(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号

特許第5582406号
(P5582406)

(45)発行日　平成26年9月3日(2014.9.3)　(24)登録日　平成26年7月25日(2014.7.25)

(51)Int.Cl.		F I		
C04B 35/20	(2006.01)	C04B	35/20	
H01B 3/12	(2006.01)	H01B	3/12	333
H01P 7/10	(2006.01)	H01P	7/10	
H01P 7/04	(2006.01)	H01P	7/04	
H01P 7/08	(2006.01)	H01P	7/08	

請求項の数 8　(全 26 頁)

(21)出願番号　特願2010-540491 (P2010-540491)
(86)(22)出願日　平成21年11月25日 (2009.11.25)
(86)国際出願番号　PCT/JP2009/069844
(87)国際公開番号　WO2010/061842
(87)国際公開日　平成22年6月3日 (2010.6.3)
審査請求日　平成23年4月7日 (2011.4.7)
(31)優先権主張番号　特願2008-299533 (P2008-299533)
(32)優先日　平成20年11月25日 (2008.11.25)
(33)優先権主張国　日本国(JP)
(31)優先権主張番号　特願2009-81912 (P2009-81912)
(32)優先日　平成21年3月30日 (2009.3.30)
(33)優先権主張国　日本国(JP)
(31)優先権主張番号　特願2009-81911 (P2009-81911)
(32)優先日　平成21年3月30日 (2009.3.30)
(33)優先権主張国　日本国(JP)

(73)特許権者　000000206
宇部興産株式会社
山口県宇部市大字小串１９７８番地の９６
(74)代理人　100130029
弁理士　永井　道雄
(72)発明者　河野　孝史
日本国山口県宇部市大字小串１９７８番地の９６　宇部興産株式会社内
(72)発明者　山永　正孝
日本国山口県宇部市大字小串１９７８番地の９６　宇部興産株式会社内
(72)発明者　岡部　敦
日本国山口県宇部市大字小串１９７８番地の９６　宇部興産株式会社内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】高周波用誘電体磁器組成物及びその製造方法、高周波用誘電体磁器並びにその製造方法およびそれを用いた高周波回路素子

(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
主成分と添加成分とを含んでなる高周波用誘電体磁器であって、
前記主成分は、組成式ａ（Ｓｎ，Ｔｉ）O_2－ｂMg_2SiO_4－ｃ$MgTi_2O_5$－ｄ$MgSiO_3$で表され、前記組成式におけるａ、ｂ、ｃ、及びｄ（ただし、ａ、ｂ、ｃ、及びｄはモル％である）がそれぞれ４≦ａ≦３７、３４≦ｂ≦９２、２≦ｃ≦１５、及び２≦ｄ≦１５の範囲内にあり、ここでａ＋ｂ＋ｃ＋ｄ＝１００である高周波用誘電体磁器組成物、からなり、
前記添加成分はＭｎＯからなり、
前記添加成分は前記主成分１００重量部に対して０．１～５．０重量部添加されており、
相対密度が９５％以上であり、
比誘電率ε_rが７．５～１２．０であり、$Q_m \times f$。値が５００００以上であり、共振周波数ｆ。の温度係数τ_fが－３０～＋３０ｐｐｍ／℃である、
ことを特徴とする高周波用誘電体磁器。
【請求項２】
前記（Ｓｎ，Ｔｉ）O_2が（$Sn_{0.8}Ti_{0.2}$）O_2であることを特徴とする、請求項１に記載の高周波用誘電体磁器。
【請求項３】
請求項１又は２に記載の高周波用誘電体磁器を製造する方法であって、SnO_2、Ｔｉ

O_2及びMg_2SiO_4の所定量を混合し仮焼した後に粉砕したものを出発原料として用い、該出発原料１００重量部に対してＭｎＯを焼結助剤として０．１～５．０重量部添加して得られた粉末に有機バインダを添加して成形し、焼成することを特徴とする、高周波用誘電体磁器の製造方法。

【請求項４】

請求項１又は２に記載の高周波用誘電体磁器からなる部材を含むことを特徴とする高周波回路素子。

【請求項５】

組成式ａ（Ｓｎ，Ｔｉ）O_2－ｂMg_2SiO_4－ｃ$MgTi_2O_5$－ｄ$MgSiO_3$で表され、前記組成式におけるａ、ｂ、ｃ、及びｄ（ただし、ａ、ｂ、ｃ、及びｄはモル％である）がそれぞれ４≦ａ≦３７、３４≦ｂ≦９２、２≦ｃ≦１５、及び２≦ｄ≦１５の範囲内にあり、ここでａ＋ｂ＋ｃ＋ｄ＝１００である、焼成で得られた高周波用誘電体磁器組成物からなるとともに、

焼成後無加工状態での表面の算術平均粗さＲａが２μｍ以下であり、

比誘電率ε_rが７．５～１２．０であり、$Q_m \times f_0$値が５００００以上であり、共振周波数f_0の温度係数τ_fが－３０～＋３０ｐｐｍ／℃である、

ことを特徴とする高周波用誘電体磁器。

【請求項６】

前記（Ｓｎ，Ｔｉ）O_2が（$Sn_{0.8}Ti_{0.2}$）O_2であることを特徴とする、請求項５に記載の高周波用誘電体磁器。

【請求項７】

請求項５又は６に記載の高周波用誘電体磁器を製造する方法であって、SnO_2、TiO_2及びMg_2SiO_4を出発原料として用い、これら出発原料の所定量を粒度分布のＤ５０が２μｍ以下になるように混合・解砕して得られた粉末にバインダを添加して成形し、焼成することを特徴とする、高周波用誘電体磁器の製造方法。

【請求項８】

請求項５又は６に記載の高周波用誘電体磁器からなる部材を含むことを特徴とする高周波回路素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【０００１】

本発明は、高周波用誘電体磁器組成物に関するものであり、とくに、比誘電率ε_rが７．５～１２．０であり、かつ$Q_m \times f_0$値が十分に大きく、さらに共振周波数f_0の温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃以下である高周波用誘電体磁器組成物に関する。また、本発明は、以上のような高周波用誘電体磁器組成物の製造方法に関する。

【０００２】

更に、本発明は、マイクロ波及びミリ波等の高周波域で使用される高周波回路素子を構成する部材として好適な高周波用誘電体磁器に関する。このような高周波用誘電体磁器の例としては、例えば、誘電体共振器、誘電体導波路および誘電体アンテナなどの構成部材である誘電体ブロックや誘電体基板、さらには各種高周波回路素子において使用される基板及び支持部材などが挙げられる。高周波回路素子は、例えば、高周波域の通信機器などの電子装置を構成する。

【背景技術】

【０００３】

近年、通信網の急激な発展に伴い、通信に使用する周波数は、マイクロ波領域やミリ波領域の高周波領域にまで拡大している。このような高周波回路用の電子部品（高周波用電子部品）を作製するのに使用される誘電体磁器組成物としては、材料の損失係数Q_m（単にＱということもある）の値が大きく、さらに共振周波数f_0の温度係数τ_fの絶対値が小さく且つ所望の値に容易に調整できる材料が求められている。

【０００４】

高周波用誘電体磁器組成物の比誘電率ε_rについては、その値が大きくなるほどマイクロ波回路やミリ波回路等の高周波回路を構成する高周波用電子部品の大きさを小さくできる。しかし、マイクロ波及びミリ波の高周波数領域においては、高周波用電子部品に使用する誘電体磁器組成物の比誘電率ε_rが大きすぎると、高周波用電子部品のサイズが小さくなりすぎ加工精度が厳しくなるために生産性が低下する。このため、高周波用誘電体磁器組成物の比誘電率ε_rは適度な大きさが要求される。また、使用する周波数により高周波用電子部品のサイズが変化するために、加工性の向上と小型化との両方の特長を備えたマイクロ波回路およびミリ波回路等の高周波回路のための高周波用電子部品を実現するためには、高周波用電子部品の材料は、所要の比誘電率ε_rを容易に得ることができる（すなわち調整可能な）ものであることが望まれる。

