

(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8月5日(05.08.2021)



(10) 国際公開番号

WO 2021/153612 A1

- (51) 国際特許分類:
C01G 49/00 (2006.01) H01F 1/34 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2021/002835
- (22) 国際出願日: 2021年1月27日(27.01.2021)
- (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 2020-010745 2020年1月27日(27.01.2020) JP
- (71) 出願人: パウダーテック株式会社
(POWDERTECH CO., LTD.) [JP/JP]; 〒2778557
千葉県柏市十余二 2 1 7 番地 Chiba (JP).
- (72) 発明者: 安賀 康二 (AGA Koji); 〒2778557 千葉県
柏市十余二 2 1 7 番地 パウダーテック
株式会社内 Chiba (JP). 小島 隆志 (KOJIMA
Takashi); 〒2778557 千葉県柏市十余二 2 1 7
番地 パウダーテック株式会社内 Chiba (JP).
杉浦 隆男 (SUGIURA Takao); 〒2778557 千葉県
柏市十余二 2 1 7 番地 パウダーテック
株式会社内 Chiba (JP). 桑原 翔 (KUWAHARA
Sho); 〒2778557 千葉県柏市十余二 2 1 7 番
地 パウダーテック株式会社内 Chiba (JP). 近
野 曉美 (KONNO Satomi); 〒2778557 千葉県柏
市十余二 2 1 7 番地 パウダーテック株式会
社内 Chiba (JP). 續 忠志 (TSUDUKI Tadashi);
〒2778557 千葉県柏市十余二 2 1 7 番地 パウ
ダーテック株式会社内 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 関口 正夫 (SEKIGUCHI Masao);
〒1040061 東京都中央区銀座 4 - 1 0 -
1 0 銀座山王ビル 6 F LOGOS 総合
特許商標事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保
護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ,
BA, BB, BG, BH, 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, 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,
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: FERRITE POWDER AND METHOD FOR PRODUCING SAME

(54) 発明の名称: フェライト粉末及びその製造方法

(57) Abstract: Provided are a ferrite powder capable of maintaining a high withstand voltage even when used in a resin composition having high magnetic properties and electrical resistance and a high filling rate, and a method for producing the same. A ferrite powder composed of spherical ferrite particles, wherein the ferrite powder contains iron (Fe): 55.0-70.0 mass% and manganese (Mn): 3.5-18.5 mass%, the α -Fe₂O₃ content is 0.0 to less than 7.5 mass%, and the ferrite powder has a volume average particle size (D50) of 15.0 μ m or less.

(57) 要約: 磁気特性及び電気抵抗が高く、充填率が高い樹脂組成物に適用しても高い耐電圧を維持できるフェライト粉末及びその製造方法が提供される。真球状フェライト粒子で構成されるフェライト粉末であって、前記フェライト粉末が、鉄 (Fe) : 55.0~70.0質量%及びマンガン (Mn) : 3.5~18.5質量%を含有し、 α -Fe₂O₃量が0.0質量%超7.5質量%以下であり、前記フェライト粉末は、その体積平均粒子径 (D50) が15.0 μ m以下である、フェライト粉末。



WO 2021/153612 A1

明 細 書

発明の名称：フェライト粉末及びその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、フェライト粉末及びその製造方法に関する。

背景技術

[0002] フェライト粉末と樹脂とからなるフェライト樹脂複合材料（樹脂組成物）は、電磁波シールド材を始めとする様々の用途で多用されている。複合材料は、フェライト粉末をフィラーとして樹脂と混練することで作製され、シートなどの形状に成形されて成形体（複合体）となる。このときフェライト粉末を構成する粒子の形状が球形に近いと、成形時の流動性が高くなり、複合体中でのフェライト粉末の充填率が高くなる。そのため成形性が良好になるとともに、電磁波遮蔽性能等の特性が優れたものになる。このような観点から、球状粒子からなるフェライト粉末が着目されており、そのような球状粒子を溶射法により作製することが提案されている。

[0003] 例えば、特許文献1（国際公開第2017/212997号）には、平均粒径が1～2000nmの単結晶であり且つ真球状の粒子形状を備えるフェライト粒子であって、当該フェライト粒子は、Znを実質的に含有せず、Mnを3～25重量%、Feを43～65重量%を含有し、当該フェライト粒子とバインダー樹脂とからなる成形体によって測定した複素透磁率の実部 μ' が100MHz～1GHzの周波数帯域において極大値を有することを特徴とするフェライト粒子が開示されている（特許文献1の請求項1）。また特許文献1には、フェライト原料からなる造粒物を大気中で溶射してフェライト化し、続いて急凝固した後に、粒径が所定範囲内の粒子のみを回収することにより製造する旨、電子機器の電磁波シールド材料として用いるときに、遮蔽が必要とされる幅広い周波数帯域の電磁波を周波数に関係なく安定して遮蔽できる旨が記載されている（特許文献1の[0039]及び[0078]）。

- [0004] 特許文献2（国際公開第2017/169316号）には、平均粒径が1～2000nmの単結晶体であり、真球状の粒子形状を備えるMn系フェライト粒子であり、飽和磁化が45～95Am²/kgであることを特徴とするフェライト粒子が開示されている（特許文献2の請求項1）。また特許文献2には、Mn及びFeを含むフェライト原料を大気中で溶射してフェライト化し、続いて急凝固した後に、粒径が所定範囲内の粒子のみを回収することにより製造する旨、高い飽和磁化を得ることができるとともに、樹脂、溶媒又は樹脂組成物に対する優れた分散性を得ることができ旨が記載されている（特許文献2の[0033]及び[0089]）。
- [0005] 特許文献3（特開2016-060682号公報）には、粒径11μm未満のフェライト粒子を15～30重量%含有し、かつ体積平均粒径が10～50μmであることを特徴とする真球状フェライト粉が開示され、調整された造粒物を大気中で溶射してフェライト化する旨、フィラーとして用いられたときの充填性及び成型性が良好で、優れたハンドリング性を有し、かつ高抵抗であることから、この球状フェライト粉を樹脂と共に樹脂組成物とし、さらに成型した成型体は、電磁波吸収用のIC用封止剤を始めとする種々の用途に使用可能である旨が記載されている（特許文献3の請求項1、[0058]及び[0093]）。
- [0006] 特許文献4（特開2005-015303号公報）には、原料粉末と、高級脂肪酸、もしくはその誘導体、高級炭化水素、高級アルコールのうちの少なくとも一つからなる処理剤とを、所定温度に加熱した後に攪拌することで前記原料粉末を表面処理する表面処理工程と、表面処理した前記原料粉末をバーナーで発生する燃焼炎中に投入して溶融させることにより球状化させ、さらに前記原料粉末が燃焼炎外に移動することによって凝固することで球状粉末を得る球状粉末生成工程と、を備えることを特徴とする球状粉末の製造方法が開示されている（特許文献4の請求項1）。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：国際公開第2017/212997号

特許文献2：国際公開第2017/169316号

特許文献3：特開2016-060682号公報

特許文献4：特開2005-015303号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] しかしながら本発明者らが検討を行ったところ、溶射法により作製した球状粒子からなるフェライト粉末は電気抵抗が低く、これを樹脂と混練して樹脂組成物としたときに耐電圧（ブレイクダウン電圧）の点で問題になる場合のあることが分かった。特にフェライト粉末の充填率が高い場合に、樹脂組成物の耐電圧が低下してしまった。樹脂組成物の耐電圧が低いと、電圧印加時に樹脂組成物が絶縁破壊を起こしてしまい、素子として問題となる。

[0009] 本発明者らがさらに検討を進めたところ、球状粒子からなるフェライト粉末において、所定量の $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ を含ませることで、フェライト粉末の磁気特性（飽和磁化、透磁率）を高く維持したまま、電気抵抗を高めることができること、このフェライト粉末を樹脂組成物に適用すると、充填率が高くても高い耐電圧を維持できることの知見を得た。

[0010] 本発明は、このような知見に基づき完成されたものであり、磁気特性及び電気抵抗が高く、充填率の高い樹脂組成物に適用しても高い耐電圧を維持できるフェライト粉末及びその製造方法の提供を課題とする。

課題を解決するための手段

[0011] 本発明は、下記（1）～（7）の態様を包含する。なお、本明細書において、「～」なる表現は、その両端の数値を含む。すなわち「X～Y」は「X以上Y以下」と同義である。

[0012] （1）真球状フェライト粒子で構成されるフェライト粉末であって、
前記フェライト粉末が、鉄（Fe）：55.0～70.0質量%及びマンガン（Mn）：3.5～18.5質量%を含有し、 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 量が0.0質量%超7.5質量%以下であり、

