5	-	5	-	19.5	-	5	-	1000	930	95	5.2	2.7	2.3	
実施例 3-14	60	5	5.5	-	10	-	19.5	-	5	-	1000	930	95	5.2	3.3	2.6	
実施例 3-15	60	3	5.5	-	15	-	16.5	-	5	-	1000	930	95	5.2	5.8	2.0	
実施例 3-16	60	10	5.5	-	-	5	19.5	10	5	-	1000	930	95	5.2	2.6	2.2	
実施例 3-17	60	5	5.5	-	-	10	19.5	-	5	-	1000	930	95	5.2	3.2	2.5	
実施例 3-18	60	3	5.5	-	-	15	16.5	-	5	-	1000	930	95	5.2	6.2	2.0	
比較例 3-10	60	15	5	-	-	-	-	-	5	-	1000	930	95	5.2	2.1	2.1	
比較例 3-11	60	3	5	20	-	-	12	-	5	-	1000	930	95	5.0	8.1	0.8	
比較例 3-12	60	3	5	-	20	-	12	-	5	-	1000	930	95	5.0	5.8	0.8	
比較例 3-13	60	3	5	-	-	20	12	-	5	-	1000	930	95	5.0	6.2	0.6	
実施例 3-19	57	15	5.5	8	-	-	14.5	-	5	-	1000	930	95	5.0	3.0	3.0	
実施例 3-20	60	5	10	5	-	-	20	-	5	-	850	930	90	5.0	3.5	3.5	

実施例 3-20 の仮焼時間は 10 時間とした

## [実験例 3-11]

次に、本発明の磁性体を用いてインダクタンス素子を作製した。すなわち、焼結後の組成が上記表 4 の実施例 3-11 サンプルに示されるような組成となるように各原料を秤量し、鋼鉄製ボールミルで 15 時間湿式混合した。次に、この混合粉を大気中、950°C で 2 時間仮焼きした。次いで、副成分として  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  を 5 wt % 添加した後、鉄鋼製ボールミルで 15 時間粉碎した。

この仮焼き粉末に有機バインダーを混合し、ドクターブレード法により均一なグリーンシートを形成した。

比較のために NiCuZn 系スピネルフェライト粉末 (NiO = 45 モル%、CuO = 5 モル%、ZnO = 1.5 モル%、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  = 48 モル%、CoO = 0.5 モル%) を用いて作製したグリーンシートも準備した。

この一方で、銀を混合してなる導電性ペーストを用意し、先のグリーンシート上にコイルをスパイラル状となるように積層した。厚み方向に圧力を加えて圧着し、磁性体に電極がサンドイッチされたグリーンシート積層体を作製した。これを 930°C で 2 時間焼成した。得られた焼結体の側面の内部導電体の位置に銀ペーストを塗布し、外部電極を焼き付け、図 1 に概略的に示されるインピーダンス素子 (高周波回路部品) とした。なお、図 1 は素子内部構造の理解を容易にするためにモデル図として描かれている。図 1 において、符号 11 はインナーコンダクタ (Ag コイル) であり、符号 10 はターミナルコンダクタであり、符号 20 はフェライトを示している。

得られたインピーダンス素子のインピーダンスおよび透磁率を 2 GHz で測定したところ、本発明のものではインピーダンスが 236  $\Omega$  (透磁率は 4.2) という極めて優れた特性が得られた。これに対して従来の NiCuZn フェライトのインピーダンスは 135  $\Omega$  (透磁率 1.2) であった。

上記の結果より本発明の第 3 の発明グループにおける効果は明らかである。すなわち、本発明は、Y 型六方晶フェライトで 80% 以上占有されてなる磁性酸化物焼結体であって、該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトを CoO 換算で 3 ~ 15 モル%、酸化銅を CuO 換算で 5 ~ 17 モル%、酸化鉄を  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  換算で 57 ~ 61 モル%、MO を 0 ~ 15 wt % (MO は、NiO, ZnO,

MgOの少なくとも1種であり、MOの含有率0は除く)、残部をAO(AOは、BaOまたはSrOの少なくとも1種)として含み、副成分として酸化ビスマス( $Bi_2O_3$ )を0.5~7wt%を含有してなるように構成されているので、数百MHz~GHzといった高周波帯域まで極めて磁気特性が良好であり、かつY型六方晶フェライト以外の異相をできるだけ含まず1000°C以下特に、900°C付近で焼成可能である磁性酸化物焼結体およびこれを用いた高周波回路部品を提供することができる。