【０００５】

従来、高周波用誘電体磁器組成物としては、$BaO-MgO-WO_3$系材料（特許文献１参照）や、$MgTiO_3-CaTiO_3$系材料（特許文献２参照）などが提案されている。しかし、これらの高周波用誘電体磁器組成物はいずれも比誘電率ε_rが１３以上であり、使用周波数の高周波数化にともない、さらに低い比誘電率ε_rを有する高周波用誘電体磁器組成物が要求されている。また、これらの高周波用誘電体磁器組成物には、共振周波数の温度係数τ_fの絶対値が０ｐｐｍ／℃付近の特性を示す組成領域においては、比誘電率ε_rを比較的狭い範囲でしか調整することができないという問題があった。

【０００６】

一方、アルミナ（Al_2O_3）、フォルステライト（Mg_2SiO_4）、コージェライト（$Mg_2Al_4Si_5O_{18}$）などは優れたQ_m値を有し、電子回路基板などに用いられている。しかし、共振周波数の温度係数τ_fが－３０～－７０ｐｐｍ／℃であるため、用途が制限されている。また、これら材料は不純物が混入すると、生成相及び電気特性に大きな影響を与える等の問題がある。

【０００７】

さらに、フォルステライト（Mg_2SiO_4）とチタン酸カルシウム（$CaTiO_3$）およびスピネルからなる磁器組成物（特許文献３参照）が提案されている。しかしながら、この特許文献３には、磁器組成物の比誘電率ε_rの温度依存性が制御されることが開示されているものの、比誘電率ε_rの値や、その制御または調整の可能性について全く開示されていない。

【０００８】

また、フォルステライト（Mg_2SiO_4）に酸化チタン（TiO_2）を加えた誘電体磁器組成物（非特許文献１参照）が提案されている。しかし、この誘電体磁器組成物では、酸化チタン（TiO_2）の添加とともに共振周波数の温度係数τ_fが徐々にプラス側へシフトしているものの、酸化チタン３０ｗｔ％添加でも共振周波数の温度係数τ_fが－６２ｐｐｍ／℃と負で大きい値であるため、実用的ではない。

【０００９】

ところで、誘電体共振器の最も基本的なものとして、同軸誘電体共振器が挙げられる。この同軸誘電体共振器では、誘電体磁器からなるブロックに貫通孔を設け、該貫通孔が開口するブロックの一面（開放面）だけは誘電体磁器の表面そのままの状態とし、誘電体磁器の他の表面及び貫通孔内面には導体膜を形成している。

【００１０】

また、平面型高周波回路素子である誘電体導波路の最も基本的なものとして、マイクロストリップ線路が挙げられる。このマイクロストリップ線路では、誘電体磁器基板の表裏両面のうち一方の面にストリップ導体を設け、誘電体磁器基板の他方の面に接地導体膜を設けている。

【００１１】

以上の同軸誘電体共振器およびマイクロストリップ線路を用いて誘電体共振器制御型マイクロ波発信器を構成することができる。このマイクロ波発信器では、同軸誘電体共振器を誘電体磁器からなる支持部材を介して誘電体磁器基板に取り付け、同軸誘電体共振器の

外部に漏れ出る電磁界を利用して、同軸誘電体共振器と誘電体磁器基板に設けたマイクロストリップ線路との結合をとる。

【００１２】

この種の高周波回路においては、電界が支持部材を介して漏れるのを抑制することによって、無負荷Ｑの高い共振系が構成される。このため、支持部材の材料としては、比誘電率が低く誘電損失（ｔａｎδ）が小さい（すなわち$Ｑ_{m}$×ｆ。が大きい）ものを使用する必要がある。このため、従来、支持部材の材料としては、比誘電率εｒが約７で、$Ｑ_{m}$×ｆ。が約１５００００ＧＨｚのフォルステライト（$Ｍｇ_{2}ＳｉＯ_{4}$）が採用されていた。また、誘電体磁器基板の材料としては、主として比誘電率εｒが約１０で、$Ｑ_{m}$×ｆ。が２０００００ＧＨｚ以上のアルミナ磁器（$Ａｌ_{2}Ｏ_{3}$）が採用されていた（例えば、特許文献４参照）。しかし、これらの材料では、共振周波数の温度係数$τ_{f}$が－３０～－７０ｐｐｍ／℃となりやすいため、高周波回路の用途が制限されている。また、これら材料は不純物が混入すると、生成相の構成及び電気特性が大きく変動する等の問題がある。

【００１３】

また、上記非特許文献１に記載の誘電体磁器組成物に基づく誘電体磁器は実用的ではない。

【００１４】

一方、誘電体導波路を構成する誘電体磁器基板の材料としては、一般的にはテフロン（登録商標）、アルミナ磁器（$Ａｌ_{2}Ｏ_{3}$）が採用されている。しかし、これらの材料は共振周波数の温度係数$τ_{f}$が－３０～－７０ｐｐｍ／℃となりやすいため、高周波回路の用途が制限されている。

【００１５】

また、比誘電率$ε_{r}$＝２４、$Ｑ_{m}$×ｆ。＝３５００００ＧＨｚ、共振周波数の温度係数$τ_{f}$＝０ｐｐｍ／℃の誘電体を平面型フィルタに適用した開発例（非特許文献２）があるが、今後の更なる高周波化の要請に対応するためには、やはり比誘電率$ε_{r}$が約１２以下で、$Ｑ_{m}$×ｆ。が４００００ＧＨｚ以上好ましくは５００００ＧＨｚ以上で、しかも共振周波数ｆ。の温度係数$τ_{f}$の絶対値が３０ｐｐｍ／℃以下であることが必要である。

【００１６】

また、高周波領域になるほど、表皮効果の影響が大きくなり、例えば、導体としてＡｇを用いた場合には、１～３ＧＨｚの領域で、表皮深さは１．１８～２．０４μｍとなる（非特許文献３）。

【先行技術文献】

【特許文献】

【００１７】

【特許文献１】特開平６－２３６７０８号公報（第１１頁段落番号（００３３）、表１～８参照）

【特許文献２】特開平６－１９９５６８号公報（第５頁段落番号（００１８）、表１～３参照）

【特許文献３】特開２０００－３４４５７１（第２頁段落番号（０００６）参照）

【特許文献４】特開昭６２－１０３９０４号公報

【非特許文献】

【００１８】

【非特許文献１】Ｊｏｕｒｎａｌ ｏｆ ｔｈｅ Ｅｕｒｏｐｅａｎ Ｃｅｒａｍｉｃ Ｓｏｃｉｅｔｙ（第２３巻（２００３）第２５７５頁、表３参照）

【非特許文献２】Ａ Ｋａ－ｂａｎｄ Ｄｉｐｌｅｘｅｒ Ｕｓｉｎｇ Ｐｌａｎａｒ ＴＥ Ｍｏｄｅ Ｄｉｅｌｅｃｔｒｉｃ Ｒｅｓｏｎａｔｏｒｓ ｗｉｔｈ Ｐｌａｓｔｉｃ Ｐａｃｋａｇｅ（Ｍｅｔａｍｏｒｐｈｏｓｉｓ，Ｎｏ．６，ｐｐ．３８－３９（２００１））