前記フェライト粉末は、その体積平均粒子径（D50）が15.0 μ m以下である、フェライト粉末。

[0013] (2) 前記 α -Fe₂O₃量が3.0質量%以上6.0質量%以下である、上記(1)のフェライト粉末。

[0014] (3) 前記体積平均粒子径（D50）が2.0 μ m以上である、上記(1)又は(2)のフェライト粉末。

[0015] (4) 前記フェライト粉末は、その平均形状係数SF-1が100~110である、上記(1)~(3)のいずれかのフェライト粉末。

[0016] (5) 前記フェライト粉末は、その炭素（C）含有量が0.12質量%以下である、上記(1)~(4)のいずれかのフェライト粉末。

[0017] (6) 前記フェライト粉末は、その体積抵抗が1.0 \times 10⁸ Ω ·cm以上である、上記(1)~(5)のいずれかのフェライト粉末。

[0018] (7) 上記(1)~(6)のいずれかのフェライト粉末の製造方法であって、以下の工程：

フェライト原料を混合して原料混合物を作製する工程、

前記原料混合物を仮焼して仮焼成物とする工程、

前記仮焼成物を粉碎及び造粒して造粒物とする工程、及び

前記造粒物を溶射して溶射物とする工程を有し、

前記造粒物の炭素含有量を0.001~0.095質量%とし、溶射工程で、原料供給速度を2.5~9.0kg/時間、燃焼ガス流量を3~10m³/時間、酸素流量を18~60m³/時間とする、方法。

発明の効果

[0019] 本発明によれば、磁気特性及び電気抵抗が高く、充填率の高い樹脂組成物に適用しても高い耐電圧を維持できるフェライト粉末及びその製造方法が提供される。

発明を実施するための形態

[0020] 本発明の具体的な実施形態（以下、「本実施形態」という）について説明する。なお、本発明は以下の実施形態に限定されるものではなく、本発明の

要旨を変更しない範囲において種々の変更が可能である。

[0021] フェライト粉末

本実施形態のフェライト粉末は真球状フェライト粒子で構成される。すなわちフェライト粉末は多数の真球状フェライト粒子を含む。真球状フェライト粒子で構成することで、フェライト粉末は、これをフィラーとして樹脂組成物（フェライト樹脂複合材料）に適用したときに、成形性及び充填性に優れたものとするのが可能になる。球状粒子は成形時に他の粒子と接触したときに滑らかに回避する。そのため成形時の流動性が良好になるとともに密に充填される。これに対して板状又は針状といった異形状（不定形状）を有する粒子は成形性及び充填性に劣る。なお本明細書において、不定形状粒子は異形状粒子を包含し、球状などの定形状粒子と対比して使用される。

[0022] 本実施形態のフェライト粉末は、鉄（Fe）55.0～70.0質量%及びマンガン（Mn）3.5～18.5質量%を含有する。このフェライト粉末はマンガン（Mn）フェライトの組成を有する。マンガン（Mn）フェライトは、鉄（Fe）含有量が過度に少ない場合やマンガン（Mn）含有量が過度に多い場合には、飽和磁化（ σ_s ）が低下したり、透磁率虚部（ μ'' ）及び損失係数（ $\tan \delta$ ）が高くなったりする。そのためフェライト粉末を樹脂組成物に適用した際に、飽和磁束密度が低下したり損失が増大したりする恐れがある。一方で、鉄（Fe）含有量が過度に多い場合やマンガン（Mn）含有量が過度に少ない場合には、フェライト組成がマグネタイトに近くなる。マグネタイト（ $\text{FeO} \cdot \text{Fe}_2\text{O}_3$ ）は、不安定な2価鉄イオン（ Fe^{2+} ）を含むが故に、酸化による飽和磁化（ σ_s ）低下の恐れがある。これらの観点から、フェライト粉末の鉄（Fe）及びマンガン（Mn）含有量を上述の範囲に限定する。フェライト粉末は、鉄（Fe）57.0～70.0質量%及びマンガン（Mn）4.5～15.0質量%を含んでもよく、鉄（Fe）58.0～69.0質量%及びマンガン（Mn）6.0～10.0質量%を含んでもよい。鉄（Fe）とマンガン（Mn）を合計した値は73.0重量%を超えることはない。

[0023] フェライトは酸化物である。そのためフェライト粉末は鉄 (Fe) 及びマンガン (Mn) 以外に酸素 (O) を含む。また上述した組成範囲を満足する限り、鉄 (Fe)、マンガン (Mn) 及び酸素 (O) 以外の他の成分を含んでもよい。このような成分として、例えば、亜鉛 (Zn)、マグネシウム (Mg)、ストロンチウム (Sr)、チタン (Ti)、リチウム (Li)、バリウム (Ba)、イットリウム (Y)、ニッケル (Ni)、銅 (Cu)、コバルト (Co) 等が挙げられる。しかしながらマンガン (Mn) フェライトの特性を十分に発揮させる観点から、他の成分の含有量は、1.0質量%以下が好ましく、0.5質量%以下がより好ましい。フェライト粉末が鉄 (Fe)、マンガン (Mn) 及び酸素 (O) を含み、残部が不可避不純物の組成を有してもよい。ここで不可避不純物は、製造工程中に不可避免的に混入する成分であり、その含有量が5000ppm以下の成分を指す。不可避不純物としてはケイ素 (Si)、アルミニウム (Al)、カルシウム (Ca)、塩素 (Cl)、ホウ素 (B)、ジルコニウム (Zr) 及びクロム (Cr) 等が挙げられる。

[0024] 本実施形態のフェライト粉末は、 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 量が0.0質量%超7.5質量%以下である。 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ (ヘマタイト) を含有させることで、フェライト粉末の高い磁気特性を維持したまま、電気抵抗及び耐電圧低下を抑制することができる。その理由は次のとおりである。フェライトは、その製造時に原料たる鉄 (Fe) 成分とマンガン (Mn) 等の遷移金属成分が反応して、強磁性体たるスピネル相などのフェライト成分を形成する。スピネル相は、マンガンフェライト ($(\text{Mn}, \text{Fe})\text{O} \cdot (\text{Mn}, \text{Fe})_2\text{O}_3$) やマグネタイト ($\text{FeO} \cdot \text{Fe}_2\text{O}_3$) などの2価金属イオンと3価金属イオンを含む複合酸化物である。ここでマンガン (Mn) イオン及び鉄 (Fe) イオンは2価と3価のいずれの価数をもとり得る。そのためスピネル相中で電子のホッピング現象が起こり、電気伝導が生じてしまう。これによりスピネル相のみからなるフェライト、特にマンガン (Mn) フェライトは、その電気抵抗が低くなる傾向にある。

[0025] これに対して $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ （ヘマタイト）は、スピネル相にならなかった鉄（Fe）成分に由来する遊離酸化鉄である。 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ は、3価の鉄イオン（ Fe^{3+} ）を含むものの、2価の鉄イオン（ Fe^{2+} ）を含まない。そのため電気抵抗が高い安定な化合物である。したがってフェライト粉末中の真球状フェライト粒子が $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ を含むことで、スピネル相による導電経路が断ち切れ、電気抵抗及び耐電圧が高くなる。そのため $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ を必須成分、すなわち $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 量を0.0質量%超に限定している。 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 量は、0.1質量%以上であってよく、0.5質量%以上であってよく、1.0質量%以上であってよく、2.0質量%以上であってよく、3.0質量%以上であってよく、4.0質量%以上であってよい。一方でスピネル相とは異なり、 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ は常磁性体である。そのため $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 量が過度に多いと、フェライト粉末の磁気特性（飽和磁化、透磁率）が低下する恐れがある。 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 量は、7.0質量%以下であってよく、6.0質量%以下であってよい。

[0026] フェライト粉末（真球状フェライト粒子）は、 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ の他に、主としてスピネル相を含む。スピネル相の含有量は、80質量%以上であってよく、85質量%以上であってよく、90質量%以上であってよく、95質量%以上であってよい。またフェライト粉末がスピネル相及び $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 以外の他の相や不可避不純物を含んでもよい。このような相として、例えば余剰マンガ氧化物（ MnO 、 Mn_2O_3 、 Mn_3O_4 等）やスピネル以外の鉄酸化物（ $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 、 FeO 、 Mn_3FeO_8 等）が挙げられる。しかしながらフェライト粉末が他の相を含まなくてもよい。すなわちフェライト粉末がスピネル相及び $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ を含み、残部が不可避不純物であってもよい。なお不可避不純物は、先述したように含有量5000ppm以下の成分である。さらに本実施形態のフェライト粉末は、これを構成する真球状フェライト粒子が $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ を含む。例えば $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ が真球状フェライト粒子の内部に分散していてもよい。したがって、このフェライト粉末は $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 非含有フェライト粒子と $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ との混合物とは区別される。

[0027] 本実施形態のフェライト粉末は、その体積平均粒子径（D50）が15.0 μm以下である。D50が15.0 μmを超えると、損失係数（tan δ）が大きくなり過ぎるとともに、耐電圧低下の問題がある。D50は、10.0 μm以下であってよく、7.0 μm以下であってよい。D50の下限は特に限定されるものではない。しかしながらD50をある程度に大きくすることで、樹脂組成物の粘度上昇が抑えられ、フィラー充填率を高めることが可能になる。D50は2.0 μm以上であってよく、2.5 μm以上であってよい。粒度分布は2山以上のピークを持っていてもよい。ここで2山以上のピークを持つとは、体積粒度分布を粒径の関数としてみたときに、その関数の微分（微分係数）または2回以上微分の値が0となるような点（極大点・変曲点・鞍点等）を2点以上持つことを意味する（ただし、粒径は対数表示したものを使用する）。