#### (4) 第4の発明グループについての説明

本発明の第4の発明グループにおける磁性酸化物焼結体はセラミック焼結体であるために通常のセラミック作製プロセスで製造することができる。

本発明の第4の発明グループにおける磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトをCoO換算で3~15モル%(好ましくは、3~5モル%)、酸化銅をCuO換算で5~17モル%(好ましくは、5.5~10モル%)、酸化鉄を $Fe_2O_3$ 換算で57~61モル%(好ましくは、59~60モル%)、MOを0~15wt%、好ましくは1~15wt%、特に好ましくは5~15wt%(MOは、NiO, ZnO, MgOの少なくとも1種であり、MOの含有率0は除く)、残部をAO(AOは、BaOまたはSrOの少なくとも1種)として含んでいる。

MOの形態は、NiO, ZnO, あるいはMgOの単独形態、または少なくとも2種以上の混在形態である。2種以上を混合して用いる場合には、混合した総計モル%が上記の範囲に入るようにすればよい。

AOの形態は、BaOあるいはSrOの単独形態、またはBaOとSrOの混在形態である。

また、本発明の磁性酸化物焼結体は、副成分として硼珪酸ガラス、硼珪酸亜鉛ガラスまたはビスマスガラスを0.6~7wt%(好ましくは0.6~5wt%)、含有している。

硼珪酸ガラスとは、一般に $B_2O_3$ 、 $SiO_2$ を含むガラスを示し、硼珪酸亜鉛ガラスとは、一般に $B_2O_3$ 、 $SiO_2$ 、ZnOを含むガラスを示し、ビスマスガラスとは、一般に $Bi_2O_3$ を含むガラスを示す。これらの各ガラスの定義において上

記の各成分が主成分である必要はない。

これらの副成分のガラスの含有形態としては、硼珪酸ガラス、硼珪酸亜鉛ガラスおよびビスマスガラスの中の1種を単独で用いても良いし、また、これらの中の2種または3種を混合して用いてもよい。2種以上を混合して用いる場合には、混合した総計重量%が上記の範囲に入るようにすればよい。このようなガラスを添加することにより、高電気抵抗率化（電気抵抗率を高くすること）および低誘電率化（誘電率を低くすること）を得ることができる。従って、このような本願所定のガラスの添加により、高周波回路部品としての例えば、積層部品材料に必要な  $1 \times 10^5 \Omega \cdot m$  以上の電気抵抗率が得られる。

さらに、本願所定のガラスの添加により、誘電率を低減させる効果も発現し、本発明焼結体を高周波部品として用いた場合、高い周波数において高いインピーダンスを得ることや、インピーダンスの広帯域化に効果がある。なお、これらのガラス添加は添加時における状態がガラスであることが必要である。焼成後、用いたガラス成分は、ガラス状態の有無を問わず焼成体の中に存在する。

これらのガラスの中では、特に、硼珪酸亜鉛ガラスや硼珪酸ガラスが高抵抗率、低誘電率をより効果的に実現させるために好ましい。また、同じガラス添加量で比較した場合、90%以上の相対密度が得られる温度を下げることもできるという観点からは、特に、ビスマスガラスが好ましい。

上記主成分の含有割合において、 $CaO$ が3モル%未満となると、例えば2GHzにおける透磁率が低下する（例えば2.0未満）という不都合が生じる傾向にあり、 $CaO$ が15モル%を超えると、透磁率が低下する（例えば500MHzにおける透磁率が2.5未満になったり、2GHzにおける透磁率が2.0未満になったりする）という不都合が生じる傾向にある。

また、 $CuO$ が5モル%未満となると、仮焼き温度が1000°Cを超えるという不都合が生じる傾向にあり、 $CuO$ が17モル%を超えると、2GHzにおける透磁率が低下するという不都合が生じる傾向にある。

また、 $Fe_2O_3$ が57モル%未満となったり、 $Fe_2O_3$ が61モル%を超えたりすると透磁率が低下するという不都合が生じる傾向にある。

上記の副成分の含有割合において、上記所定のガラスの含有量が0.6wt%

未満となると、 $1000^{\circ}\text{C}$ 以下の焼成で理論密度の90%以上が得られなくなるという不都合が生じる傾向にあり、上記ガラスの含有量が7wt%を超えると、透磁率が低下するという不都合が生じる傾向にある。