【非特許文献３】理科年表　平成１９年度版

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】
【００１９】
以上のような従来の高周波用誘電体磁器組成物が有する技術的課題に鑑みて、本発明の１つの目的は、比誘電率ε_rが７．５～１２．０であり、かつ$Q_m \times f$。値が十分に大きく、さらに共振周波数ｆ。の温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃以下である高周波用誘電体磁器組成物を提供することにある。
【００２０】
本発明の他の目的は、そのような高周波用誘電体磁器組成物の製造方法を提供することにある。
【００２１】
また、以上のような従来の高周波用誘電体磁器が有する技術的課題に鑑みて、本発明者らは、誘電体磁器の組成を適切なものにすること、および、誘電体磁器の相対密度を適切なものとすることにより、高周波領域の電気特性が優れたものになり製造が容易になるという知見を得た。そして、本発明はこの知見に基づいてなされたものである。
【００２２】
すなわち、本発明の目的は、高周波領域での電気特性に優れ製造が容易な高周波用誘電体磁器およびその製造方法を提供することにある。
【００２３】
本発明の他の目的は、そのような高周波用誘電体磁器を構成部材として用いた高周波回路素子を提供することにある。
【００２４】
また、以上のような従来の高周波用誘電体磁器が有する技術的課題に鑑みて、本発明者らは、誘電体磁器の組成を適切なものにすること、および、誘電体磁器の表面粗さを適切なものとすることにより、高周波領域の電気特性が優れたものになるという知見を得た。そして、本発明はこの知見に基づいてなされたものである。
【００２５】
すなわち、本発明の目的は、高周波領域での電気特性に優れる高周波用誘電体磁器およびその製造方法を提供することにある。
【００２６】
本発明の他の目的は、そのような高周波用誘電体磁器を構成部材として用いた高周波回路素子を提供することにある。
【課題を解決するための手段】
【００２７】
（１）第１発明：
本発明によれば、以上の如き目的のうちのいずれかを達成するものとして、
組成式$a(Sn, Ti)O_2 - bMg_2SiO_4 - cMgTi_2O_5 - dMgSiO_3$で表され、前記組成式におけるａ、ｂ、ｃ、及びｄ（ただし、ａ、ｂ、ｃ、及びｄはモル％である）がそれぞれ$4 \leqq a \leqq 37$、$34 \leqq b \leqq 92$、$2 \leqq c \leqq 15$、及び$2 \leqq d \leqq 15$の範囲内にあり、ここでａ＋ｂ＋ｃ＋ｄ＝１００である高周波用誘電体磁器組成物、
が提供される。
【００２８】
本発明の一態様においては、前記$(Sn, Ti)O_2$が$(Sn_{0.8}Ti_{0.2})O_2$である。
【００２９】
また、本発明によれば、以上の如き目的のうちのいずれかを達成するものとして、
上記の高周波用誘電体磁器組成物を製造する方法であって、SnO_2、TiO_2及びMg_2SiO_4を出発原料として用い、これら出発原料の所定量を混合・解砕して得られた粉末にバインダを添加して成形し、焼成することを特徴とする、高周波用誘電体磁器組成物の製造方法、
が提供される。

【００３０】
（２）第２発明：
また、本発明によれば、以上の如き目的のうちのいずれかを達成するものとして、
上記高周波用誘電体磁器組成物からなる主成分と、ＭｎＯからなる添加成分とを含んでなり、該添加成分は前記主成分１００重量部に対して０．１～５．０重量部添加されており、相対密度が９５％以上であることを特徴とする高周波用誘電体磁器、
が提供される。
【００３１】
本発明の一態様においては、前記高周波用誘電体磁器は、比誘電率ε_rが７．５～１２．０であり、$Q_m \times f_o$値が４００００以上好ましくは５００００以上であり、共振周波数f_oの温度係数τ_fが－３０～＋３０ｐｐｍ／℃である。
【００３２】
また、本発明によれば、以上の如き目的のうちのいずれかを達成するものとして、
上記の高周波用誘電体磁器を製造する方法であって、SnO_2、TiO_2及びMg_2SiO_4の所定量を混合し仮焼した後に粉砕したものを出発原料として用い、該出発原料１００重量部に対してＭｎＯを焼結助剤として０．１～５．０重量部添加して得られた粉末に有機バインダを添加して成形し、焼成することを特徴とする、高周波用誘電体磁器の製造方法、
が提供される。
【００３３】
また、本発明によれば、以上の如き目的のうちのいずれかを達成するものとして、上記の高周波用誘電体磁器からなる部材を含むことを特徴とする高周波回路素子、が提供される。
【００３４】
（３）第３発明：
また、本発明によれば、以上の如き目的のうちのいずれかを達成するものとして、
上記高周波用誘電体磁器組成物からなるとともに、表面の算術平均粗さＲａが２μｍ以下であることを特徴とする高周波用誘電体磁器、
が提供される。
【００３５】
本発明の一態様においては、前記高周波用誘電体磁器は、比誘電率ε_rが７．５～１２．０であり、$Q_m \times f_o$値が４００００以上好ましくは５００００以上であり、共振周波数f_oの温度係数τ_fが－３０～＋３０ｐｐｍ／℃である。
【００３６】
また、本発明によれば、以上の如き目的のうちのいずれかを達成するものとして、
上記の高周波用誘電体磁器を製造する方法であって、SnO_2、TiO_2及びMg_2SiO_4を出発原料として用い、これら出発原料の所定量を粒度分布のＤ５０が２μｍ以下になるように混合・解砕して得られた粉末にバインダを添加して成形し、焼成することを特徴とする、高周波用誘電体磁器の製造方法、
が提供される。
【００３７】
また、本発明によれば、以上の如き目的のうちのいずれかを達成するものとして、上記の高周波用誘電体磁器からなる部材を含むことを特徴とする高周波回路素子、が提供される。
【発明の効果】
【００３８】
本発明によれば、比誘電率ε_rが７．５～１２．０であり、かつ$Q_m \times f_o$（$Q_m f_o$、$Q f_o$、$Q_m f$、$Q f$、$Q \times f_o$、$Q_m \times f$、及び$Q \times f$等と略称されることがある）の値が十分に大きく、さらに共振周波数f_oの温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃以下である高周波用誘電体磁器組成物が提供される。この高周波用誘電体磁器組成物を用い

ることで、特性が良好で加工性の向上と小型化との両方の特長を備えた高周波用誘電体磁器電子部品の提供が容易になる。

【００３９】

また、本発明によれば、高周波領域での電気特性に優れ製造が容易な高周波用誘電体磁器が提供され、とくに、比誘電率ε_rが７．５～１２．０であり、$Q_m \times f$。値が十分に大きく、さらに共振周波数ｆ。の温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃以下であり、比較的低い温度で焼成可能な高周波用誘電体磁器が提供される。この高周波用誘電体磁器を構成部材として用いることで、特性が良好で良好な加工性と小型化容易性との両方の特長を備えた高周波回路素子が提供される。

【００４０】

また、本発明によれば、高周波領域での電気特性に優れる高周波用誘電体磁器が提供され、とくに、比誘電率ε_rが７．５～１２．０であり、$Q_m \times f$。値が十分に大きく、さらに共振周波数ｆ。の温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃以下である高周波用誘電体磁器が提供される。この高周波用誘電体磁器を構成部材として用いることで、特性が良好で良好な加工性と小型化容易性との両方の特長を備えた高周波回路素子が提供される。