[0028] フェライト粉末は、好ましくは平均形状係数SF-1が100～110である。SF-1は、粒子（粉末）の球形度の指標となるものであり、完全な球形では100となり、球形から離れるほど大きくなる。SF-1を110以下にすることで、粉末の流動性が高くなり、成形性及び充填性がより優れたものとなる。SF-1は、108以下であってよく、105以下であってよく、103以下であってよい。

[0029] なお、フェライト粉末の平均形状係数SF-1は、複数のフェライト粒子について、各粒子の形状係数SF-1を求め、その平均値を算出することで求められる。フェライト粒子のSF-1は、この粒子の水平フェレ径R（単位：μm）、投影周囲長L（単位：μm）及び投影面積S（単位：μm²）を測定し、下記式（1）にしたがって求めることができる。

[0030] [数1]

$$SF-1 = \frac{R^2}{S} \times \frac{\pi}{4} \times 100 \quad \dots \quad (1)$$

[0031] フェライト粉末は、好ましくはBET比表面積が0.01～3.00 m²/

gである。BET比表面積を $3.00\text{ m}^2/\text{g}$ 以下とすることで、フェライト粉末の凝集を抑制することができ、成形性及び充填性がより優れたものとなる。一方でBET比表面積を $0.01\text{ m}^2/\text{g}$ 以上とすることで、粒子間空隙の発生を抑制することができ、充填性がより優れたものとなる。またBET比表面積を上記範囲内とすることで、フェライト粉末を複合材料や複合体に適用したときに樹脂との密着性がより良好なものとなる。BET比表面積は $0.10\sim 2.00\text{ m}^2/\text{g}$ であってもよい。

[0032] フェライト粉末は、好ましくはタップ密度が $0.50\sim 5.00\text{ g}/\text{cm}^3$ である。小粒径の粒子と大粒径の粒子を混在させることでタップ密度を高めることができ、その結果、フェライト粉末の充填性が全体としてより優れたものとなる。タップ密度は $1.50\sim 3.50\text{ g}/\text{cm}^3$ であってもよい。

[0033] フェライト粉末は、好ましくは炭素(C)含有量が 0.12 質量%以下である。この炭素は、主としてフェライト粉末製造時に加えられる有機成分(分散剤、バインダー樹脂等)に由来する残留炭素(C)化合物に起因する成分である。フェライト粉末製造時に加えられる有機成分が少なすぎると、溶射時の原料供給が安定せず、不定形状粒子がフェライト粉末に混入しやすくなる。不定形状粒子は磁気特性及び充填性劣化の原因となる。そのためフェライト粉末はある程度の量の炭素を含むことが好ましい。炭素(C)量は、 0.001 質量%以上であってよく、 0.002 質量%以上であってよく、 0.003 質量%以上であってよい。一方で炭素(C)が過度に多く含まれていると、フェライト粉末をフィラーとして樹脂組成物に適用した際に、樹脂の硬化が阻害される恐れがある。詳細なメカニズムは不明であるが、有機成分由来の残留炭素(C)化合物は官能基をもたない直鎖の化合物であるため、これが樹脂と反応して硬化に悪影響を及ぼすのではないかと考えている。炭素含有量は、 0.100 質量%以下であってよく、 0.080 質量%以下であってよく、 0.050 質量%以下であってよく、 0.010 質量%以下であってよい。

[0034] フェライト粉末は、好ましくは、残留炭素(C)化合物としてエルカ酸ア

ミド ($C_{22}H_{43}NO$)、パルミチン酸ブチル ($C_{20}H_{40}O_2$) 及びステアリン酸ブチル ($C_{22}H_{44}O_2$) からなる群から選択される1種以上の化合物を含む。これらの化合物は、フェライト粉末製造時に添加される有機成分（分散剤、バインダー樹脂等）由来の成分を主とするものである。フェライト粉末製造時に有機成分が加えられないと、フェライト粉末の磁気特性が低下してしまうとともに、樹脂組成物の充填性が悪くなってしまうことがある。

[0035] 本実施形態のフェライト粉末は、 $\alpha-Fe_2O_3$ を含むが故に電気抵抗が高い。フェライト粉末の体積抵抗は、 $1.0 \times 10^8 \Omega \cdot cm$ 以上であってよく、 $2.0 \times 10^8 \Omega \cdot cm$ 以上であってよく、 $4.0 \times 10^8 \Omega \cdot cm$ 以上であってよい。体積抵抗の上限は、特に限定されるものではないが、 $1.0 \times 10^{10} \Omega \cdot cm$ 以下が典型的である。

[0036] フェライト粉末は、これをフィラーとして用いて樹脂と混練することで、電磁波シールド材等の用途に用いられる樹脂組成物とすることができる。ここで樹脂と $\alpha-Fe_2O_3$ 含有フェライト粉末と $\alpha-Fe_2O_3$ 非含有フェライト粉末とは、この順に電気抵抗が低い。すなわち樹脂の電気抵抗が最も高く、 $\alpha-Fe_2O_3$ 非含有フェライト粉末の電気抵抗が最も低い。また樹脂組成物において、フェライト粉末の充填率が高くなると、フェライト粉末間の距離が短くなるとともに、一部のフェライト粉末同士が接触してしまう。そのため高充填率樹脂組成物のフィラーとして電気抵抗の低い $\alpha-Fe_2O_3$ 非含有フェライト粉末を用いると、耐電圧が低くなってしまふ。電圧印加時に、電気抵抗の低いフェライト粒子間に導電経路が形成されてしまい、ブレイクダウン（絶縁破壊）が起きてしまうからである。これに対して、フィラーとして電気抵抗の高い $\alpha-Fe_2O_3$ 含有フェライト粉末を用いると、このような耐電圧低下を防止することができる。

[0037] また本実施形態のフェライト粉末は、常磁性体たる $\alpha-Fe_2O_3$ 量及び体積平均粒子径 (D_{50}) が限定されているため、高い磁気特性（飽和磁化、透磁率）が維持されるとともに、損失係数 ($\tan \delta$) を低く抑えることができる。そのため樹脂組成物の磁気特性を優れたものとするのが可能であ

る。フェライト粉末の飽和磁化 (σ_s) は、 65 emu/g 以上であってよく、 70 emu/g 以上であってよく、 75 emu/g 以上であってよく、 80 emu/g 以上であってよく、 85 emu/g 以上であってよい。飽和磁化 (σ_s) の上限は、特に限定されるものではないが、典型的には 95 emu/g 以下である。またフェライト粉末の 100 MHz における $\tan \delta$ は、 0.20 以下であってよく、 0.13 以下であってよく、 0.06 以下であってよい。 $\tan \delta$ の下限は、特に限定されるものではないが、典型的には 0.001 以上である。

[0038] フェライト粉末の製造方法

本実施形態のフェライト粉末の製造方法は、以下の工程：フェライト原料を混合して原料混合物を作製する工程（原料混合工程）、得られた原料混合物を仮焼して仮焼成物とする工程（仮焼工程）、得られた仮焼成物を粉碎及び造粒して造粒物とする工程（造粒工程）、及び得られた造粒物を溶射して溶射物とする工程（溶射工程）を有する。また造粒物の炭素含有量を $0.001 \sim 0.095$ 質量%とし、溶射工程で、溶射原料供給速度を $2.5 \sim 9.0 \text{ kg/時間}$ 、燃焼ガス流量を $3 \sim 10 \text{ m}^3/\text{時間}$ 、酸素流量を $18 \sim 60 \text{ m}^3/\text{時間}$ にする。各工程の詳細について以下に説明する。

[0039] <原料混合工程>

フェライト原料を混合して原料混合物を作製する。フェライト原料として、酸化物、炭酸塩、水酸化物及び／又は塩化物などの公知のフェライト原料を使用すればよい。例えば、鉄 (Fe) 原料及びマンガン (Mn) 原料として、酸化鉄 (Fe_2O_3)、四酸化三マンガン (Mn_3O_4) 及び／又は二酸化マンガン (MnO_2) 等を用いることができる。原料の混合割合は、所望組成のフェライト粉末が得られるように行う。原料の混合は、ヘンシェルミキサ一等の公知の混合機を用いて行えばよく、乾式及び湿式のいずれか一方または両方で行う。またローラーコンパクター等の造粒装置を用いて原料混合物を造粒（仮造粒）してもよい。

[0040] <仮焼成工程>

仮焼成工程では、得られた原料混合物を仮焼成して仮焼成物とする。仮焼成は公知の手法で行えばよい。例えば、ロータリーキルン、連続炉又はバッチ炉などの炉を用いて行えばよい。仮焼成の条件も公知の条件でよい。例えば、大気等の雰囲気下で700～1300℃で0.5～12時間保持する条件が挙げられる。

[0041] <造粒工程>

造粒工程では、得られた仮焼成物を粉碎及び造粒（本造粒）して造粒物（本造粒物）とする。粉碎方法は特に限定されない。例えば、振動ミル、ボールミル又はビーズミルなどの公知の粉碎機を用い、乾式及び湿式のいずれか一方又は両方で行えばよい。造粒方法も公知の手法でよい。例えば粉碎後の仮焼成物に、水と、必要に応じて、ポリビニルアルコール（PVA）等のバインダー樹脂、分散剤及び／又は消泡剤などの添加剤と、を加えて粘度を調整し、その後、スプレードライヤー等の造粒機を用いて造粒する。

