

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第3640342号
(P3640342)

(45) 発行日 平成17年4月20日(2005.4.20)

(24) 登録日 平成17年1月28日(2005.1.28)

(51) Int.Cl.⁷

C O 4 B 35/495

H O 1 B 3/12

F I

C O 4 B 35/00 J

H O 1 B 3/12 3 3 5

請求項の数 3 (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願2000-149551 (P2000-149551) (22) 出願日 平成12年5月22日 (2000.5.22) (65) 公開番号 特開2001-335365 (P2001-335365A) (43) 公開日 平成13年12月4日 (2001.12.4) 審査請求日 平成13年4月10日 (2001.4.10)	(73) 特許権者 000003067 T D K株式会社 東京都中央区日本橋1丁目13番1号 (74) 代理人 100081606 弁理士 阿部 美次郎 (72) 発明者 高橋 毅 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 審査官 三崎 仁
前置審査	最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 誘電体組成物の設計方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

誘電体組成物を設計する手段であって、前記誘電体組成物が規則配列を有する結晶構造の格子エネルギーを最小になるよう結晶構造を最適化するステップと、前記誘電体組成物が不規則配列を有する結晶構造、もしくは、該不規則配列を近似したモデル構造の格子エネルギーを、最小になるよう結晶構造を最適化するステップとを含み、最適化した前記規則配列構造の単位原子当たり格子エネルギー E_{ORD} と、最適化した前記不規則配列構造、もしくは、該不規則配列を近似したモデル構造の単位原子当たり格子エネルギー E_{DIS} の差の絶対値である、 $|E_{DIS-ORD}|$ を求めることから、誘電体組成物のQ値を見積もる手段を講じ、Q値の高い誘電体組成物を設計することを特徴とする誘電体組成物の設計方法。

10

【請求項2】

請求項1に記載された誘電体組成物の設計方法であって、誘電体組成物 $A^{p+} \times (B^{q+} y B^{r+} z O^{2-} w)$ が

$$w = 0.5 \times (p \times x + (q \times y + r \times (1 - y)) \times z)$$

かつ

$$0 < y < 1$$

なる関係をもち、該誘電体組成物の規則配列構造は、前記誘電体組成物のBサイトによる、 $y : (1 - y)$ の規則配列から形成されていることを特徴とする、誘電体組成物の設計方法。

【請求項3】

20

請求項 1 または 2 に記載された誘電体組成物の設計方法にあって、複合ペロブスカイト形誘電体組成物 $A^{2+} (B^{2+}_{1/3} B^{5+}_{2/3}) O^{2-}_3$ を設計することを特徴とする、誘電体組成物の設計方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明が属する技術分野】

本発明は主として準マイクロ波帯やマイクロ波帯、ミリ波帯、サブミリ波帯等の高周波領域において用いられる、誘電体組成物に関する。本発明の好ましい適用例は、衛星通信機器や移動体通信機器、無線通信機器、高周波通信機器、それらの基地局等に用いられる、共振器および発振器、フィルタ、回路基板等を構成する高周波用誘電体組成物に関するものである。

10

【0002】

【従来の技術】

準マイクロ波帯やマイクロ波帯を中心とする現在の高周波通信において、共振器や発振器、フィルタを構成する基本技術として、高周波用誘電体組成物が用いられている。一般的に、この高周波用誘電体組成物に求められる特性は、共振周波数の温度係数が 0 に近く、高い比誘電率と高い Q 値を有していることである。

【0003】

従来、この種の高周波用誘電体組成物として、特開平 7 - 37423 に開示された Ba - Nd - Ti - Bi - Nb - Mn - O 系材料や特願平 11 - 70005 で提案された Ba - O - Nd₂O₃ - TiO₂ - B₂O₃ - ZnO₂ - CuO 系材料等が用いられてきた。特に、高い Q 値を有する材料として、複合ペロブスカイト形誘電体組成物が知られている。