【図面の簡単な説明】

【００４１】

【図１】本発明の高周波用誘電体磁器組成物のＸ線回折図である。

【図２】本発明の高周波用誘電体磁器組成物のＥＤＳ分析図である。

【図３】本発明の高周波用誘電体磁器組成物を用いて作製した高周波回路素子の一例である同軸型誘電体共振器の模式的斜視図である。

【図４】高周波回路素子の一例である誘電体共振器制御型マイクロ波発信器の模式的断面図である。

【図５】高周波回路素子の一例であるマイクロストリップ線路の模式的斜視図である。

【図６】平面型高周波回路素子を構成する種々のマイクロストリップ線路のパターンを示す模式的平面図である。

【図７】本発明の高周波用誘電体磁器のＸ線回折図である。

【図８】本発明の高周波用誘電体磁器の製造に用いる原料混合物の粒度分布の一例を示す図である。

【図９】本発明の高周波用誘電体磁器のＸ線回折図である。

【発明を実施するための形態】

【００４２】

本発明の高周波用誘電体磁器組成物は、組成式ａ（Ｓｎ，Ｔｉ）O_2－ｂMg_2SiO_4－ｃ$MgTi_2O_5$－ｄ$MgSiO_3$で表され、前記組成式におけるａ、ｂ、ｃ、及びｄ（ただし、ａ、ｂ、ｃ、及びｄはモル％である）がそれぞれ４≦ａ≦３７、３４≦ｂ≦９２、２≦ｃ≦１５、及び２≦ｄ≦１５の範囲内にあり、ここでａ＋ｂ＋ｃ＋ｄ＝１００である。

【００４３】

本発明の高周波用誘電体磁器組成物は、とくに、図１のＸ線回折図に示されるように、チタン酸スズ（（Ｓｎ，Ｔｉ）O_2）、フォルステライト（Mg_2SiO_4）、マグネシウムチタネート（$MgTi_2O_5$）、及びステアタイト（$MgSiO_3$）を主生成相とする。前記（Ｓｎ，Ｔｉ）O_2としては、（$Sn_{0.8}Ti_{0.2}$）O_2及び（$Sn_{0.2}Ti_{0.8}$）O_2が知られている。このうち（$Sn_{0.8}Ti_{0.2}$）O_2は、（$Sn_{0.2}Ti_{0.8}$）O_2よりも、焼結が容易で、且つτ_fも制御しやすい特徴がある。

【００４４】

本発明の高周波用誘電体磁器組成物は、$Q_m \times f$。値が４００００（ＧＨｚ）以上たとえば５００００～８００００（ＧＨｚ）程度の高い値を示すことから、誘電損失が非常に小さい高周波用誘電体磁器及びこれを用いた電子部品の提供が容易になる。また、本発明の高周波用誘電体磁器組成物は、共振周波数の温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃以下であることから、温度による特性への影響の少ない高周波用誘電体磁器及びこれを用い

た電子部品の提供が容易になる。しかも、本発明の高周波用誘電体磁器組成物は、比誘電率ε_rが７．５～１２．０であることから、加工性の向上と小型化との両方の特長を備えた高周波用誘電体磁器電子部品の提供が容易になる。

【００４５】

本発明の高周波用誘電体磁器組成物における組成の限定理由を説明する。組成式ａ（Ｓｎ，Ｔｉ）O_2－ｂMg_2SiO_4－ｃ$MgTi_2O_5$－ｄ$MgSiO_3$において、ａが４未満では、共振周波数の温度係数τ_fが－３０ｐｐｍ／℃より小さくなり（すなわち、温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃より大きくなり）、好ましくない。ａが３７を超えると、比誘電率ε_rが１２．０より大きくなり、好ましくない。ａのより好ましい範囲は、１８≦ａ≦３６である。この範囲内であれば、共振周波数の温度係数τ_fの絶対値が２０ｐｐｍ／℃以下となる。ｂが３４未満では、比誘電率ε_rが１２．０より大きくなり、好ましくない。ｂが９２を超えると、共振周波数の温度係数τ_fが－３０ｐｐｍ／℃より小さくなり（すなわち、温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃より大きくなり）、好ましくない。ｂのより好ましい範囲は、３４≦ｂ≦６８である。この範囲であれば、共振周波数の温度係数τ_fの絶対値が２０ｐｐｍ／℃以下となる。ｃが２未満では、共振周波数の温度係数τ_fが－３０ｐｐｍ／℃より小さくなり（すなわち、温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃より大きくなり）、好ましくない。ｃが１５を超えると、比誘電率ε_rが１２．０より大きくなり、好ましくない。ｄが２未満では、共振周波数の温度係数τ_fが－３０ｐｐｍ／℃より小さくなり（すなわち、温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃より大きくなり）、好ましくない。ｄが１５を超えると、比誘電率ε_rが１２．０より大きくなり好ましくない。

【００４６】

後述の実施例で示されるように、本発明の高周波用誘電体磁器組成物における組成範囲内で組成式におけるモル比ａ、ｂ、ｃ、及びｄを適宜変更することで、共振周波数ｆ。の温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃以下すなわちτ_fが零に近い範囲内で十分大きな$Q_m \times f$。値を実現しつつ、比誘電率εｒを７．５～１２．０の範囲の所望値に調整することが可能である。

【００４７】

次に本発明の高周波用誘電体磁器組成物の製造方法を説明する。本発明の高周波用誘電体磁器組成物の最も好ましい製造方法は、出発原料として酸化スズ（SnO_2）、酸化チタン（TiO_2）、及びフォルステライト（Mg_2SiO_4）を用いる方法である。これらを一緒に焼成することで、目的とする組成物、すなわち、上記組成式で表され、（Ｓｎ，Ｔｉ）O_2、Mg_2SiO_4、$MgTi_2O_5$、及び$MgSiO_3$を主生成相とする組成物を得ることができる。

【００４８】

本発明の高周波用誘電体磁器組成物の製造方法の一実施形態は次の通りである。SnO_2、TiO_2、及びMg_2SiO_4の出発原料を所定量ずつ、アルコール等の溶媒とともに湿式混合する。続いて溶媒を除去した後、解砕する。このようにして得られた粉末にポリビニルアルコールの如き有機バインダを混合して均質にし、乾燥、解砕、加圧成形（圧力１００～１０００ｋｇ／ｃｍ^{2}程度）する。得られた成形物を空気の如き酸素含有ガス雰囲気下にて１２００～１４５０℃で焼成することにより上記組成式で表される高周波用誘電体磁器組成物を得ることができる。

【００４９】

後述の実施例で示されるように、SnO_2及びTiO_2を当モル量用いることができる。この場合、とくに、前記生成相（Ｓｎ，Ｔｉ）O_2は、（$Sn_{0.8}Ti_{0.2}$）O_2であることが好ましい。

【００５０】

このようにして得られた高周波用誘電体磁器組成物（磁器の形態のものを含む）は、必要により適当な形状、およびサイズへ加工することで、誘電体共振器等の高周波用誘電体磁器電子部品として利用できる。とくに、外部に銀や銅等の導体からなる膜または配線な

どを形成することにより、いわゆる同軸型共振器やこれを利用した同軸型誘電体フィルタ等の高周波用誘電体磁器電子部品として利用することが可能である。さらには、板状に加工し、銀や銅等の導体配線を形成することにより、高周波用誘電体磁器電子部品としての誘電体配線基板として利用することができる。また、粉末状の本発明の高周波用誘電体磁器組成物を、ポリビニルブチラール等のバインダ樹脂、フタル酸ジブチル等の可塑剤、及びトルエン等の有機溶剤と混合し、ドクターブレード法等によるシート成形を行い、得られたシートと導体シートとを積層化し、一体焼成することにより、積層型誘電体フィルタ等の積層型の高周波用誘電体磁器電子部品や積層型の誘電体配線基板としても利用することができる。