このようなガラス副成分の添加は、特に、上記のCuO量の含有と相俟って低温焼結を顕著に実現させることができる。焼成温度が低くなると、安価で電気抵抗の低いAgのような低融点の電極材料を内蔵した形で同時焼成し、電極一体型の閉磁路構成の素子を容易に製造できる。このようにして製造された素子は、例えば、小型でかつ高いQ値を持つインダクタ、あるいは小型で高周波帯の特に特定周波数でのインピーダンスが大きいノイズフィルター等の高周波素子（高周波回路部品）として利用される。

MOとしてZnOを用いて、このものを0~15wt%（含有率0は除く）含有させた場合には、透磁率を各段と向上させることができ、高周波回路部品を製作したときの高インピーダンス化（高いインピーダンスを得ること）およびインピーダンスの広帯域化に特に好ましい効果を発揮する。また、MOとしてNiOやMgOを用いて、0~15wt%（含有率0は除く）含有させた場合には、透磁率を向上させることはもとより、共鳴周波数を高くする効果がある。従って、高周波回路部品として、高いインピーダンスとインピーダンスの帯域を制御するのに特に好ましい効果を発揮する。

さらに本発明における磁性酸化物焼結体は、その80%以上、特に好ましくは、90%以上がY型六方晶フェライトで形成されている。ここに言う「%」は、エックス線回折強度のメインピーク比から算出したものである。

銀（Ag）のような低融点電極材料と同時焼成する場合、本焼成温度が低くなるため、焼結後のY型六方晶フェライトを80%以上とするためには、仮焼時にY型六方晶フェライトを80%以上生成しておく必要がある。組成によって異なるが、 $850^{\circ}\text{C}$ 付近から $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ および $\text{BaFe}_2\text{O}_4$ の分解が始まり、Y型六方晶フェライトの生成が始まる。しかしながら、 $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ および $\text{BaFe}_2\text{O}_4$ の分解が十分に進まなければY型六方晶フェライトの生成が進まない。従って、Y型六方晶フェライトを80%以上とするために、仮焼温度を $850^{\circ}\text{C}$ 以上、特に、 $850^{\circ}\text{C}$ ~ $1000^{\circ}\text{C}$ とする必要がある。さらに、CuO量を好ましくは

5.5～17モル%含有させる必要がある。仮焼温度が850℃未満となったり、CuO量が所定量存在しないと、80%を超えるY型六方晶フェライトの生成が困難となる。また仮焼温度が1000℃を超えて高くなりすぎると、細かい粉碎粉が得られない。細かい粉碎粉の作製は、低温焼成には極めて重要な技術である。

このような観点から、上述のごとく仮焼温度を850～1000℃において、Y型六方晶フェライトの生成率を高くするためには、主成分としての前記CuO量を好ましくは5.5～17モル%含有させることが必要となる。

このような本発明における磁性酸化焼結体は、磁性酸化物焼結体中に導電体が埋設された構造を備える高周波回路部品、例えば、例えば、インピーダ、インダクタとして用いられる。

以下、具体的実施例を挙げて本発明をさらに詳細に説明する。

#### [実験例4-1]

(実施例および比較例サンプルの作製)

焼結後の組成が下記表5に示すような組成となるように各原料を秤量し、鋼鉄製ボールミルで15時間湿式混合した。次に、この混合粉を大気中、表5に記載された温度で2時間仮焼きした。次いで、表5に示されるごとく所定のガラスを所定量添加した後、鉄鋼製ボールミルで15時間粉碎した。

このようにして得られた六方晶フェライト粉を造粒して、100MPaの圧力で所望の形状に成形した。

この成形体を大気中、表5に示される温度で2時間焼結した。六方晶フェライト焼結体の組成は下記表5に示すとおりであり、これらの各サンプルについて、25℃における周波数500MHzおよび2GHzの透磁率、並びに電気抵抗率、誘電率をそれぞれ測定して表6に示した。

透磁率は周波数500MHzの周波数において2.5以上の値を、また2GHzの周波数において2.0以上の値をそれぞれ目標としている。また、電気抵抗率は $1 \times 10^5 \Omega \cdot m$ の値を目標としている。誘電率は低ければ低いほど良い。ちなみに、後述の実験結果より、電気抵抗率が $1 \times 10^5 \Omega \cdot m$ の値を超えていれば誘電率は30以下の低い値を示している。