20

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

最近では、高速通信や通信チャネル数の増大に対応して、使用周波数帯の高周波化が進んでいる。このような高周波化に応じ、誘電体組成物に対してはさらに高い Q 値が求められつつある。しかしながら、従来の高周波用誘電体組成物では、ミリ帯やサブミリ波帯において、実用的レベルの高い Q 値を有していないのが現状であり、その損失によりバッテリーが長時間使用できないという問題が、電子部品や携帯端末の省電力化を妨げていた。とりわけ、誘電体組成物においては、使用周波数 f と Q 値の積である Qf 値が一定になる傾向があるため、使用周波数の増大は Q 値を反比例で減少させてしまう。

30

【0005】

さらに、前述の課題を克服すべく、高い Q 値を発現する誘電体組成物を新たに開発しようとしても、どのような誘電体組成物が高い Q 値を有する可能性があるのか全く分からなかった。新規誘電体組成物を開発する指針が存在しないため、様々な元素を組み合わせるという検討しか実行できず、膨大な開発時間と開発コストが無駄に費やされてきた。

【0006】

従来の方法によって、Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 24 1985 に開示された Ba(Co_{1/3}Nb_{2/3})O₃ 系材料 (Qf 値は 60000 GHz)、J. Am. Ceram. Soc. Vol. 66 1983 に示された Ba(Co_{1/3}Ta_{2/3})O₃ 系材料 (Qf 値は 46200 GHz) や Ba(Ni_{1/3}Ta_{2/3})O₃ 系材料 (Qf 値は 49700 GHz)、Ferroelectrics Vol. 49 1983 に記載された Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃ 系材料 (Qf 値は 55400 GHz) や Ba(Mn_{1/3}Nb_{2/3})O₃ 系材料 (Qf 値は 900 GHz)、Ba(Zn_{1/3}Nb_{2/3})O₃ 系材料 (Qf 値は 86900 GHz)、特公平 7 - 84347 に提案された Ba(Mg_{1/3}Ta_{2/3})O₃ 系材料 (Qf 値は 200000 GHz)、Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 23 1984 に開示された Ba(Mn_{1/3}Ta_{2/3})O₃ 系材料 (Qf 値は 109200 GHz)、J. Mater. Res. Vol. 12 1997 に示された Ba(Ni_{1/3}Nb_{2/3})O₃ 系材料 (Qf 値は 48000 GHz)、特公平 5 - 5778 に示された Ba(Zn_{1/3}Ta_{2/3})O₃ 系材料 (Qf 値は 169200 G

40

50

H z) が開発されてきた。前述の既存の高周波用誘電体組成物に関して、誘電特性の比較例を表 1 にまとめた。

【 0 0 0 7 】

【表 1】

組成物	ϵ_r	Qf (GHz)	τ_f (ppm/°C)
Ba(Co _{1/3} Nb _{2/3})O ₃	31	60000	-6
Ba(Co _{1/3} Ta _{2/3})O ₃	25	46200	-16
Ba(Mg _{1/3} Nb _{2/3})O ₃	32	55400	33
Ba(Mg _{1/3} Ta _{2/3})O ₃	24	200000	4
Ba(Mn _{1/3} Nb _{2/3})O ₃	39	900	27
Ba(Mn _{1/3} Ta _{2/3})O ₃	28	109200	40
Ba(Ni _{1/3} Nb _{2/3})O ₃	31	48000	-18
Ba(Ni _{1/3} Ta _{2/3})O ₃	23	49700	-18
Ba(Zn _{1/3} Nb _{2/3})O ₃	41	86900	31
Ba(Zn _{1/3} Ta _{2/3})O ₃	30	168000	0

10

20

【 0 0 0 8 】

しかしながら、それらの材料では Q f 値が 2 0 0 0 0 0 G H z 程度までの組成物、または、その不純物や製造方法などを変えた改善しか行われていなかった。また、誘電体組成物結晶の原子配位構造、あるいは、それと Q f 値との相関を顕在化させることは、今まで実施されていない。