[0042] 造粒工程では、バインダー樹脂及び添加剤の添加量を制御して、造粒物中の炭素（C）含有量が0.001～0.095質量%になるように調整する。後続する溶射条件にもよるが、造粒物中の炭素（C）量を調整することで、作製されるフェライト粉末中の $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 量及び炭素（C）量を制御することができる。すなわち造粒物中の炭素（C）量が多いとフェライト粉末中の炭素（C）量も多くなる傾向にある。また炭素（C）量が多いとフェライト粉末中の $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 量が少なくなる傾向にある。これは溶射時の雰囲気がより還元雰囲気になるため、造粒物のフェライト化反応が進みやすくなるからである。したがって、造粒物中の炭素（C）量が過度に多いと、電気抵抗低下を抑制する効果のある $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ をフェライト粉末に含ませることができなくなる恐れがある。造粒物中の炭素（C）含有量は、0.0750質量%以下であってよく、0.050質量%以下であってよい。一方で造粒物中の炭素（C）量が過度に少ないと、フェライト粉末中の $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 量が多くなり過ぎ、磁気特性が低下してしまう恐れがある。造粒物中の炭素（C）含有量は、0.005質量%以上であってよく、0.010質量%以

上であってよい。

[0043] <溶射工程>

溶射工程では造粒物を溶射する。溶射では燃焼ガスと酸素との混合気体を可燃性ガス燃焼炎源として用いる。溶射原料たる造粒物は高温の燃焼炎を通過する。その際にフェライト化反応が起こるとともに、造粒物の一部が熔融して真球状のフェライト粒子になる。溶射では、燃焼ガスと酸素（全酸素）との混合気体を可燃性ガス燃焼炎源として用いることができる。燃焼ガスと酸素（全酸素）との容量比は、1 : 3.5 ~ 1 : 10.0 が好ましく、1 : 5 ~ 1 : 8.0 がより好ましい。これにより真球状のフェライト粒子を効率的に製造することが可能となる。燃焼ガスとして、プロパンガス、プロピレンガス、アセチレンガス等の可燃性ガスを用いることができ、その中でもプロパンガスが好適に用いられる。

[0044] また溶射原料の供給速度は2.5 ~ 9.0 kg / 時間にする。供給速度（供給量）が高いと、造粒物のスピネル化が進行して、フェライト粉末中の α -Fe₂O₃量が少なくなる。供給速度が高いと火炎中の原料量が増加して火炎の温度が下がるためである。火炎温度が下がると、溶射後の粒子が冷却されるまでの時間が短くなり、生成した2価鉄イオン（Fe²⁺）がフェライト粒子中に残りやすい。これに対して供給速度（供給量）が低いと、 α -Fe₂O₃の生成が進行しやすい。火炎中の原料量が減少して火炎の温度が上がり、その結果、溶射後に粒子が冷却されるまでの時間が長くなるためである。このように供給速度を制御することで、得られるフェライト粉末中の α -Fe₂O₃量を調整することができる。また供給速度が過度に高い場合には、造粒物同士が癒着しやすくなったり、フェライト化反応を粒子内部にまで十分に進めたりすることが困難となる。その結果、真球状の粒子が得られなかったり、あるいは所望の磁気特性とならなかったりする恐れがある。一方で供給速度が過度に低い場合には、製造コスト上昇の原因となる。これらの観点から、本実施形態では溶射原料の供給速度を規定している。供給速度は、4.0 ~ 8.0 kg / 時間であってよい。

- [0045] 溶射で用いられる酸素は原料を溶射火炎まで搬送する目的でも使用する。そのため直接火炎に使用される燃烧酸素、及び、溶射源中央部に原料搬送した後に燃烧される原料供給酸素に分かれる。溶射後のフェライト粉末に炭素含有量は酸素と原料供給酸素の容量の比率によって制御することができる。全酸素＝燃烧酸素＋原料供給酸素であらわされ、容量比となる燃烧酸素：原料供給酸素＝95：5～80：20であることが好ましい。燃烧酸素の比率が上記より大きくなる（100に近づく）と原料供給能力が低下し、原料供給用配管の中で原料が閉塞してしまう可能性がある。燃烧酸素の比率が上記より小さくなる（80を下回る）ともっとも高温となる火炎中央部から外れた部分に原料が広がって供給されることでフェライト化反応を粒子内部にまで十分に進めることができないため、溶射後のフェライト粉末に含まれる α -Fe₂O₃量が増加することがある。 α -Fe₂O₃量を必要以上に増加させないようにする観点から燃烧酸素：原料供給酸素＝95：5～85：15であることがより好ましく、燃烧酸素：原料供給酸素＝95：5～87：13であることがより好ましく、燃烧酸素：原料供給酸素＝95：5～89：11であることがもっとも好ましい。
- [0046] さらに、燃烧酸素は燃烧ガスが完全燃烧するのに必要な容量×0.85倍以上としておくことが好ましい。例えばプロパンガスを燃烧ガスとして使用する場合はプロパンガスの4.25倍以上の容量の燃烧酸素があることが好ましい。このようにしておくことで燃烧ガスが完全燃烧するのに必要な酸素よりも過剰な酸素が供給されても溶射火炎の温度低下を最小限に抑えつつ必要以上の α -Fe₂O₃量の発生を防ぐことができる。
- [0047] また燃烧ガス量比は1.05以上2.00以下であることが好ましい。ここで、燃烧ガス量比は、原料供給量（kg／時間）に対する正味の燃烧に使われる燃烧ガス量（Nm³／時間）の比であり、下記（2）式にしたがって求められる。
- [0048]

[数2]

$$\text{燃焼ガス量比} = \frac{\text{正味の燃焼に使われる燃焼ガス量 (Nm}^3\text{/時間)}}{\text{原料供給量 (kg/時間)}} \dots (2)$$

[0049] 正味の燃焼に使われる燃焼ガス量 (Nm³/時間) は、下記 (3) 式又は下記 (4) 式にしたがって求められる。

[0050] [数3]

$$\text{正味の燃焼ガス量} = \text{供給された酸素量} / 5 \dots (3)$$

(供給された燃焼ガス量 × 5 - 供給された酸素量 ≥ 0 の場合)

[数4]

$$\text{正味の燃焼ガス量} = \text{供給された燃焼ガス量} \dots (4)$$

(供給された燃焼ガス量 × 5 - 供給された酸素量 < 0 の場合)

[0051] 溶射によりフェライト化された粒子を大気雰囲気下で急冷及び凝固し、これをサイクロン又はフィルターによって回収して溶射物を得る。

[0052] <分級工程>

必要に応じて、得られた溶射物を分級してもよい。分級では、風力分級 (気流分級)、メッシュ分級、ふるい (篩) 分級などの公知の手法を用いて、所望の粒径に粒度調整すればよい。なお、サイクロン等の気流分級で粒径の大きい粒子と粒径の小さい粒子とを1つの工程の中で分離して回収することも可能である。このようにしてフェライト粉末を得ることができる。

[0053] 本実施形態によれば、組成及び $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 量が所定範囲内に限定されたフェライト粉末及びその製造方法が提供される。このフェライト粉末は磁気特性及び電気抵抗が高い。そのため充填率の高い樹脂組成物に適用しても、

高い耐電圧を維持できる。

[0054] フェライト樹脂複合材料

本実施形態のフェライト粉末をフェライト樹脂複合材料（樹脂組成物）に適用することができる。フェライト樹脂複合材料はフェライト粉末と樹脂とを含む。本実施形態のフェライト粉末をフィラーとして用いることで、フィラー充填率が高くても磁気特性及び耐電圧に優れた複合材料を得ることができる。

[0055] 複合材料を構成する樹脂として、例えば、エポキシ樹脂、ウレタン樹脂、アクリル樹脂、シリコン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂、フッ素樹脂及び／又はこれらの組み合わせなどが挙げられる。ここで、シリコン樹脂は、アクリル、ウレタン、エポキシ及び／又はフッ素等で変性した変性シリコン樹脂であってもよい。

[0056] 複合材料中の全固形分に対するフェライト粉末の割合は、50～95質量%が好ましく、80～95質量%がより好ましい。また複合材料中の全固形分に対する樹脂の割合は、5～50質量%が好ましく、5～20質量%がより好ましい。フェライト粉末や樹脂の割合を上記範囲内とすることで、複合材料中のフェライト粉末の分散安定性、並びに複合材料の保存安定性及び成形性が優れるとともに、複合材料を成形して得られる複合体（成形体）の機械的強度や電磁波遮蔽性能等の特性がより優れたものとなる。

[0057] 複合材料は、フェライト粉末及び樹脂以外の他の成分を含んでもよい。このような成分として、例えば、溶媒、充填剤（有機充填剤、無機充填剤）、可塑剤、酸化防止剤、分散剤、含量等の着色剤、熱伝導性粒子などが挙げられる。