なお、Y型六方晶フェライトによる占有率は、焼結体の粉碎粉を用いて、X線

回折ピークの強度比より算出した。

表 5

サンプル No.	主成分 (mol%)								添加成分 (wt%)			仮焼温度 (°C)	焼成温度 (°C)	Y型の 占有率 (%)
	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CoO	CuO	ZnO	NiO	MgO	BaO	SrO	ビスマス ガラス	硼珪酸 ガラス	硼珪酸 亜鉛 ガラス			
実施例 4-1-1	60	10	5.5	5	-	-	19.5	-	5	-	-	1000	930	95
実施例 4-1-2	60	5	5.5	10	-	-	19.5	-	5	-	-	1000	930	95
実施例 4-1-3	60	3	5.5	15	-	-	16.5	-	5	-	-	1000	930	95
実施例 4-1-4	60	10	5.5	-	5	-	19.5	-	5	-	-	1000	930	95
実施例 4-1-5	60	5	5.5	-	10	-	19.5	-	5	-	-	1000	930	95
実施例 4-1-6	60	3	5.5	-	15	-	16.5	10	5	-	-	1000	930	95
実施例 4-1-7	60	10	5.5	-	-	5	19.5	-	5	-	-	1000	930	95
実施例 4-1-8	60	5	5.5	-	-	10	19.5	-	5	-	-	1000	930	95
実施例 4-1-9	60	3	5.5	-	-	15	16.5	-	5	-	-	1000	930	95
実施例 4-1-10	60	14	5.5	1	-	-	19.5	-	5	-	-	1000	930	95
実施例 4-1-11	60	14	5.5	-	1	-	19.5	-	5	-	-	1000	930	95
実施例 4-1-12	60	14	5.5	-	-	1	19.5	-	5	-	-	1000	930	95
比較例 4-1-1	60	15	5	-	-	-	20	-	5	-	-	1000	930	95
比較例 4-1-2	60	3	5	20	-	-	12	-	5	-	-	1000	930	95
比較例 4-1-3	60	3	5	-	20	-	12	-	5	-	-	1000	930	95
比較例 4-1-4	60	3	5	-	-	20	12	-	5	-	-	1000	930	95
実施例 4-1-13	60	5	10	5	-	-	20	-	5	-	-	900	930	95
比較例 4-1-5	60	5	10	5	-	-	20	-	5	-	-	850	930	46
比較例 4-1-6	60	5	10	5	-	-	20	-	5	-	-	800	930	0
実施例 4-1-14	60	5	10	5	-	-	20	-	5	-	-	850	930	90

実施例 4-1-14の仮焼時間は10時間とした



表5 (続き)

サンプル No.	主成分 (mol%)							添加成分 (wt%)				仮焼温度 (°C)	焼成温度 (°C)	Y型の 占有率 (%)
	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CoO	CuO	ZnO	NiO	MgO	BaO	SrO	ピタス ガラス	硼珪酸 ガラス	硼珪酸 亜鉛 ガラス			
実施例 4-1-15	57	15	5.5	5	-	-	17.5	-	5	-	-	1000	930	95
実施例 4-1-16	61	10	5.5	5	-	-	18.5	-	5	-	-	1000	930	95
実施例 4-1-17	60	3	12	5	-	-	20	-	5	-	-	1000	930	95
実施例 4-1-18	57	3	17	5	-	-	18	-	5	-	-	1000	930	95
実施例 4-1-19	60	5	10	5	-	-	10	10	5	-	-	1000	930	95
比較例 4-1-7	60	5	10	5	-	-	20	-	0.3	-	-	1000	930	95
実施例 4-1-20	60	5	10	5	-	-	20	-	0.6	-	-	1000	930	95
実施例 4-1-21	60	5	10	5	-	-	20	-	7	-	-	1000	930	95
比較例 4-1-8	60	5	10	5	-	-	20	-	10	-	-	1000	930	95
比較例 4-1-9	60	5	10	5	-	-	20	-	-	0.3	-	1000	930	95
実施例 4-1-22	60	5	10	5	-	-	20	-	-	0.6	-	1000	930	95
実施例 4-1-23	60	5	10	5	-	-	20	-	-	5	-	1000	930	95
実施例 4-1-24	60	5	10	5	-	-	20	-	-	7	-	1000	930	95
比較例 4-1-10	60	5	10	5	-	-	20	-	-	10	-	1000	930	95
比較例 4-1-11	60	5	10	5	-	-	20	-	-	-	0.3	1000	930	95
実施例 4-1-25	60	5	10	5	-	-	20	-	-	-	0.6	1000	930	95
実施例 4-1-26	60	5	10	5	-	-	20	-	-	-	5	1000	930	95
実施例 4-1-27	60	5	10	5	-	-	20	-	-	-	7	1000	930	95
比較例 4-1-12	60	5	10	5	-	-	20	-	-	-	10	1000	930	95