【 0 0 0 9 】

そこで、本発明の課題は、上記の問題を解決し、安価で短時間に、高周波領域において高い Q 値を実現する誘電体組成物を新たに開発することができる、誘電体組成物の設計方法を提供することにある。

30

【 0 0 1 0 】

【課題を解決するための手段】

上述の目的は下記 (1) ~ (3) の本発明により達成される。

【 0 0 1 1 】

(1) 誘電体組成物を設計する手段であって、前記誘電体組成物が規則配列を有する結晶構造の格子エネルギーを最小になるよう結晶構造を最適化するステップと、前記誘電体組成物が不規則配列を有する結晶構造、もしくは、該不規則配列を近似したモデル構造の格子エネルギーを、最小になるよう結晶構造を最適化するステップとを含み、最適化した前記規則配列構造の単位原子当たり格子エネルギー E_{ORD} と、最適化した前記不規則配列構造、もしくは、該不規則配列を近似したモデル構造の単位原子当たり格子エネルギー E_{DIS} の差の絶対値である、 $|E_{DIS-ORD}|$ を求めることから、誘電体組成物の Q 値を見積もる手段を講じ、Q 値の高い誘電体組成物を設計することを特徴とする誘電体組成物の設計方法。

40

【 0 0 1 2 】

(2) (1) に記載された誘電体組成物の設計方法にあって、誘電体組成物

$A^{p+} \times (B^{q+} y B^{r+}_{1-y}) z O_{2-w}$ が

$w = 0.5 \times (p \times x + (q \times y + r \times (1 - y)) \times z)$

かつ

50

0 y 1

なる関係をもち、該誘電体組成物の規則配列構造は、前記誘電体組成物のBサイトによる、 $y : (1 - y)$ の規則配列から形成されていることを特徴とする、誘電体組成物の設計方法。

【0013】

(3) (1)または(2)に記載された誘電体組成物の設計方法にあって、複合ペロブスカイト形誘電体組成物 $A^{2+} (B'^{2+}_{1/3} B''^{5+}_{2/3}) O_{2-3}$ を設計することを特徴とする、誘電体組成物の設計方法。

【0014】

本発明の他の目的、構成及び利点については、添付図面を参照して、更に詳しく説明する。但し、本発明の技術的範囲がこれらの図示実施例に限定されないことは言うまでもない。

10

【0015】

【発明の実施の形態】

図1は本発明に係わる誘電組成物の結晶構造を示す模式図、図2はそのBサイトを形成するB'イオンとB''イオンの配列を表す模式図である。

【0016】

本発明に係わる誘電体組成物は+2価・12配位のAイオンと+2価・6配位のB'イオン、+5価・6配位のB''イオン、-2価・2配位の酸素イオンにより構成される、複合ペロブスカイト形誘電体組成物 $A^{2+} (B'^{2+}_{1/3} B''^{5+}_{2/3}) O_{2-3}$ を基本とした超格子構造である。前記の複合ペロブスカイト形誘電体組成物では、B'イオンとB''イオンがBサイトにおいて不規則に配列していた場合には、図3の結晶構造を形成する。この結晶構造は単純ペロブスカイト構造と呼ばれ、 $P_{m3m} (O^1_h)$ の空間群に対応する。

20

【0017】

前記複合ペロブスカイト形誘電体組成物の[111]軸方向に沿って、図2に示したような、 B'^{2+} イオンと B''^{5+} イオンとのBサイトとの配列が1:2の規則配列を成すと六方晶の3倍超格子構造を形成し、 $P_{-3m1} (D^3_{3d})$ の空間群を有する。図1に示された3倍超格子構造が、本発明に係わる誘電体組成物の結晶構造である。ただし、この超格子構造に基づく該発明の誘電体組成物は、Q値を著しく低下させない限り、不規則配列を有する結晶相や他の不純物相を含有してもよい。好ましくは、これらの異相成分は10重量%以下に制御する。また、前記誘電体組成物を構成する元素は+2価のAイオンと+2価のB'イオン、+5価のB''イオン、-2価の酸素イオンの計4種類を基本とするが、Q値の著しい低下とならない限りは、各イオンが複数の元素より形成されていてもよく、各イオンサイトが規定値以外の価数元素を含有してもよい。さらには、+2価のAイオンと+2価のB'イオンが同一の元素であってもよい。