[0058] このようなフェライト樹脂複合材料を電磁波シールド材、電子材料又は電子部品に適用することができる。電磁波シールド材、電子材料又は電子部品は、複合材料を公知の手法で成形して作製すればよい。成形手法は特に限定されるものではなく、例えば、圧縮成形、押出成形、射出成形、ブロー成形又はカレンダー成形が挙げられる。また、複合材料の塗膜を基体上に形成す

る手法であってもよい。

実施例

[0059] 本発明を、以下の実施例を用いて更に詳細に説明する。しかしながら本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

[0060] (1) フェライト粉末の作製

[例1]

<原料混合及び仮造粒工程>

原料として酸化鉄 (Fe_2O_3) と二酸化マンガン (MnO_2) とを用い、鉄 (Fe) とマンガン (Mn) のモル比が $Fe : Mn = 8 : 1$ となるように原料の秤量及び混合を行った。混合にはヘンシェルミキサーを用いた。得られた混合物を、ローラーコンパクターを用いて仮造粒して、仮造粒物とした。

[0061] <仮焼工程>

仮造粒した原料混合物 (仮造粒物) を仮焼して、仮焼成物とした。仮焼は、ロータリーキルンを用い、大気中 $900^\circ C \times 1$ 時間の条件で行った。

[0062] <本造粒工程>

得られた仮焼成物を粉碎及び造粒して造粒物 (本造粒物) とした。まず得られた仮焼成物を、乾式ビーズミル ($3 / 16$ インチ ϕ の鋼球ビーズ) を用いて粗粉碎した後、水を加えて、湿式ビーズミル (0.65 mm ϕ のジルコニアビーズ) を用いて微粉碎した。得られたスラリーは固形分濃度が 50 質量%であり、粉碎粉の粒径 (スラリー粒径) は $2.367 \mu m$ であった。得られたスラリーに分散剤としてポリカルボン酸アンモニウム塩をスラリー中固形分 25 kg に対して 60 cc の割合で加えてスラリー粘度を調整し、その後、スプレードライヤーを用いて造粒した。得られた造粒物は、体積平均粒径が $51.04 \mu m$ であり、炭素 (C) 量が 0.0511 質量%であった。

[0063] <溶射及び分級工程>

得られた造粒物を可燃性ガス燃焼炎中で溶射及び急冷した。溶射の際、プロパンガス流量と全酸素流量の比を $1 : 5.42$ とし、原料供給速度を燃焼

ガス量比で1.08とした。続いて冷却した粒子を気流の下流側に設けたサイクロンによって回収して溶射物を得た。さらに得られた溶射物から篩を用いて粗粉を取り除くとともに、気流分級により微粉を除去して、フェライト粉末を作製した。上記溶射において、燃烧酸素：原料供給酸素=90.8：9.2とした。なおフェライト粉末の製造条件を表1に示す。

[0064] [例2]

本造粒工程で、スラリーにポリカルボン酸アンモニウム塩をスラリー中固形分25kgに対して60ccの割合で加え、さらにバインダーとしてポリビニルアルコール(PVA)の10質量%水溶液を50ccの添加量で加えた。それ以外は例1と同様にしてフェライト粉末を作製した。本造粒工程で得られた造粒物は、体積平均粒径が51.84 μ mであり、炭素(C)量が0.0575質量%であった。

[0065] [例3]

本造粒工程で、スラリーにポリカルボン酸アンモニウム塩をスラリー中固形分25kgに対して10ccの割合で加え、さらにポリビニルアルコール(PVA)の10質量%水溶液を150ccの添加量で加えた。それ以外は例1と同様にしてフェライト粉末を作製した。本造粒工程で得られた造粒物は、体積平均粒径が50.55 μ mであり、炭素(C)量が0.0743質量%であった。

[0066] [例4]

本造粒工程で、スラリーにポリカルボン酸アンモニウム塩をスラリー中固形分25kgに対して10ccの割合で加え、さらにポリビニルアルコール(PVA)の10質量%水溶液を300ccの添加量で加えた。それ以外は例1と同様にしてフェライト粉末を作製した。本造粒工程で得られた造粒物は、体積平均粒径が50.70 μ mであり、炭素(C)量が0.0941質量%であった。

[0067] [例5(比較)]

本造粒工程で、スラリーにポリカルボン酸アンモニウム塩をスラリー中固

形分25kgに対して10ccの割合で加え、さらにポリビニルアルコール(PVA)の10質量%水溶液を600ccの添加量で加えた。それ以外は例1と同様にしてフェライト粉末を作製した。本造粒工程で得られた造粒物は、体積平均粒径が51.59 μ mであり、炭素(C)量が0.0988質量%であった。

[0068] [例6(比較)]

原料混合工程で、鉄(Fe)とマンガン(Mn)のモル比がFe:Mn=14:1となるように原料の秤量及び混合を行った。また本造粒工程で、スラリーに分散剤(ポリカルボン酸アンモニウム塩)を加えずにポリビニルアルコール(PVA)の10重量%水溶液を30ccの添加量で加えた。さらに溶射工程での原料供給速度を2.0kg/時間とした。それ以外は例1と同様にしてフェライト粉末を作製した。本造粒工程で得られた造粒物は、体積平均粒径が51.17 μ mであり、炭素(C)量が0.0561質量%であった。

[0069] [例7]

原料混合工程で、鉄(Fe)とマンガン(Mn)のモル比がFe:Mn=14:1となるように原料の秤量及び混合を行った。また本造粒工程で、スラリーに分散剤(ポリカルボン酸アンモニウム塩)を加えずにポリビニルアルコール(PVA)の10重量%水溶液を300ccの添加量で加えた。それ以外は例1と同様にしてフェライト粉末を作製した。本造粒工程で得られた造粒物は、体積平均粒径が50.97 μ mであり、炭素(C)量が0.0971質量%であった。

[0070] [例8]

原料混合工程で、鉄(Fe)とマンガン(Mn)のモル比がFe:Mn=3:1となるように原料の秤量及び混合を行った。また本造粒工程で、スラリーに分散剤(ポリカルボン酸アンモニウム塩)を加えずにポリビニルアルコール(PVA)の10重量%水溶液を30ccの添加量で加えた。それ以外は例1と同様にしてフェライト粉末を作製した。本造粒工程で得られた造

粒物は、体積平均粒径が $51.45\ \mu\text{m}$ であり、炭素(C)量が 0.0256 質量%であった。

[0071] [例9(比較)]

原料混合工程で、鉄(Fe)とマンガン(Mn)のモル比が $\text{Fe}:\text{Mn}=2.5:1$ となるように原料の秤量及び混合を行った。また本造粒工程で、スラリーにポリカルボン酸アンモニウム塩をスラリー中固形分 $25\ \text{kg}$ に対して $10\ \text{cc}$ の割合で加えた。それ以外は例1と同様にしてフェライト粉末を作製した。本造粒工程で得られた造粒物は、体積平均粒径が $50.54\ \mu\text{m}$ であり、炭素(C)量が 0.0549 質量%であった。

[0072] [例10(比較)]

原料混合工程で、鉄(Fe)とマンガン(Mn)のモル比が $\text{Fe}:\text{Mn}=2:1$ となるように原料の秤量及び混合を行った。また本造粒工程で、スラリーにポリカルボン酸アンモニウム塩をスラリー中固形分 $25\ \text{kg}$ に対して $10\ \text{cc}$ の割合で加えた。それ以外は例1と同様にしてフェライト粉末を作製した。本造粒工程で得られた造粒物は、体積平均粒径が $51.69\ \mu\text{m}$ であり、炭素(C)量が 0.0539 質量%であった。

[0073] [例11(比較)]

原料混合工程で、鉄(Fe)とマンガン(Mn)のモル比が $\text{Fe}:\text{Mn}=1:0$ となるように原料の秤量及び混合を行った。また本造粒工程で、スラリーにポリカルボン酸アンモニウム塩をスラリー中固形分 $25\ \text{kg}$ に対して $10\ \text{cc}$ の割合で加え、さらにポリビニルアルコール(PVA)の 10 重量%水溶液を $50\ \text{cc}$ の添加量で加えた。それ以外は例1と同様にしてフェライト粉末を作製した。本造粒工程で得られた造粒物は、体積平均粒径が $51.28\ \mu\text{m}$ であり、炭素(C)量が 0.0552 質量%であった。

[0074] [例12(比較)]

本造粒工程で、スラリーにポリカルボン酸アンモニウム塩をスラリー中固形分 $25\ \text{kg}$ に対して $60\ \text{cc}$ の割合で加え、さらにポリビニルアルコール(PVA)の 10 重量%水溶液を $50\ \text{cc}$ の添加量で加えた。また溶射後の

分級工程で粗粉除去に用いる篩の目開きを変えるとともに、篩を用いて微粉を除去した。それ以外は例1と同様にしてフェライト粉末を作製した。本造粒工程で得られた造粒物は、体積平均粒径が $51.84\ \mu\text{m}$ であり、炭素(C)量が 0.0575 質量%であった。

[0075] [例13 (比較)]