表 6

サンプル No.	透磁率		電気 抵抗率 ( $\Omega \cdot m$ )	誘電率
	500MHz	2GHz		
実施例 4-1-1	3.4	3.7	$1 \times 10^6$	27
実施例 4-1-2	5.1	4.2	$1 \times 10^6$	27
実施例 4-1-3	10.1	2.2	$1 \times 10^6$	27
実施例 4-1-4	2.7	2.3	$1 \times 10^6$	27
実施例 4-1-5	3.3	2.6	$1 \times 10^6$	27
実施例 4-1-6	5.8	2.0	$1 \times 10^6$	27
実施例 4-1-7	2.6	2.2	$1 \times 10^6$	27
実施例 4-1-8	3.2	2.5	$1 \times 10^6$	27
実施例 4-1-9	6.2	2.0	$1 \times 10^6$	27
実施例 4-1-10	2.7	2.7	$1 \times 10^6$	27
実施例 4-1-11	2.5	2.2	$1 \times 10^6$	27
実施例 4-1-12	2.6	2.1	$1 \times 10^6$	27
比較例 4-1-1	2.1	2.1	$1 \times 10^6$	27
比較例 4-1-2	8.1	0.8	$1 \times 10^6$	27
比較例 4-1-3	5.8	0.8	$1 \times 10^6$	27
比較例 4-1-4	6.2	0.6	$1 \times 10^6$	27
実施例 4-1-13	3.8	3.8	$1 \times 10^6$	28
比較例 4-1-5	2.6	1.8	$1 \times 10^6$	28
比較例 4-1-6	1.8	1.8	$1 \times 10^6$	28
実施例 4-1-14	3.8	3.8	$1 \times 10^6$	27

表 6 (続き)

サンプル No.	透磁率		電気 抵抗率 ( $\Omega \cdot m$ )	誘電率
	500MHz	2GHz		
実施例 4-1-15	2.5	2.5	$1 \times 10^6$	27
実施例 4-1-16	3.0	3.0	$1 \times 10^6$	27
実施例 4-1-17	3.5	3.3	$9 \times 10^5$	28
実施例 4-1-18	3.0	2.9	$9 \times 10^5$	29
実施例 4-1-19	3.9	3.9	$1 \times 10^9$	27
比較例 4-1-7	3.4	3.4	$5 \times 10^4$	35
実施例 4-1-20	3.7	3.7	$3 \times 10^5$	29
実施例 4-1-21	3.8	3.8	$2 \times 10^6$	27
比較例 4-1-8	3.0	1.9	$3 \times 10^6$	27
比較例 4-1-9	2.9	2.9	$8 \times 10^4$	32
実施例 4-1-22	3.2	3.2	$3 \times 10^5$	29
実施例 4-1-23	3.4	3.4	$3 \times 10^6$	25
実施例 4-1-24	3.4	3.4	$9 \times 10^6$	25
比較例 4-1-10	2.5	1.8	$2 \times 10^7$	25
比較例 4-1-11	2.9	2.9	$8 \times 10^4$	31
実施例 4-1-25	3.5	3.5	$2 \times 10^5$	29
実施例 4-1-26	3.6	3.6	$6 \times 10^6$	27
実施例 4-1-27	3.6	3.6	$3 \times 10^7$	27
比較例 4-1-12	2.7	1.9	$5 \times 10^7$	27

## [実験例 4 - II]

上記実験例 4 - I における実施例 4 - I - 2 サンプルの主成分において、添加成分の種類および添加量を下記表 7 に示すとおり変えて種々のサンプルを作製した。これらのサンプルについて、90%以上の相対密度（理論密度 100 に対して）が得られる温度を測定した。