30

【0018】

次に、Bサイト規則配列に対応する六方晶3倍超格子構造と、Bサイト不規則配列の構造、もしくは、不規則構造を近似するモデル構造の格子エネルギーを算出する。計算に当たっては、分子設計計算科学法により、最適な結晶構造を算出し、該結晶構造における格子エネルギーを求める。これらの格子エネルギーは単位原子あたりに換算して、使用する。

40

【0019】

最適な結晶構造とは、格子エネルギーが最小値を有する場合の結晶構造に他ならない。分子設計計算科学法としては、第一原理法やDV-X法、分子軌道法、分子動力学法、ポテンシャル法等を使用してシミュレートする手法が好ましいが、格子エネルギーが算出できるのならば、どのような手段を用いてもよい。また、不規則構造の計算に当たっては、その構造自体を計算することが最適であるが、その構造を近似できるようなモデル構造を計算対象としてもよい。一般的に、不規則構造自体をシミュレートすることは、計算能力や計算時間等の面から困難を伴うことが多いため、近似モデル構造を使用することが望ましい場合もある。

【0020】

50

そして、前記の六方晶3倍超格子構造の単位原子当たり格子エネルギー E_{ORD} と、不規則配列の構造、もしくは、不規則配列を近似するモデル構造の単位原子当たり格子エネルギー E_{DIS} の差である $E_{DIS-ORD}$ が

【0021】

【数3】

$$\Delta E_{DIS-ORD} = E_{DIS} - E_{ORD} \geq 77.8(\text{meV} / \text{atom}) \quad (1)$$

を満たす誘電体組成物が本発明に係わるものである。

【0022】

10

上式(1)は発明者が鋭意研究を重ねた結果、導出された関係式である。発明者は既存の高周波用誘電体組成物に対する $E_{DIS-ORD}$ を計算することにより、図4に示すような、格子エネルギー差 $E_{DIS-ORD}$ と Qf 値の間に強い相関が存在することを見いだした。その相関により得られた、 $E_{DIS-ORD}$ と Qf 値との関係式は、

【0023】

【数4】

$$Qf(\text{GHz}) = k \exp\left(\frac{\Delta E_{DIS-ORD}}{k''}\right) \quad (2)$$

にて表される。なお、 k と k'' は結晶構造によるパラメータであり、本一実施例における値は、 $k = 15801.3$ 、 $k'' = 28.3$ となっている。

20

【0024】

使用周波数帯の高周波化に伴い、既存の誘電体組成物では、その周波数帯において必要な Q 値が得られないという課題がある。表1と図4にまとめた、既存の誘電体組成物では、 $E_{DIS-ORD}$ が $77.8(\text{meV} / \text{atom})$ 以下の値しかとることができていない。そのため、誘電体組成物の Qf 値が $200000(\text{GHz})$ 程度しか、保有することができないという大きな問題が存在した。

【0025】

しかし、(1)式の関係式を満足できる新たな誘電体組成物を設計することにより、容易にこの課題を解決することができる。発明者は(1)式を満たす誘電体組成物を既に見

30

【0026】

【実施例】

以下に、実施例により、本発明を更に具体的に明らかにする。

【0027】

出発原料として、化学的に高純度な炭酸バリウム粉末(BaCO_3)、酸化マグネシウム粉末(MgO)、酸化タンタル粉末(Ta_2O_5)を使用し、それらを $\text{Ba} : \text{Mg} : \text{Ta} = 3 : 1 : 2$ のモル比となるように秤量し、ボールミルを用いて湿式混合処理した。次いで、得られた混合物を乾燥し、 1000°C で2時間仮焼を行った後、この仮焼粉をさらにボールミルで30時間湿式粉碎せしめ、ポリビニルアルコールを適量加え、造粒を行った。この造粒物を $9.8 \times 10^7 \text{N} / \text{m}^2$ の圧力にて、 $12 \text{mm} \times t7 \text{mm}$ サイズの円板を成形し、この成形体を 1650°C で10時間本焼成を実施して、磁器試料を得た。こ