【００５１】

なお、本発明の高周波用誘電体磁器組成物を構成する元素であるスズ、マグネシウム、シリコン、及びチタンの原料としては、SnO_2、MgO、SiO_2、及びTiO_2等の他に、焼成時に酸化物となる硝酸塩、炭酸塩、水酸化物、塩化物、有機金属化合物等を使用することもできる。

【００５２】

本発明の高周波用誘電体磁器の主成分は、上記高周波用誘電体磁器組成物からなり、すなわち、組成式$a(Sn,Ti)O_2-bMg_2SiO_4-cMgTi_2O_5-dMgSiO_3$で表され、前記組成式における$a$、$b$、$c$、及び$d$（ただし、$a$、$b$、$c$、及び$d$はモル％である）がそれぞれ$4 \leqq a \leqq 37$、$34 \leqq b \leqq 92$、$2 \leqq c \leqq 15$、及び$2 \leqq d \leqq 15$の範囲内にあり、ここで$a+b+c+d=100$である。本発明の高周波用誘電体磁器の添加成分は、ＭｎＯからなる。この添加成分は主成分１００重量部に対して０．１～５．０重量部添加されている。

【００５３】

本発明の高周波用誘電体磁器は、とくに、図７のＸ線回折図に示されるように、チタン酸スズ（$(Sn,Ti)O_2$）、フォルステライト（Mg_2SiO_4）、マグネシウムチタネート（$MgTi_2O_5$）、及びステアタイト（$MgSiO_3$）を主生成相とする。前記$(Sn,Ti)O_2$としては、$(Sn_{0.8}Ti_{0.2})O_2$及び$(Sn_{0.2}Ti_{0.8})O_2$が知られている。このうち$(Sn_{0.8}Ti_{0.2})O_2$は、$(Sn_{0.2}Ti_{0.8})O_2$よりも、焼結が容易で、且つτ_fも制御しやすい特徴がある。尚、図７は、主生成相のみ表れており、添加成分ＭｎＯは微量であるため表れていない。

【００５４】

本発明の高周波用誘電体磁器は、$Q_m \times f_o$が４００００ＧＨｚ以上たとえば５００００ＧＨｚ以上と高い値を示すことから、誘電損失が非常に小さい高周波用誘電体磁器及びこれを用いた高周波回路素子の提供が容易になる。また、本発明の高周波用誘電体磁器は、共振周波数の温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃以下であることから、温度による特性への影響の少ない高周波用誘電体磁器及びこれを用いた高周波回路素子の提供が容易になる。しかも、本発明の高周波用誘電体磁器は、比誘電率ε_rが７．５～１２．０であることから、加工性の向上と小型化との両方の特長を備えた高周波回路素子の提供が容易になる。

【００５５】

さらに、本発明の高周波用誘電体磁器は、添加成分ＭｎＯの添加量が主成分１００重量部に対して０．１～５．０重量部であり且つ相対密度が９５％以上であるため、上記$Q_m \times f_o$、τ_f及びε_rに関する特性が良好であり且つ製造時の焼成に際して接触するジルコニア（ZrO_2）やアルミナ（Al_2O_3）などからなる敷き板と反応することなく高い歩留まりで製造される。従って、高周波回路素子の提供が容易になる。このような高周波回路素子の一例として、図３に示されるような同軸誘電体共振器が挙げられる。ここでは、外形寸法１０．６ｍｍ×１０．６ｍｍ×１２ｍｍ（軸長）の誘電体磁器のブロックに、軸長方向に沿って穴径３ｍｍの円筒形貫通孔を設け、該貫通孔が開口するブロックの一面（開放面）だけは誘電体磁器の表面（セラミックス面）そのままの状態とし、誘電体磁器の他の表面及び貫通孔内面にはＡｇ導体からなる導体膜を形成している。

【００５６】
本発明の高周波用誘電体磁器における組成の限定理由を説明する。主成分の組成式ａ（Ｓｎ，Ｔｉ）O_2－ｂMg_2SiO_4－ｃ$MgTi_2O_5$－ｄ$MgSiO_3$において、ａが４未満では、共振周波数の温度係数τ_fが－３０ｐｐｍ／℃より小さくなり（すなわち、温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃より大きくなり）、好ましくない。ａが３７を超えると、比誘電率ε_rが１２．０より大きくなり、好ましくない。ａのより好ましい範囲は、１８≦ａ≦３６である。この範囲内であれば、共振周波数の温度係数τ_fの絶対値が２０ｐｐｍ／℃以下となる。ｂが３４未満では、比誘電率ε_rが１２．０より大きくなり、好ましくない。ｂが９２を超えると、共振周波数の温度係数τ_fが－３０ｐｐｍ／℃より小さくなり（すなわち、温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃より大きくなり）、好ましくない。ｂのより好ましい範囲は、３４≦ｂ≦６８である。この範囲であれば、共振周波数の温度係数τ_fの絶対値が２０ｐｐｍ／℃以下となる。ｃが２未満では、共振周波数の温度係数τ_fが－３０ｐｐｍ／℃より小さくなり（すなわち、温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃より大きくなり）、好ましくない。ｃが１５を超えると、比誘電率ε_rが１２．０より大きくなり、好ましくない。ｄが２未満では、共振周波数の温度係数τ_fが－３０ｐｐｍ／℃より小さくなり（すなわち、温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃より大きくなり）、好ましくない。ｄが１５を超えると、比誘電率ε_rが１２．０より大きくなり好ましくない。

【００５７】
後述の実施例で示されるように、本発明の高周波用誘電体磁器における組成範囲内で主成分の組成式におけるモル比ａ、ｂ、ｃ及びｄを適宜変更することで、共振周波数ｆ。の温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃以下すなわちτ_fが零に近い範囲内で十分大きなQ_m値を実現しつつ、比誘電率εｒを７．５～１２．０の範囲の所望値に調整することが可能である。

【００５８】
また、主成分１００重量部に対する添加成分ＭｎＯの添加量が０．１重量部未満では、１３００℃以下とくに１２５０℃以下の比較的低温の焼成で相対密度を９５％以上とすることが難しく、良好なQ_m×ｆ。値が得難くなるので、好ましくない。一方、主成分１００重量部に対する添加成分ＭｎＯの添加量が５．０重量部を超えると、良好なQ_m×ｆ。値及びε_rが得難くなり、さらには製造時の焼成に際して接触する敷き板と反応し、製造歩留まりが低下しやすくなるので、好ましくない。

【００５９】
本発明の高周波用誘電体磁器の製造方法の一実施形態は次の通りである。SnO_2、TiO_2、及びMg_2SiO_4を所定量ずつ、アルコール等の溶媒とともに湿式混合する。続いて溶媒を除去した後、１０００～１１５０℃で仮焼して粉砕し、出発原料粉末を得る。

【００６０】
この出発原料粉末に、ＭｎＯを焼結助剤として所定量添加して、アルコール等の溶媒とともに湿式混合する。続いて溶媒を除去して得られた粉末にポリビニルアルコールの如き有機バインダを添加し、混合して均質にし、乾燥、解砕した後、成形密度が２．０～２．４ｇ／ｃｍ^3、好ましくは２．２～２．４ｇ／ｃｍ^{3}になるように加圧成形する。得られた成形物を空気の如き酸素含有ガス雰囲気下にて１２００～１３００℃で焼成することにより上記組成式で表される主成分とＭｎＯからなる添加成分とを含み、該添加成分が前記主成分１００重量部に対して０．１～５．０重量部添加されており、相対密度が９５％以上である高周波用誘電体磁器を得ることができる。