結果を下記表 7 に示した。

表 7

副成分	ガラスの添加量				
	0.6wt%	1wt%	3wt%	5wt%	7wt%
硼珪酸ガラス	1000°C	1000°C	950°C	950°C	900°C
硼珪酸亜鉛ガラス	1000°C	1000°C	950°C	950°C	900°C
ビスマスガラス	1000°C	950°C	900°C	900°C	900°C

## [実験例 4 - III]

次に、本発明の磁性体を用いてインピーダンス素子を作製した。すなわち、焼結後の組成が上記表 5 の実施例 4 - I - 2 サンプルの主成分に示されるような組成となるように各原料を秤量し、鋼鉄製ボールミルで 15 時間湿式混合した。次に、この混合粉を大気中、950°C で 2 時間仮焼きした。次いで、副成分としてビスマスガラスを 5 wt % 添加した後、鉄鋼製ボールミルで 15 時間粉碎した。

この仮焼き粉末に有機バインダーを混合し、ドクターブレード法により均一なグリーンシートを形成した。

比較のために NiCuZn 系スピネルフェライト粉末 (NiO = 45 モル%、CuO = 5 モル%、ZnO = 1.5 モル%、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> = 48 モル%、CoO = 0.5 モル%) を用いて作製したグリーンシートも準備した。

この一方で、銀を混合してなる導電性ペーストを用意し、先のグリーンシート上にコイルをスパイラル状となるように積層した。厚み方向に圧力を加えて圧着し、磁性体に電極がサンドイッチされたグリーンシート積層体を作製した。これを 930°C で 2 時間焼成した。得られた焼結体の側面の内部導電体の位置に銀ペーストを塗布し、外部電極を焼き付け、図 1 に概略的に示されるインピーダンス

素子（高周波回路部品）とした。なお、図1は素子内部構造の理解を容易にするためモデル図として描かれている。図1において、符号11はインナーコンダクタ（Agコイル）であり、符号10はターミナルコンダクタであり、符号20はフェライトを示している。

得られたインピーダンス素子のインピーダンスおよび透磁率を2GHzで測定したところ、本発明のものではインピーダンスが236Ω（透磁率は4.2）という極めて優れた特性が得られた。これに対して従来のNiCuZnフェライトのインピーダンスは135Ω（透磁率1.2）であった。

上記の結果より本発明の第4の発明グループにおける効果は明らかである。すなわち、本発明は、Y型六方晶フェライトで80%以上占有されてなる磁性酸化物焼結体であって、該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトをCoO換算で3～15モル%、酸化銅をCuO換算で5～17モル%、酸化鉄をFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>換算で57～61モル%、MOを0～15wt%（MOは、NiO、ZnO、MgOの少なくとも1種であり、MOの含有率0は除く）、残部をAO（AOは、BaOまたはSrOの少なくとも1種）として含み、副成分として硼珪酸ガラス、硼珪酸亜鉛ガラスまたはビスマスガラスを0.6～7wt%含有してなるように構成されているので、1000℃以下特に、900℃付近で焼成可能であり、高周波帯域での透磁率特性が良く、電気抵抗率が高く、誘電率が低い、Y型六方晶フェライトを主成分フェライトとする磁性酸化物焼結体およびこれを用いた高周波回路部品を提供することができる。

#### 産業上の利用可能性

本発明における磁性酸化焼結体は、磁性酸化物焼結体中に導電体が埋設された構造を備える高周波回路部品、例えば、インピーダ、インダクタとして用いられる。

## 請 求 の 範 囲

1. Y型六方晶フェライトで80%以上占有されてなる磁性酸化物焼結体であって、

該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトを $\text{CoO}$ 換算で3~15モル%、酸化銅を $\text{CuO}$ 換算で5.5~17モル%、酸化鉄を $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 換算で57~61モル%、残部を $\text{AO}$  ( $\text{AO}$ は、 $\text{BaO}$ または $\text{SrO}$ の少なくとも1種)として含み、

副成分として酸化ビスマス ( $\text{Bi}_2\text{O}_3$ ) を0.5~7wt%含有してなることを特徴とする磁性酸化物焼結体。

2. 前記磁性酸化物焼結体の製造における仮焼温度が $850^\circ\text{C}$ ~ $1000^\circ\text{C}$ である請求項1に記載の磁性酸化物焼結体。