40

【0028】

得られた磁器試料を $10 \text{mm} \times t5 \text{mm}$ サイズに加工し、両端短絡形誘電体円柱共振器法により誘電特性を評価した。その結果、測定周波数 8.4GHz において、比誘電率 $r : 24$ 、 Q 値： 29800 が得られた。この結果を図4に併記してあるが、 $E_{DIS-ORD}$ と Qf 値との関係式(2)を十分に満たしており、本相関式の有効性が実証された。

【0029】

本発明の一実施例における誘電体組成物においては、 $+2$ 価・ 12 配位の Ba イオンと

50

+ 2 価・6 配位の H g イオン、+ 5 価・6 配位の T a イオン、- 2 価・2 配位の O イオンにより構成される、複合ペロブスカイト形誘電体組成物 $Ba^{2+} (Hg^{2+}_{1/3} Ta^{5+}_{2/3}) O_{2-3}$ を基本とする。

【 0 0 3 0 】

$P_{m3m} (O^1_h)$ の空間群を持つ不規則配列構造を近似したモデル構造と $P_{-3m1} (D^3_{3d})$ の空間群を有する六方晶 3 倍超格子構造に対して、第一原理法を用いて最適な結晶構造を算出した。計算に当たっては、ウルトラソフト擬ポテンシャルと平面波関数を使用し、密度汎関数法 (局所密度近似) のもとで K a h n - S h a m 方程式を解いた。

【 0 0 3 1 】

不規則配列を近似するモデル構造としては、9 倍超格子構造を用いた。複合ペロブスカイトの B サイトに、H g イオンと T a イオンが並ぶ様々な形態を幾何学的に記述させてやることにより、最も B サイトの配列が不規則形に近い結晶構造を抽出した結果、9 倍超格子構造が選択された。

【 0 0 3 2 】

上述の計算対象となる 2 構造に対する、格子エネルギーが最小値となるように、シミュレートした結果から得られた最適な結晶構造として、各元素の原子座標 (x, y, z) や各軸の格子定数 a, b, c、結晶角、を、規則配列構造については表 2 に、不規則配列モデル構造については表 3 にまとめた。

【 0 0 3 3 】

【 表 2 】

$$a=5.851 (\text{\AA}) \quad \alpha=90.0^\circ$$

$$b=5.851 (\text{\AA}) \quad b=90.0^\circ$$

$$c=7.290 (\text{\AA}) \quad \gamma=120.0^\circ$$

元素	原子座標		
	x	y	z
Ba	0.000	0.000	0.000
Ba	0.333	0.667	0.660
Ba	0.667	0.333	0.340
Hg	0.000	0.000	0.500
Ta	0.667	0.333	0.837
Ta	0.333	0.667	0.163
O	0.500	0.000	0.000
O	0.822	0.645	0.692
O	0.178	0.355	0.308
O	0.000	0.500	0.000
O	0.355	0.178	0.692
O	0.645	0.822	0.308
O	0.822	0.178	0.692
O	0.178	0.822	0.308
O	0.500	0.500	0.000