【００６１】
後述の実施例で示されるように、SnO_2及びTiO_2を当モル量用いることができる。この場合、とくに、前記生成相（Ｓｎ，Ｔｉ）O_2は、（$Sn_{0.8}Ti_{0.2}$）O_2であることが好ましい。

【００６２】

このようにして得られた高周波用誘電体磁器は、必要により適当な形状およびサイズに加工することができる。

【００６３】

本発明の高周波用誘電体磁器は、例えば、外部に銀や銅等の導体からなる膜または配線などを形成することにより、図３のような同軸型誘電体共振器やこれを利用した同軸型誘電体フィルタ等の高周波回路素子を構成するのに利用することが可能である。本発明の高周波用誘電体磁器であって板状のものは、銀や銅等の導体配線を形成することにより、各種高周波回路のための誘電体配線基板として利用することができる。

【００６４】

また、出発原料粉末にＭｎＯを焼結助剤として所定量添加し、低融点ガラスを添加し、その後ポリビニルブチラール等のバインダ樹脂、フタル酸ジブチル等の可塑剤、及びトルエン等の有機溶剤と混合し、ドクターブレード法等によるシート成形を行い、得られたシートと導体シートとを積層化し、一体焼成することにより、積層型誘電体フィルタや積層型の誘電体配線基板等の積層型の高周波回路素子を得ることができる。

【００６５】

なお、本発明の高周波用誘電体磁器を構成する元素であるＳｎ、Ｍｇ、Ｓｉ、及びＴｉ、並びにＭｎＯの原料としては、SnO_2、TiO_2、Mg_2SiO_4、ＭｎＯの他に、ＭｇＯ、SiO_2等の酸化物を用いることもでき、さらには焼成時に酸化物となる硝酸塩、炭酸塩、水酸化物、塩化物、有機金属化合物等を使用することもできる。

【００６６】

なお、本発明の高周波用誘電体磁器は、その構成元素がＯ、Ｓｎ、Ｍｇ、Ｓｉ、及びＴｉ、並びにＭｎＯであるが、例えば粉砕ボールや原料粉末の不純物に由来するＣａ、Ｂａ、Ｚｒ、Ｎｉ、Ｆｅ、Ｃｒ、Ｐ、Ｎａ等が不純物として混入してもよい。

【００６７】

また、本発明の高周波用誘電体磁器は、低誘電率および高Q_m値が求められるものであれば、種々の高周波回路素子の構成部材として使用できる。そのような例の１つとして、図４に示されるような誘電体共振器制御型マイクロ波発信器における構成部材が挙げられる。このマイクロ波発信器では、同軸誘電体共振器１を誘電体磁器からなる支持部材２を介して誘電体磁器基板３に取り付け、同軸誘電体共振器１の外部に漏れ出る電磁界Ｈを利用して、同軸誘電体共振器１と誘電体磁器基板３に設けたマイクロストリップ線路のストリップ導体４との結合をとる。符号５は、電磁シールド機能を発揮する金属ケースを示す。このマイクロ波発信器において、本発明の高周波用誘電体磁器は、図３に関し説明したような同軸誘電体共振器１の誘電体ブロックとして、支持部材２として、さらには誘電体磁器基板３として、それぞれ使用することができる。図５に、マイクロストリップ線路の詳細を示す。マイクロストリップ線路では、誘電体磁器基板６（上記誘電体磁器基板３に相当）の表面にストリップ導体７を設け、誘電体磁器基板６の裏面に接地導体膜８を設けている。ストリップ導体７の材料としては、Ｐｄ、Ｃｕ、Ａｕ、Ａｇが例示される。

【００６８】

本発明の高周波用誘電体磁器が構成部材として使用される高周波回路素子の他の例としては、図６の（ａ）～（ｉ）にそれぞれ示されるような平面型高周波回路素子が挙げられる。これらの平面型高周波回路素子９は、マイクロストリップ線路と同様に、誘電体磁器基板６の表面にストリップ導体７を設け、誘電体磁器基板６の裏面に接地導体膜を設けている。誘電体磁器基板６の表面には、ストリップ導体７と同一の材料により、各種パターン状の導体膜が形成されており、該導体膜によりそれぞれの素子の機能を発揮する。図６において、（ａ）の素子はインタディジタルキャパシタであり、（ｂ）の素子はスパイラルインダクタであり、（ｃ）の素子は分岐回路であり、（ｄ）の素子は方向性結合器であり、（ｅ）の素子は電力分配合成器であり、（ｆ）の素子は低域通過フィルタであり、（ｇ）の素子は帯域通過フィルタであり、（ｈ）の素子はリング共振器であり、（ｉ）の素子はパッチアンテナである。

【００６９】

本発明の他の高周波用誘電体磁器は、上記高周波用誘電体磁器組成物からなり、すなわち、組成式ａ（Ｓｎ，Ｔｉ）O_2－ｂMg_2SiO_4－ｃ$MgTi_2O_5$－ｄ$MgSiO_3$で表され、前記組成式におけるａ、ｂ、ｃ、及びｄ（ただし、ａ、ｂ、ｃ、及びｄはモル％である）がそれぞれ４≦ａ≦３７、３４≦ｂ≦９２、２≦ｃ≦１５、及び２≦ｄ≦１５の範囲内にあり、ここでａ＋ｂ＋ｃ＋ｄ＝１００である。

【００７０】

本発明の高周波用誘電体磁器は、とくに、図９のＸ線回折図に示されるように、チタン酸スズ（（Ｓｎ，Ｔｉ）O_2）、フォルステライト（Mg_2SiO_4）、マグネシウムチタネート（$MgTi_2O_5$）、及びステアタイト（$MgSiO_3$）を主生成相とする。前記（Ｓｎ，Ｔｉ）O_2としては、（$Sn_{0.8}Ti_{0.2}$）O_2及び（$Sn_{0.2}Ti_{0.8}$）O_2が知られている。このうち（$Sn_{0.8}Ti_{0.2}$）O_2は、（$Sn_{0.2}Ti_{0.8}$）O_2よりも、焼結が容易で、且つτ_fも制御しやすい特徴がある。

【００７１】

本発明の高周波用誘電体磁器は、$Q_m \times f$。が４００００ＧＨｚ以上たとえば５０００ＧＨｚ以上と高い値を示すことから、誘電損失が非常に小さい高周波用誘電体磁器及びこれを用いた高周波回路素子の提供が容易になる。また、本発明の高周波用誘電体磁器は、共振周波数の温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃以下であることから、温度による特性への影響の少ない高周波用誘電体磁器及びこれを用いた高周波回路素子の提供が容易になる。しかも、本発明の高周波用誘電体磁器は、比誘電率ε_rが７．５～１２．０であることから、加工性の向上と小型化との両方の特長を備えた高周波回路素子の提供が容易になる。

【００７２】

さらに、本発明の高周波用誘電体磁器は、表面の算術平均粗さＲａが２μｍ以下であるため、表皮効果の影響を受けにくく、高い無負荷Ｑ値をもつ高周波回路素子の提供が容易になる。このような高周波回路素子の一例として、図３に示されるような同軸誘電体共振器が挙げられる。ここでは、外形寸法１０．６ｍｍ×１０．６ｍｍ×１２ｍｍ（軸長）の誘電体磁器のブロックに、軸長方向に沿って穴径３ｍｍの円筒形貫通孔を設け、該貫通孔が開口するブロックの一面（開放面）だけは誘電体磁器の表面（セラミックス面）そのままの状態とし、誘電体磁器の他の表面及び貫通孔内面にはＡｇ導体からなる導体膜を形成している。