3. 磁性酸化物焼結体中に導電体が埋設された構造を備える高周波回路部品であって、

前記磁性酸化物焼結体は、Y型六方晶フェライトで80%以上占有され、かつ、  
該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトを $\text{CoO}$ 換算で3~15モル%、酸化銅を $\text{CuO}$ 換算で5.5~17モル%、酸化鉄を $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 換算で57~61モル%、残部を $\text{AO}$  ( $\text{AO}$ は、 $\text{BaO}$ または $\text{SrO}$ の少なくとも1種)として含み、

副成分として酸化ビスマス ( $\text{Bi}_2\text{O}_3$ ) を0.5~7wt%含有してなることを特徴とする高周波回路部品。

4. 前記磁性酸化物焼結体の製造における仮焼温度が $850^\circ\text{C}$ ~ $1000^\circ\text{C}$ である請求項3に記載の高周波回路部品。

5. 前記導電体が銀 ( $\text{Ag}$ ) を主成分とする請求項3に記載の高周波回路部品。

6. Y型六方晶フェライトで80%以上占有されてなる磁性酸化物焼結体であって、

該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトを $\text{CoO}$ 換算で3~15モル%、酸化銅を $\text{CuO}$ 換算で5~17モル%、酸化鉄を $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 換算で57~61モル%、残部を $\text{AO}$  ( $\text{AO}$ は、 $\text{BaO}$ または $\text{SrO}$ の少なくとも1種)として含み、

副成分として硼珪酸ガラス、硼珪酸亜鉛ガラスまたはビスマスガラスを0.6~7wt%含有してなることを特徴とする磁性酸化物焼結体。

7. 前記磁性酸化物焼結体の製造における仮焼温度が $850^\circ\text{C}$ ~ $1000^\circ\text{C}$ である請求項6に記載の磁性酸化物焼結体。

8. 磁性酸化物焼結体中に導電体が埋設された構造を備える高周波回路部品であって、

前記磁性酸化物焼結体は、Y型六方晶フェライトで80%以上占有され、かつ、  
該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトを $\text{CoO}$ 換算で3~15モル%、酸化銅を $\text{CuO}$ 換算で5~17モル%、酸化鉄を $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 換算で57~61モル%、残部を $\text{AO}$  ( $\text{AO}$ は、 $\text{BaO}$ または $\text{SrO}$ の少なくとも1種)として含み、

副成分として硼珪酸ガラス、硼珪酸亜鉛ガラスまたはビスマスガラスを0.6~7wt%含有してなることを特徴とする高周波回路部品。

9. 前記磁性酸化物焼結体の製造における仮焼温度が $850^\circ\text{C}$ ~ $1000^\circ\text{C}$ である請求項8に記載の高周波回路部品。

10. 前記導電体が銀 ( $\text{Ag}$ ) を主成分とする請求項8に記載の高周波回路部品。

1 1. Y型六方晶フェライトで80%以上占有されてなる磁性酸化物焼結体であって、

該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトをCoO換算で3~15モル%、酸化銅をCuO換算で5~17モル%、酸化鉄をFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>換算で57~61モル%、MOを0~15wt% (MOは、NiO, ZnO, MgOの少なくとも1種であり、MOの含有率0は除く)、残部をAO (AOは、BaOまたはSrOの少なくとも1種) として含み、

副成分として酸化ビスマス (Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) を0.5~7wt%含有してなることを特徴とする磁性酸化物焼結体。

1 2. 前記磁性酸化物焼結体の製造における仮焼温度が850°C~1000°Cである請求項11に記載の磁性酸化物焼結体。

1 3. 磁性酸化物焼結体中に導電体が埋設された構造を備える高周波回路部品であって、

前記磁性酸化物焼結体は、Y型六方晶フェライトで80%以上占有され、かつ、  
該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトをCoO換算で3~15モル%、酸化銅をCuO換算で5~17モル%、酸化鉄をFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>換算で57~61モル%、MOを0~15wt% (MOは、NiO, ZnO, MgOの少なくとも1種であり、MOの含有率0は除く)、残部をAO (AOは、BaOまたはSrOの少なくとも1種) として含み、

副成分として酸化ビスマス (Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) を0.5~7wt%含有してなることを特徴とする高周波回路部品。