【 0 0 3 4 】

【 表 3 】

a=12.492 (Å) α=90.0°
b=9.364 (Å) β=90.0°
c=12.489 (Å) γ=26.4°

元素	原子座標			元素	原子座標		
	x	y	z		x	y	z
Ba	0.001	0.997	0.001	O	0.155	0.536	0.672
Ba	0.993	0.021	0.333	O	0.501	0.497	0.992
Ba	0.998	0.006	0.665	O	0.506	0.481	0.335
Ba	0.329	0.012	0.011	O	0.503	0.490	0.676
Ba	0.327	0.020	0.325	O	0.198	0.950	0.162
Ba	0.337	0.990	0.655	O	0.207	0.928	0.510
Ba	0.671	0.988	0.010	O	0.169	0.996	0.830
Ba	0.679	0.962	0.327	O	0.496	0.004	0.165
Ba	0.667	0.000	0.665	O	0.463	0.067	0.515
Hg	0.838	0.485	0.162	O	0.497	0.004	0.824
Hg	0.833	0.500	0.505	O	0.809	0.039	0.160
Hg	0.162	0.515	0.167	O	0.827	0.008	0.512
Ta	0.835	0.496	0.829	O	0.828	0.007	0.831
Ta	0.162	0.514	0.503	O	0.654	0.495	0.162
Ta	0.168	0.495	0.828	O	0.658	0.477	0.510
Ta	0.502	0.493	0.167	O	0.667	0.498	0.830
Ta	0.505	0.485	0.493	O	0.003	0.498	0.165
Ta	0.502	0.495	0.831	O	0.008	0.521	0.515
O	0.835	0.496	0.977	O	0.003	0.498	0.824
O	0.839	0.484	0.341	O	0.343	0.505	0.160
O	0.836	0.491	0.677	O	0.337	0.498	0.512
O	0.162	0.515	0.974	O	0.336	0.499	0.831
O	0.152	0.543	0.356				

10

【0035】

20

単位原子当たり格子エネルギー算出結果より、その差が

【数5】

$$\Delta E_{DIS-ORD} = E_{DIS} - E_{ORD} = -82716 - (-83618) = 90.2 > 77.8 (meV/atom)$$

と求められ、高周波領域において、 $Qf = 390000$ 程度の高いQ値を保有する新規な誘電体組成物 $Ba^{2+}(Hg^{2+}_{1/3}Ta^{5+}_{2/3})O^{2-}_3$ を設計することができた。

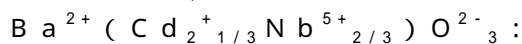
【0036】

本実施例においては、膨大な元素の組み合わせを変更するような、著しく労力と費用を要する組成開発実験を行うことなく、開発時間と開発コストを縮小した新規組成物を設計

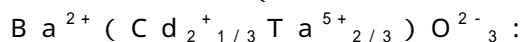
30

【0037】

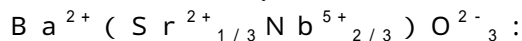
次に、本発明の他の実施例を図4にまとめた。前述と同様の分子設計計算科学法を使用することにより、



$$E = 84.9 (meV/atom), Qf = 317000 (GHz)$$

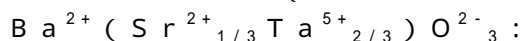


$$E = 87.1 (meV/atom), Qf = 343000 (GHz)$$

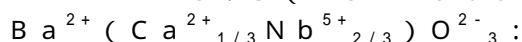


$$E = 113.7 (meV/atom), Qf = 877000 (GHz)$$

40



$$E = 128.5 (meV/atom), Qf = 1481000 (GHz)$$



$$E = 86.3 (meV/atom), Qf = 333000 (GHz)$$

と $Ba^{2+}(Hg^{2+}_{1/3}Ta^{5+}_{2/3})O^{2-}_3$ を含め、計6組成物が、高周波領域において、非常に高いQ値を保有する新規な誘電体組成物であることが導出された。