【００７３】

本発明の高周波用誘電体磁器における組成の限定理由を説明する。組成式ａ（Ｓｎ，Ｔｉ）O_2－ｂMg_2SiO_4－ｃ$MgTi_2O_5$－ｄ$MgSiO_3$において、ａが４未満では、共振周波数の温度係数τ_fが－３０ｐｐｍ／℃より小さくなり（すなわち、温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃より大きくなり）、好ましくない。ａが３７を超えると、比誘電率ε_rが１２．０より大きくなり、好ましくない。ａのより好ましい範囲は、１８≦ａ≦３６である。この範囲内であれば、共振周波数の温度係数τ_fの絶対値が２０ｐｐｍ／℃以下となる。ｂが３４未満では、比誘電率ε_rが１２．０より大きくなり、好ましくない。ｂが９２を超えると、共振周波数の温度係数τ_fが－３０ｐｐｍ／℃より小さくなり（すなわち、温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃より大きくなり）、好ましくない。ｂのより好ましい範囲は、３４≦ｂ≦６８である。この範囲であれば、共振周波数の温度係数τ_fの絶対値が２０ｐｐｍ／℃以下となる。ｃが２未満では、共振周波数の温度係数τ_fが－３０ｐｐｍ／℃より小さくなり（すなわち、温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃より大きくなり）、好ましくない。ｃが１５を超えると、比誘電率ε_rが１２．０より大きくなり、好ましくない。ｄが２未満では、共振周波数の温度係数τ_fが－３０ｐｐｍ／℃より小さくなり（すなわち、温度係数τ_fの絶対値が３０ｐｐｍ／℃より大きくなり）、好ましくない。ｄが１５を超えると、比誘電率ε_rが１２．０より大きくなり好ましくない。

【００７４】

後述の実施例で示されるように、本発明の高周波用誘電体磁器における組成範囲内で組

成式におけるモル比ａ、ｂ、ｃ及びｄを適宜変更することで、共振周波数ｆ。の温度係数τ$_f$の絶対値が３０ｐｐｍ／℃以下すなわちτ$_f$が零に近い範囲内で十分大きなＱ$_m$値を実現しつつ、比誘電率εｒを７．５～１２．０の範囲の所望値に調整することが可能である。

【００７５】

また、高周波用誘電体磁器からなる部材を含む高周波回路素子、例えば図３に示した１０．６ｍｍ□の誘電体磁器ブロックを含む同軸誘電体共振器では、誘電体磁器ブロックの表面の算術平均粗さＲａが２μｍを超えると、無負荷Ｑ値が大きく低下し例えば１０００以下となるため好ましくない。

【００７６】

本発明の高周波用誘電体磁器の製造方法の一実施形態は次の通りである。SnO_2、TiO_2、及びMg_2SiO_4の出発原料を所定量ずつ、アルコール等の溶媒とともに湿式混合する。続いて溶媒を除去した後、粒度分布のＤ５０が２μｍ以下になるまで解砕する。得られる粉末の粒度分布の一例を図８に示す。このようにして得られた粉末にポリビニルアルコールの如き有機バインダを添加し、混合して均質にし、乾燥、解砕、加圧成形（圧力１００～１０００ｋｇ／ｃｍ^{2}程度）する。得られた成形物を空気の如き酸素含有ガス雰囲気下にて１２００～１４５０℃で焼成することにより、上記組成式で表され且つ表面の算術平均粗さＲａが２μｍ以下である高周波用誘電体磁器を得ることができる。上記出発原料の混合・解砕後の粒度分布のＤ５０が２μｍを超えると、焼結体の算術平均粗さＲａが２μｍを超えやすくなり、そのことにより高周波用誘電体磁器の無負荷Ｑ値が低下しがちである。

【００７７】

後述の実施例で示されるように、SnO_2及びTiO_2を当モル量用いることができる。この場合、とくに、前記生成相（Ｓｎ，Ｔｉ）O_2は、$(Sn_{0.8}Ti_{0.2})O_2$であることが好ましい。

【００７８】

このようにして得られた高周波用誘電体磁器は、更なる表面平坦化加工を施すこと無しに、特性良好な高周波回路素子のための構成部材として使用でき、かくして、製造容易性と小型化容易性との両方の特長を備えた高周波回路素子が提供される。但し、必要により適当な形状およびサイズに加工してもよい。

【００７９】

本発明の高周波用誘電体磁器は、例えば、外部に銀や銅等の導体からなる膜または配線などを形成することにより、図３のような同軸型誘電体共振器やこれを利用した同軸型誘電体フィルタ等の高周波回路素子を構成するのに利用することが可能である。本発明の高周波用誘電体磁器であって板状のものは、銀や銅等の導体配線を形成することにより、各種高周波回路のための誘電体配線基板として利用することができる。

【００８０】

なお、本発明の高周波用誘電体磁器を構成する元素であるＳｎ、Ｍｇ、Ｓｉ、及びＴｉの原料としては、SnO_2、TiO_2、Mg_2SiO_4の他に、ＭｇＯ、SiO_2等の酸化物を用いることもでき、さらには焼成時に酸化物となる硝酸塩、炭酸塩、水酸化物、塩化物、有機金属化合物等を使用することもできる。

【００８１】

なお、本発明の高周波用誘電体磁器は、その構成元素がＯ、Ｓｎ、Ｍｇ、Ｓｉ、及びＴｉであるが、例えば粉砕ボールや原料粉末の不純物に由来するＣａ、Ｂａ、Ｚｒ、Ｎｉ、Ｆｅ、Ｃｒ、Ｐ、Ｎａ等が不純物として混入してもよい。

【００８２】

また、本発明の高周波用誘電体磁器は、低誘電率および高Ｑ$_m$値が求められるものであれば、種々の高周波回路素子の構成部材として使用できる。そのような例の１つとして、上記の図４に示されるような誘電体共振器制御型マイクロ波発信器における構成部材が挙げられる。本発明の高周波用誘電体磁器が構成部材として使用される高周波回路素子の他

の例としては、上記の図６の（ａ）～（ｉ）にそれぞれ示されるような平面型高周波回路素子が挙げられる。

【実施例】

【００８３】

以下、実施例及び比較例により、本発明を更に説明する。

【００８４】

［実施例１］（第１発明）

SnO_2を４．８ｍｏｌ％、TiO_2を４．８ｍｏｌ％、Mg_2SiO_4を９０．５ｍｏｌ％となるように所定量を秤量し（表１参照）、これらをエタノール及びZrO_2ボールとともにボールミルに入れ、１２時間湿式混合した。その後、溶液を脱媒後、解砕した。引き続き、この解砕物に適量のポリビニルアルコール（ＰＶＡ）溶液を加えて乾燥した後、直径２０ｍｍ、厚み１０ｍｍのペレットに成形し、空気雰囲気下において、１３００℃で２時間焼成した。

【００８５】

こうして得られた高周波用誘電体磁器組成物（表１参照）を、直径１６ｍｍ及び厚み８ｍｍの大きさに加工した後、誘電共振法による測定で、共振周波数５～１２ＧＨｚにおけるＱ×ｆ。値（すなわちQ_m×ｆ。値）、比誘電率ε_r、および共振周波数の温度係数τ_fを求めた。その結果を表１に示す。

【００８６】

得られた高周波用誘電体磁器組成物についてＸ線回折分析を行ったところ、図１に示されるように、チタン酸スズ（$(Sn_{0.8}Ti_{0.2})O_2$）、フォルステライト（Mg_2SiO_4）、マグネシウムチタネート（$MgTi_2O_5$）、及びステアタイト（$MgSiO_3$）の結晶相から構成されていることが確認された。