1 4. 前記磁性酸化物焼結体の製造における仮焼温度が850°C~1000°Cである請求項13に記載の高周波回路部品。

1 5. 前記導電体が銀 (Ag) を主成分とする請求項13に記載の高周波回路部品。



16. Y型六方晶フェライトで80%以上占有されてなる磁性酸化物焼結体であって、

該磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトをCoO換算で3~15モル%、酸化銅をCuO換算で5~17モル%、酸化鉄をFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>換算で57~61モル%、MOを0~15wt% (MOは、NiO, ZnO, MgOの少なくとも1種であり、MOの含有率0は除く)、残部をAO (AOは、BaOまたはSrOの少なくとも1種) として含み、

副成分として硼珪酸ガラス、硼珪酸亜鉛ガラスまたはビスマスガラスを0.6~7wt%含有してなることを特徴とする磁性酸化物焼結体。

17. 前記磁性酸化物焼結体の製造における仮焼温度が850°C~1000°Cである請求項16に記載の磁性酸化物焼結体。

18. 磁性酸化物焼結体中に導電体が埋設された構造を備える高周波回路部品であって、

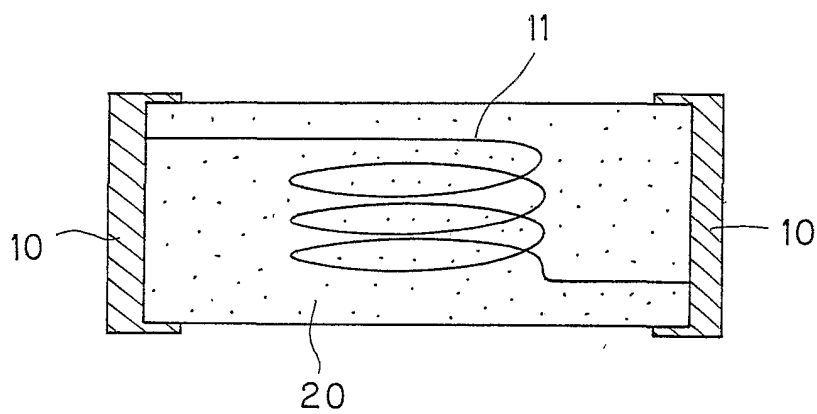
前記磁性酸化物焼結体は、主成分として酸化コバルトをCoO換算で3~15モル%、酸化銅をCuO換算で5~17モル%、酸化鉄をFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>換算で57~61モル%、MOを0~15wt% (MOは、NiO, ZnO, MgOの少なくとも1種であり、MOの含有率0は除く)、残部をAO (AOは、BaOまたはSrOの少なくとも1種) として含み、

副成分として硼珪酸ガラス、硼珪酸亜鉛ガラスまたはビスマスガラスを0.6~7wt%含有してなることを特徴とする高周波回路部品。

19. 前記磁性酸化物焼結体の製造における仮焼温度が850°C~1000°Cである請求項18に記載の高周波回路部品。

20. 前記導電体が銀 (Ag) を主成分とする請求項18に記載の高周波回路部品。

FIG. 1



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/06691

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl.<sup>7</sup> C04B35/32

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.<sup>7</sup> C04B35/26~35/40, H01F1/00~1/375

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2001  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2001 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2001

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 9-124322 A (Tokin Corporation), 13 May, 1997 (13.05.97) (Family: none)	1~20
A	JP 62-90909 A (TDK Corporation), 25 April, 1987 (25.04.87) (Family: none)	1~20

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 document 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  
05 October, 2001 (05.10.01)

Date of mailing of the international search report  
16 October, 2001 (16.10.01)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. 7 C04B35/32

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))

Int. Cl. 7 C04B35/26~35/40, H01F1/00~1/375

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 1926-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2001年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2001年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2001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 請求の範囲の番号
A	JP 9-124322 A (株式会社トーキン) 13. 5月. 1 997 (13. 05. 97), (ファミリーなし)	1~20
A	JP 62-90909 A (ティーディーケイ株式会社) 25. 4月. 1987 (25. 04. 87), (ファミリーなし)	1~20

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 05. 10. 01

国際調査報告の発送日 16.10.01

国際調査機関の名称及びあて先  
 日本国特許庁 (ISA/JP)  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員) 4T 8924  
 米田 健志  
 電話番号 03-3581-1101 内線 3465