【0038】

また、本発明による設計方法の実施例の一つとして、 $Ba^{2+}(Cu^{2+}_{1/3}Nb^{5+}_{2/3})O^{2-}_3$ や $Ba^{2+}(Cu^{2+}_{1/3}Ta^{5+}_{2/3})O^{2-}_3$ 、 $Ba^{2+}(V^{2+}_{1/3}Nb^{5+}_{2/3})O^{2-}_3$ 、 $Ba^{2+}(V^{2+}_{1/3}Nb^{5+}_{2/3})O^{2-}_3$ の組成物に対して、Bサイト規則配列を有する結晶構造とB

50

サイト不規則配列を近似したモデル構造を、それらの格子エネルギーが最小になるよう結晶構造を最適化した。その結果、最適化した前記規則配列構造の単位原子当たり格子エネルギー E_{ORD} と、最適化した前記不規則配列モデル構造の単位原子当たり格子エネルギー E_{DIS} の差の絶対値、 $|E_{DIS-ORD}|$ を求め、それらの計算値を図 4 に併記した。

【0039】

【発明の効果】

以上説明したように、本発明によれば、安価かつ短時間に、高周波領域において高い Q 値を実現する誘電体組成物を新たに開発するための設計方法を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明に係わる、誘電体組成物の六方晶 3 倍超格子構造を示す模式図である。

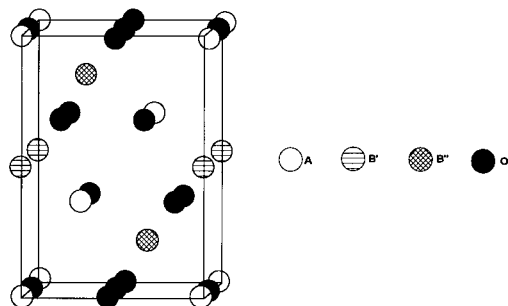
10

【図 2】 図 1 の B サイトを形成する、B' イオンと B'' イオンとの配列を表す模式図である。

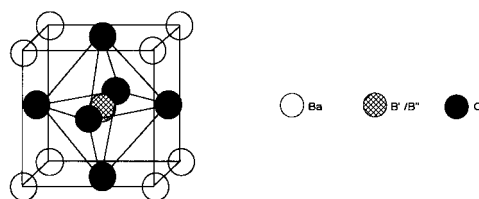
【図 3】 複合ペロブスカイト形誘電体組成物において、B サイトが不規則配列を形成した、単純ペロブスカイト構造を示す模式図である。

【図 4】 本発明により新たに設計された、高周波領域において高い Q 値を発揮する誘電体組成物、および、既存の高周波用誘電体組成物に関して、格子エネルギー差 $E_{DIS-ORD}$ と Q f 値の相関関係を示したグラフである。

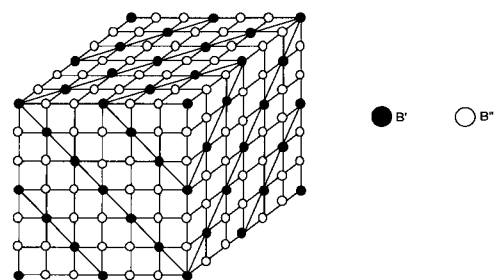
【図 1】



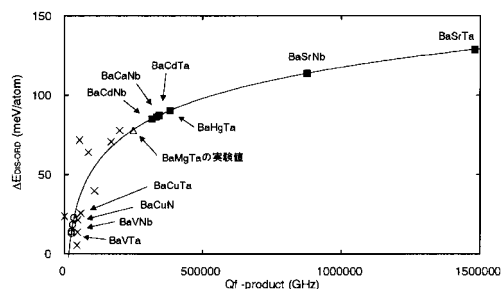
【図 3】



【図 2】



【図 4】



□ : 本発明による実施例
○ : 本発明による設計方法の実施例
× : 比較例

フロントページの続き

- (56)参考文献 特開平06-215624(JP,A)
特開平06-329462(JP,A)
特開平05-270887(JP,A)
特開平11-071173(JP,A)
特開平11-189468(JP,A)

- (58)調査した分野(Int.Cl.⁷, DB名)
C04B35/00~35/51
H01B3/12