溶射工程で、バグフィルターによって粒子を回収して溶射物を得た。また分級工程で溶射物から気流分級により粗粉を取り除いたが、微粉除去は行わなかった。それ以外は例12と同様にしてフェライト粉末を作製した。本造粒工程で得られた造粒物は、体積平均粒径が $51.84\ \mu\text{m}$ であり、炭素(C)量が 0.0575 質量%であった。

[0076] [例14]

溶射後の分級工程で溶射物から気流分級により粗粉及び微粉を除去した。それ以外は例12と同様にしてフェライト粉末を作製した。本造粒工程で得られた造粒物は、体積平均粒径が $51.84\ \mu\text{m}$ であり、炭素(C)量が 0.0575 質量%であった。

[0077] [例15]

溶射後の分級工程で粗粉除去に用いる篩の目開きをさらに変えた。それ以外は例12と同様にしてフェライト粉末を作製した。本造粒工程で得られた造粒物は、体積平均粒径が $51.84\ \mu\text{m}$ であり、炭素(C)量が 0.0575 質量%であった。

[0078] (2) フェライト粉末の評価

例1～例15のフェライト粉末について、以下に示す評価を行った。

[0079] <成分分析 - 金属成分量>

フェライト粉末の金属成分含有量を化学分析(ICP)により求めた。まず試料(フェライト粉末) $0.2\ \text{g}$ を秤量し、これに純水 $60\ \text{m l}$ と $1\ \text{N}$ の塩酸 $20\ \text{m l}$ 及び $1\ \text{N}$ の硝酸 $20\ \text{m l}$ を加えた後に加熱して、試料を完全溶解させた水溶液を準備した。得られた水溶液をICP分析装置(株式会社島津製作所、ICPS-10001V)にセットし、金属成分含有量を測定し

た。

[0080] <成分分析 - 炭素量>

フェライト粉末の炭素含有量を赤外線吸収法で測定した。具体的にはフェライト粉末1gを酸素気流中で燃焼させて、フェライト粉末に含まれる炭素を二酸化炭素に変えた。赤外線吸収検出器（LECOジャパン合同会社、炭素硫黄分析装置CS200型）を用いて二酸化炭素の赤外吸収量を測定し、この吸収量から炭素含有量を算出した。

[0081] <成分分析 - 残留炭素化合物>

フェライト粉末の残留炭素化合物を高分解能質量分析計（GC/MS）を用いて分析した。具体的にはフェライト粉末5gを秤量し、内容積200mlのビーカーに入れ、さらにメチルエチルケトン（MEK）500mlを加え、超音波処理を5分間施してフェライト粉末に付随する有機成分を抽出した。抽出したMEK溶液をフィルター濾過し、得られた濾過液を検液とした。高分解能質量分析計（GC/MS）の分析条件を以下に示す。

- [0082] - ガスクロマトグラフィー：Agilent Technologies, 6890N
- 質量分析計：Agilent Technologies, 5973N
- カラム：Agilent Technologies, DB. 5MS (膜厚0.25 μ m)
- 加熱導入装置：Parkin Elmer, TurboMatrix 650ATD
- 温度条件：50 $^{\circ}$ C (2分) から280 $^{\circ}$ C (18分)
- 昇温速度：20 $^{\circ}$ C/分
- キャリアガス流量：ヘリウム1ml/分
- 注入法：スプリットレス0.5分
- 注入口温度：280 $^{\circ}$ C
- インターフェイス：280 $^{\circ}$ C
- 測定質量範囲：m/z 29~600

- 注入量：1 μ l

[0083] 得られた分析結果に基づき炭素化合物を同定した。同定を次のようにして行った。解析装置 (Agilent Technologies, 5973 N) を用いてTICクロマトグラム上で装置由来及びMEK由来の検出ピークを排除し、残存した検出ピークそれぞれに対してライブラリー検索を行った。質量スペクトルパターンでライブラリー一致率が最も高い化合物を、フェライト粉末の残留炭素化合物として同定した。

[0084] <結晶相>

フェライト粉末をX線回折法により分析して、粉末中の結晶相の同定を行った。結晶相のうちスピネル相 (Fe_3O_4 、 $\text{MnO} \cdot \text{Fe}_2\text{O}_3$) と $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 相の含有割合を求めた。分析条件は以下に示すとおりとした。

[0085] - X線回折装置：パナリティカル社製 X'pert MPD (高速検出器含む)

- 線源：Co-K α

- 管電圧：45 kV

- 管電流：40 mA

- スキャン速度：0.002° / sec (連続スキャン)

- スキャン範囲 (2θ)：15~90°

[0086] さらに分析結果を解析して、フェライト粉末の結晶相のうちスピネル相 (Fe_3O_4 、 $\text{MnO} \cdot \text{Fe}_2\text{O}_3$ 等) と $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 相の含有割合を求めた。解析は次のようにして行った。すなわち解析ソフトウェア (パナリティカル社、HighScore Plus 3.0) を用いてバックグラウンドとCo-K β 線のピークを除去したのちプロファイルのピークを自動で検出した。検出した各ピークについて半値幅と位置をリートベルト解析で最適化 (精密化) し、得られた結果に基づきスピネル相と $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 相の含有割合を算出した。

[0087] <粒度分布>

フェライト粉末の粒度分布を測定した。まず試料10g及び水80mlを

100mlのビーカーに入れ、分散剤としてヘキサメタリン酸ナトリウムを2滴添加した。次いで、超音波ホモジナイザー（株式会社エスエムテ、UH-150型）を用いて分散を行った。このとき、超音波ホモジナイザーの出力レベルを4に設定し、20秒間の分散を行った。その後、ビーカー表面にできた泡を取り除き、レーザー回折式粒度分布測定装置（島津製作所株式会社、SALD-7500nano）に導入して測定を行った。この測定により、体積粒度分布における10%径（D10）、50%径（体積平均粒子径、D50）、90%径（D90）及び最大径（Dmax）を求めた。測定条件は、ポンプスピード7、内蔵超音波照射時間30、屈折率1.70-050iとした。

[0088] <BET比表面積>

フェライト粉末のBET比表面積を、比表面積測定装置（株式会社マウンテック、Macsoorb HM model-1208）を用いて測定した。まず得られたフェライト粉末約10gを葉包紙に載せ、真空乾燥機で脱気して真空度が-0.1MPa以下であることを確認した。その後、200℃で2時間加熱することにより、粒子表面に付着している水分を除去した。水分除去したフェライト粉末を測定装置専用の標準サンプルセルに約0.5~4g入れ、精密天秤で正確に秤量した。次いで秤量したフェライト粒子を測定装置の測定ポートにセットして測定を行った。測定は1点法で行った。測定雰囲気は、温度10~30℃、相対湿度20~80%（結露なし）とした。

[0089] <タップ密度>

フェライト粉末のタップ密度を、USPタップ密度測定装置（ホソカワミクロン株式会社、パウダテスタPT-X）を用いて、JIS Z 2512-2012に準拠して測定した。

[0090] <形状係数（SF-1）>

フェライト粉末の平均形状係数（SF-1）を次のようにして求めた。粒子画像分析装置（Malvern Panalytical社、モフォロギ

G3) を用いてフェライト粉末を解析した。解析の際には粉末中30000粒子について1粒子ごとの画像解析を行い、最大長（水平フェレ径）R（単位： μm ）、投影周囲長L（単位： μm ）及び投影面積S（単位： μm^2 ）を自動測定した。次いで下記式（1）にしたがって各粒子についてのSF-1を算出し、その平均値をフェライト粉末のSF-1とした。

[0091] [数5]

$$SF-1 = \frac{R^2}{S} \times \frac{\pi}{4} \times 100 \dots (1)$$

[0092] <磁気特性 - 飽和磁化、残留磁化及び保磁力>

フェライト粉末の磁気特性（飽和磁化、残留磁化及び保磁力）を、次のようにして測定した。まず内径5mm、高さ2mmのセルに試料を詰めて、振動試料型磁気測定装置（東英工業株式会社、VSM-C7-10A）にセットした。印加磁場を加えて5kOeまで掃引し、次いで印加磁場を減少させて、ヒステリシスカーブを描かせた。得られたカーブのデータより、試料の飽和磁化（ σ_s ）、残留磁化（ σ_r ）及び保磁力（Hc）を求めた。

[0093] <磁気特性 - 透磁率>

フェライト粉末の透磁率を、RFインピーダンス／マテリアル・アナライザ（アジレントテクノロジー株式会社、E4991A）と磁性材料測定電極（16454A）を用いて測定した。まずフェライト粉末9gとバインダー樹脂（Kynar301F：ポリフッ化ビニルデン）1gをポリエチレン製容器（内容量100ml）に入れ、ボールミルを用いて、回転数100rpmの条件で攪拌及び混合を行った。得られた混合物0.6g程度をダイス（内径4.5mm、外径13mm）に充填し、プレス機を用いて40MPaの圧力で1分間の加圧を行って成形体とした。得られた成形体を、熱風乾燥機を用いて140℃で2時間の加熱硬化を行って測定用サンプルとした。得られた測定用サンプルをRFインピーダンス／マテリアル・アナライザにセットし、事前に測定しておいた測定用サンプルの外径、内径及び高さを入力し

た。振幅 100 mV、測定周波数 1 MHz ~ 3 GHz の範囲を対数スケールで掃引することで測定を行った。周波数 100 MHz での複素透磁率の実部 μ' 及び虚部 μ'' を求め、損失係数 ($\tan \delta$) を下記式 (5) にしたがって算出した。

[0094] [数6]

$$\tan \delta = \frac{\mu''}{\mu'} \dots (5)$$

[0095] <電気特性 - 体積抵抗>

底辺に電極がついたテフロン（登録商標）製容器（内径 17.6 mm）と上部電極を用いてフェライト粉末の体積抵抗を測定した。まず測定時の高さが 4 mm となるようにフェライト粉末を容器に投入・加圧し、その上部に電極を取り付けた。測定は上部電極の上に 1 kg の荷重をかけた状態で行い、絶縁抵抗計（ケースレーインストルメンツ、6517 A）を用いて 50 V 刻み、5 秒間隔で階段状に 1000 V まで電圧を上げながら流れる電流を求めた。100 V 電圧下での電流と印加電圧の関係を求め、これから体積抵抗を算出した。

[0096] <電気特性 - ブレークダウン電圧>

体積抵抗測定時に、測定装置（絶縁抵抗計）の出力電流である 20 mA を超える直前の印加電圧を求め、この印加電圧をブレークダウン電圧 (V_{BD}) とした。

[0097] <樹脂硬化性能 - 粘度>

フェライト粉末を樹脂組成物に適用し、樹脂組成物の粘度を測定した。まずフェライト粉末 70 質量部と主剤（エポキシ系樹脂）27 質量部と硬化剤 3 質量部とを自転公転型混合器を用いて分散混合して、樹脂組成物を作製した。得られた樹脂について作製直後の粘度と 5 秒間経過後の粘度を、B 型粘度計を用いて測定した。なお例 5 は体積抵抗が低かったため、樹脂硬化性能の評価は行わなかった。

[0098] <樹脂硬化性能 - 硬化時間>

得られた樹脂組成物を $120^{\circ}\text{C} \times 5$ 分間の条件で乾燥させた。乾燥後の樹脂組成物を 180°C で加熱して硬化を促し、樹脂硬化度が 95% 以上となる硬化時間を求めた。得られた硬化時間に基づき、以下に示すように格付けした。

[0099] A : 硬化時間が $s t d \times 1.00$ 以上 $s t d \times 2.00$ 未満

B : 硬化時間が $s t d \times 2.00$ 以上 $s t d \times 3.00$ 未満

[0100] ここで、樹脂硬化度とは、樹脂の硬化反応の進行の度合い（反応率）を示すものである。未反応材料の樹脂硬化度は 0% であり、反応後材料の樹脂硬化度は 100% である。樹脂硬化度は、FT-IR（フーリエ変換型赤外分光）装置を用いて求めた。具体的には、樹脂に赤外線を照射し、透過又は分光させて FT-IR スペクトルを得、このスペクトルを用いて樹脂の硬化反応の進行を解析した。そして未反応材料と 100% 反応後材料と測定対象の樹脂とのスペクトルを比較し、最も違いが見られる領域での各試料のピーク強度を比較することで樹脂硬化度を求めた。例 1 の硬化時間を基準（ $s t d$ ）として、各試料の硬化時間を算出した。

[0101] (3) 結果

例 1～例 15 について得られた評価結果を表 2 及び表 3 に示す。例 1～例 4、例 7、例 8、例 14 及び例 15 が実施例サンプルであり、例 5、例 6 及び例 9～例 13 が比較例サンプルである。

[0102] 表 2 及び表 3 に示されるように、いずれのサンプルもフェライト粉末が真球状粒子から構成されていた。しかしながら比較例たる例 5 は、フェライト粉末が $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ を含まず、その結果、体積抵抗及びブレイクダウン電圧が低く、耐電圧の点で問題があった。

[0103] 一方で比較例たる例 6、例 11 及び例 13 は、 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 量が過剰であり、その結果、飽和磁化（ σ_s ）が低かった。その上、例 13 は体積平均粒径が小さく樹脂組成物の粘度が高すぎるとともに樹脂硬化性能に劣る問題があった。比較例たる例 9～例 11 は、フェライト粉末の鉄（Fe）含有量及

び／又はマンガン（Mn）含有量が本実施形態の範囲外である結果、磁気特性（飽和磁化、透磁率、損失係数）の点で問題があった。特にマンガン（Mn）を殆ど含まないとともに $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 量が過剰である例11は、飽和磁化（ σ_s ）が低い一方で保磁力（Hc）が高く、そのため透磁率実部（ μ' ）が小さく損失係数（ $\tan\delta$ ）が増大した。比較例たる例12は、体積平均粒子径（D50）が過度に大きいため、損失係数（ $\tan\delta$ ）が高くブレークダウン電圧が低い問題があった。

[0104] これに対して実施例たる例1～例4、例7、例8、例14及び例15は、磁気特性（飽和磁化、保磁力、透磁率、損失係数）の点で優れるとともに、体積抵抗及び耐電圧（ブレークダウン電圧）が高かった。特に例1～例3、例8及び例14は測定時にブレークダウンせず、耐電圧の点で非常に優れていた。また例1～例4、例7、例8及び例15は、フェライト粉末を樹脂組成物に適用したときの粘度が低かった。そのためフィラー充填率の高い樹脂組成物への適用に好適であることが分かった。

[0105]

[表1]

表1 フェライト粉末の製造条件及び造粒物の特性

	原料混合			本造粒				造粒物の物性				溶射				分級	
	Fe (mol)	Mn (mol)		スラリー 粒径 (μm)	スラリー 濃度 (mass%)	分散剤 添加量 (cc)	バインダー 添加量 (cc)	炭素量 (mass%)	D50 (μm)	プロパン量 (m^3/hr)	酸素量 (m^3/hr)	原料 供給速度 (kg/hr)	回収方法	粗粉側	微粉側		
例1	8	1		2.367	50	60	0	0.0511	51.04	7	38	6.5	サイクロン	ふるい	気流分級		
例2	8	1		2.653	50	60	50	0.0575	51.84	7	38	6.5	サイクロン	ふるい	気流分級		
例3	8	1		3.191	50	10	150	0.0743	50.55	7	38	6.5	サイクロン	ふるい	気流分級		
例4	8	1		3.041	50	10	300	0.0941	50.70	7	38	6.5	サイクロン	ふるい	気流分級		
例5*	8	1		2.521	50	10	600	0.0988	51.59	7	38	6.5	サイクロン	ふるい	気流分級		
例6*	14	1		2.008	50	0	30	0.0561	51.17	7	38	2.0	サイクロン	ふるい	気流分級		
例7	14	1		2.008	50	0	300	0.0971	50.97	7	38	6.5	サイクロン	ふるい	気流分級		
例8	3	1		2.517	50	0	30	0.0256	51.45	7	38	6.5	サイクロン	ふるい	気流分級		
例9*	2.5	1		1.765	50	10	0	0.0549	50.54	7	38	6.5	サイクロン	ふるい	気流分級		
例10*	2	1		1.739	50	10	0	0.0539	51.69	7	38	6.5	サイクロン	ふるい	気流分級		
例11*	1	0		0.327	50	10	50	0.0552	51.28	7	38	6.5	サイクロン	ふるい	気流分級		
例12*	8	1		2.653	50	60	50	0.0575	51.84	7	38	6.5	サイクロン	ふるい	ふるい		
例13*	8	1		2.653	50	60	50	0.0575	51.84	7	38	6.5	バグフィルター	気流分級	無し		
例14	8	1		2.653	50	60	50	0.0575	51.84	7	38	6.5	バグフィルター	気流分級	気流分級		
例15	8	1		2.653	50	60	50	0.0575	51.84	7	38	6.5	サイクロン	ふるい	ふるい		

注1) 「*」は比較例を示す。

[0106] [表2]

表2 フェライト粉末の評価結果

	フェライト粉末																
	成分分析					XRD			体積粒度分布					BET (m ² /g)	タップ 密度 (g/cm ³)	粒子形状	
	Fe (mass%)	Mn (mass%)	炭素 (mass%)	残留 炭素化合物	スピネル相 (mass%)	α-Fe ₂ O ₃ (mass%)	D10 (μm)	D50 (μm)	D90 (μm)	Dmax (μm)	形状	SF-1					
例1	63.53	7.78	0.00224	EA	95.5	4.5	1.96	4.06	9.08	21.63	0.62	2.78	真球状	101			
例2	61.80	7.38	0.00251	EA, PB, SB	96.3	3.7	1.62	3.73	9.86	27.31	0.70	2.89	真球状	101			
例3	63.45	8.05	0.00381	EA, PB, SB	97.2	2.8	1.71	3.52	8.81	21.63	0.68	2.69	真球状	102			
例4	63.07	8.03	0.00565	EA, PB, SB	98.9	1.1	1.57	3.34	8.55	21.63	0.64	2.59	真球状	102			
例5 *	63.52	7.86	0.01120	EA, PB, SB	100.0	0.0	1.74	3.29	8.78	21.63	0.61	2.86	真球状	102			
例6 *	66.20	5.33	0.00258	EA, PB, SB	85.7	14.3	1.66	3.78	9.18	27.31	0.53	3.00	真球状	102			
例7	66.31	5.28	0.00458	EA, PB, SB	85.7	6.9	1.64	3.57	8.98	21.63	0.55	3.03	真球状	102			
例8	57.05	13.73	0.00259	EA, PB, SB	98.4	1.6	1.89	3.94	9.28	21.63	0.62	2.95	真球状	101			
例9 *	51.73	18.00	0.00230	EA	96.3	3.7	1.73	3.46	8.81	21.63	0.59	2.87	真球状	101			
例10 *	48.18	20.77	0.00321	EA	96.5	3.5	1.70	3.23	8.21	21.63	0.63	2.88	真球状	101			
例11 *	70.00	0.01	0.00276	EA, PB, SB	76.4	23.5	1.61	3.82	9.45	27.31	0.61	2.96	真球状	101			
例12 *	63.41	7.82	0.00244	EA, PB, SB	98.7	1.3	12.52	21.42	33.62	54.92	0.25	3.57	真球状	101			
例13 *	62.65	8.27	0.01814	EA, PB, SB	92.1	7.9	0.10	0.50	1.60	5.35	4.70	1.19	真球状	102			
例14	62.38	8.10	0.00721	EA, PB, SB	94.1	5.9	0.51	0.99	1.77	5.35	1.89	1.77	真球状	101			
例15	63.22	7.95	0.00231	EA, PB, SB	98.3	1.5	1.91	10.04	24.26	54.92	0.41	3.48	真球状	101			

注1) 「*」は比較例を示す。

注2) EA: エルカ酸アミド、PB: パルミチン酸ブチル、SB: ステアリン酸ブチル

[0107] [表3]

表3 フェライト粉末及び樹脂組成物の評価結果

	フェライト粉末										樹脂組成物				
	磁気特性(VSM,5kOe)					透磁率(100MHz)					ブレークダウン電圧 (V)	粘度		樹脂硬化性能	
	σ_s (emu/g)	σ_r (emu/g)	Hc (Oe)	μ'	μ''	tan δ	体積抵抗 ($\Omega \cdot \text{cm}$)	初期	5秒後	硬化時間		格付			
例1	82.24	2.83	41.57	6.56	0.18	0.03	4.5×10^8	60000	50000	std	A				
例2	83.00	3.28	46.88	6.50	0.34	0.05	3.3×10^8	75000	60000	std	A				
例3	80.80	2.95	43.00	6.90	0.39	0.06	2.1×10^8	70000	55000	std $\times 1.15$	A				
例4	80.84	2.66	39.12	6.90	0.35	0.05	1.3×10^8	65000	55000	std $\times 1.50$	A				
例5*	81.77	2.76	40.71	6.89	0.32	0.05	7.9×10^7	樹脂組成物の評価は行わなかった。							
例6*	69.28	3.26	53.11	4.89	0.03	0.01	7.5×10^8	50000	40000	std	A				
例7	81.08	2.76	41.21	6.18	0.05	0.01	4.1×10^8	50000	40000	std $\times 1.20$	A				
例8	81.80	2.27	32.46	8.13	1.01	0.12	1.8×10^8	60000	50000	std	A				
例9*	78.26	2.07	30.06	8.26	1.16	0.14	1.5×10^8	60000	50000	std	A				
例10*	74.09	2.04	29.35	7.96	1.22	0.15	1.2×10^8	65000	55000	std $\times 1.10$	A				
例11*	61.40	4.40	94.30	1.65	0.03	0.21	5.9×10^8	65000	50000	std $\times 1.10$	A				
例12*	87.84	2.91	39.76	6.73	0.87	0.13	1.8×10^8	20000	16000	std $\times 1.10$	A				
例13*	77.50	5.37	62.31	8.94	0.40	0.04	6.8×10^8	120000	100000	std $\times 2.10$	B				
例14	79.47	2.86	42.17	6.29	0.18	0.03	5.6×10^8	100000	75000	std $\times 1.35$	A				
例15	87.52	2.76	39.50	7.26	0.87	0.12	1.8×10^8	40000	30000	std $\times 1.80$	A				

注1)「*」は比較例を示す。

請求の範囲

- [請求項1] 真球状フェライト粒子で構成されるフェライト粉末であって、
前記フェライト粉末が、鉄 (Fe) : 55.0~70.0質量%及びマンガン (Mn) : 3.5~18.5質量%を含有し、 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 量が0.0質量%超7.5質量%以下であり、
前記フェライト粉末は、その体積平均粒子径 (D50) が15.0 μm 以下である、フェライト粉末。
- [請求項2] 前記 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 量が3.0質量%以上6.0質量%以下である、請求項1に記載のフェライト粉末。
- [請求項3] 前記体積平均粒子径 (D50) が2.0 μm 以上である、請求項1又は2に記載のフェライト粉末。
- [請求項4] 前記フェライト粉末は、その平均形状係数SF-1が100~110である、請求項1~3のいずれか一項に記載のフェライト粉末。
- [請求項5] 前記フェライト粉末は、その炭素 (C) 含有量が0.12質量%以下である、請求項1~4のいずれか一項に記載のフェライト粉末。
- [請求項6] 前記フェライト粉末は、その体積抵抗が $1.0 \times 10^8 \Omega \cdot \text{cm}$ 以上である、請求項1~5のいずれか一項に記載のフェライト粉末。
- [請求項7] 請求項1~6のいずれか一項に記載のフェライト粉末の製造方法であって、以下の工程：
フェライト原料を混合して原料混合物を作製する工程、
前記原料混合物を仮焼して仮焼成物とする工程、
前記仮焼成物を粉碎及び造粒して造粒物とする工程、及び
前記造粒物を溶射して溶射物とする工程を有し、
前記造粒物の炭素含有量を0.001~0.095質量%とし、溶射工程で、原料供給速度を2.5~9.0 kg/時間、燃焼ガス流量を3~10 m³/時間、酸素流量を18~60 m³/時間とする、方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/002835

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
 C01G 49/00(2006.01)i; H01F 1/34(2006.01)i
 FI: C01G49/00 A; H01F1/34 140
 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)
 C01G49/00; H01F1/34

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

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

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2018/182021 A1 (POWDERTECH CO., LTD.) 04 October 2018 (2018-10-04) entire text	1-7
A	WO 2017/212997 A1 (POWDERTECH CO., LTD.) 14 December 2017 (2017-12-14) entire text	1-7
A	JP 2017-178718 A (POWDERTECH CO., LTD.) 05 October 2017 (2017-10-05) entire text	1-7
A	JP 2015-190995 A (POWDERTECH CO., LTD.) 02 November 2015 (2015-11-02) entire text	1-7

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

* Special categories of cited documents:	“I” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date	“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	“&” document member of the same patent family
“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 01 April 2021 (01.04.2021)	Date of mailing of the international search report 13 April 2021 (13.04.2021)
---	--

Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.
--	---

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application no.
PCT/JP2021/002835

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
WO 2018/182021 A1	04 Oct. 2018	US 2020-0143966 A1 entire text EP 003604227 A1 entire text CN 110402238 A	
WO 2017/212997 A1	14 Dec. 2017	US 2019-0300379 A1 entire text EP 003468326 A1 entire text CN 109315083 A	
JP 2017-178718 A	05 Oct. 2017	KR 10-2019-0015239 A US 2019-0161362 A1 entire text EP 003438054 A1 entire text CN 108779001 A	
JP 2015-190995 A	02 Nov. 2015	KR 10-2-18-0119581 A US 2015-0277256 A1 entire text	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C01G 49/00(2006.01)i; H01F 1/34(2006.01)i FI: C01G49/00 A; H01F1/34 140		
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）） C01G49/00; H01F1/34 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
A	WO 2018/182021 A1 (パウダーテック株式会社) 04.10.2018 (2018-10-04) 全文	1-7
A	WO 2017/212997 A1 (パウダーテック株式会社) 14.12.2017 (2017-12-14) 全文	1-7
A	JP 2017-178718 A (パウダーテック株式会社) 05.10.2017 (2017-10-05) 全文	1-7
A	JP 2015-190995 A (パウダーテック株式会社) 02.11.2015 (2015-11-02) 全文	1-7
<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 01.04.2021	国際調査報告の発送日 13.04.2021	
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） 廣野 知子 4G 9266 電話番号 03-3581-1101 内線 3416	

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/JP2021/002835

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2018/182021	A1	04.10.2018	US	2020-0143966	A1	
				全文			
				EP	003604227	A1	
				全文			
				CN	110402238	A	

WO	2017/212997	A1	14.12.2017	US	2019-0300379	A1	
				全文			
				EP	003468326	A1	
				全文			
				CN	109315083	A	
				KR	10-2019-0015239	A	

JP	2017-178718	A	05.10.2017	US	2019-0161362	A1	
				全文			
				EP	003438054	A1	
				全文			
				CN	108779001	A	
				KR	10-2-18-0119581	A	

JP	2015-190995	A	02.11.2015	US	2015-0277256	A1	
				全文			