【００８７】

また、得られた高周波用誘電体磁器組成物について、エネルギー分散型Ｘ線分光（Ｅｎｅｒｇｙ－Ｄｉｓｐｅｒｓｉｖｅ　Ｘ－ｒａｙ　Ｓｐｅｃｔｒｏｓｃｏｐｙ［ＥＤＳ］）による表面の組成分析を行ったところ、チタン酸スズ（$(Sn_{0.8}Ti_{0.2})O_2$）、フォルステライト（Mg_2SiO_4）、及びマグネシウムチタネート（$MgTi_2O_5$）の結晶相が確認された。図２にその分析結果を示す。

【００８８】

また高周波用誘電体磁器組成物１００ｗｔ％に対して、ＰＶＡ２．７５ｗｔ％、セロゾール１ｗｔ％、及び分散剤１ｗｔ％を添加してスプレー顆粒を作製した。このスプレー顆粒を用いて、グリーン密度が２．１ｇ／ｃｍ^{3}になるように成形し、その後１３００℃×２時間の空気雰囲気条件下で焼成した。得られた焼結体は、穴（貫通孔）を有し、該穴が開口する一面（開放面）だけはそのままの状態とし、その他の面にはＡｇ膜電極を形成して、図３に示されるような高周波用誘電体磁器電子部品としての誘電体同軸型共振器を作製した。該同軸型共振器の大きさは、軸長１２ｍｍ、外形（大略矩形状の開放面の一辺の長さ）１０．６ｍｍ、穴径３ｍｍであった。

【００８９】

得られた同軸型共振器について、共振周波数２ＧＨｚで無負荷Ｑ値を評価した。その結果、同軸型共振器としての無負荷Ｑ値は１３０２であった。このように、本発明に係る高周波用誘電体磁器組成物を使用することにより、優れた高周波特性を有する同軸型共振器が得られた。

【００９０】

［実施例２～１２］（第１発明）

SnO_2、TiO_2、及びMg_2SiO_4を表１に示した配合量になるように所定量を秤量し、実施例１と同条件で混合、解砕及び成形などを行い、空気雰囲気下において１２００～１３５０℃の温度にて２時間焼成して、高周波用誘電体磁器組成物を作製し、実施例１と同様な方法で特性を評価した。その結果を表１に示す。

【００９１】

［比較例１～５］（第１発明）

SnO_2、TiO_2、及びMg_2SiO_4を表２に示した配合量になるように所定量を秤量し、実施例１と同条件で混合、解砕及び成形などを行い、空気雰囲気下において１２００～１３５０℃の温度にて２時間焼成して、誘電体磁器組成物を作製し、実施例１と同様な方法で特性を評価した。その結果を表２に示す。

【００９２】

【表１】

	mol%			a	b	c	d	εr	Q×f₀	τf
	SnO2	TiO2	Mg2SiO4	(Sn, Ti)O2	Mg2SiO4	MgTi2O5	MgSiO3		GHz	ppm／℃
実施例1	4.8	4.8	90.5	4.9	91.2	2.0	2.0	7.5	50052	−30
実施例2	9.8	9.8	80.4	10.4	81.2	4.2	4.2	8.4	50768	−28
実施例3	9.8	9.8	80.4	10.4	81.2	4.2	4.2	8.6	77296	−30
実施例4	11.7	11.7	76.6	12.6	77.4	5.0	5.0	8.4	50768	−28
実施例5	13.4	13.4	73.2	14.6	73.8	5.8	5.8	8.9	71872	−27
実施例6	16.4	16.4	67.2	18.2	67.3	7.3	7.3	9.6	56261	−18
実施例7	18.9	18.9	62.1	21.4	61.5	8.6	8.6	10.4	74844	−4
実施例8	19.0	19.0	62.1	21.4	61.5	8.6	8.6	9.5	53000	−15
実施例9	21.1	21.1	57.7	24.2	56.4	9.7	9.7	11.0	62252	8
実施例10	24.7	24.7	50.6	29.0	47.8	11.6	11.6	10.9	50286	−3
実施例11	27.5	27.5	45.0	32.9	40.8	13.2	13.2	10.9	50118	10
実施例12	29.7	29.7	40.5	36.2	34.9	14.5	14.5	11.2	50002	15

【００９３】
【表２】

	mol% SnO2	TiO2	Mg2SiO4	a (Sn, Ti)O2	b Mg2SiO4	c MgTi2O5	d MgSiO3	εr	Q×f。 GHz	τf ppm／℃
比較例1	0.0	0.0	100.0	0.0	100.0	0.0	0.0	7.3	80378	−68
比較例2	1.2	1.2	97.6	1.2	97.8	0.5	0.5	7.2	76219	−60
比較例3	2.0	2.0	96.1	2.0	96.4	0.8	0.8	7.1	31000	−40
比較例4	31.1	31.1	37.8	38.3	31.1	15.3	15.3	13.5	33530	37
比較例5	33.1	33.1	33.9	41.2	25.8	16.5	16.5	15.0	32897	59

【００９４】
［実施例１３］（第２発明）
SnO_2を４．８ｍｏｌ％、TiO_2を４．８ｍｏｌ％、Mg_2SiO_4を９０．５ｍｏｌ％となるように所定量を秤量し（表３参照）、これらをエタノール及びZrO_2ボールとともにボールミルに入れ、１２時間湿式混合した。その後、溶液を脱媒後、１１００℃で２時間仮焼し、粉砕した。この仮焼粉を出発原料として用い、仮焼粉１００重量部に対して０．５重量部のＭｎＯを添加し、これらをエタノール及びZrO_2ボールとともに

ボールミルに入れ、１２時間湿式混合した。その後、溶液を脱媒し、更に適量のポリビニルアルコール（ＰＶＡ）溶液を加えて乾燥した後、直径２０ｍｍ、厚み８．２ｍｍのペレットに成形し、空気雰囲気下において、１２５０℃で２時間焼成した。

【００９５】

こうして得られた高周波用誘電体磁器（表３参照）につき、アルキメデス法を用いて相対密度を測定したところ、９６％であった。

【００９６】

更に、この高周波用誘電体磁器を、直径１６．７ｍｍ及び厚み７．８ｍｍの大きさに加工した後、誘電共振法による測定で、共振周波数５．９～６．５ＧＨｚにおけるＱｆ値（すなわち$Q_m \times f$。値）、比誘電率ε_r、および共振周波数の温度係数τ_fを求めた。その結果を表３に示す。

【００９７】

得られた高周波用誘電体磁器についてＸ線回折分析を行ったところ、図７に示されるように、主生成相はチタン酸スズ（$(Sn_{0.8}Ti_{0.2})O_2$）、フォルステライト（Mg_2SiO_4）、マグネシウムチタネート（$MgTi_2O_5$）、及びステアタイト（$MgSiO_3$）の結晶相から構成されていることが確認された。また、得られた高周波用誘電体磁器について蛍光Ｘ線分析を行ったところ、ＭｎＯの存在が確認された。

【００９８】

一方、上記の出発原料粉末１００重量部に対して、ＭｎＯを焼結助剤として０．５重量部添加し、更にＰＶＡ２．７５重量部、セロゾール１重量部、及び分散剤１重量部を添加してスプレー顆粒を作製した。このスプレー顆粒を用いて、グリーン密度が２．３ｇ／cm^3になるように成形し、その後１２５０℃×２時間の空気雰囲気条件下で焼成した。かくして得られた高周波用誘電体磁器を構成部材として用いて、図３に示されるような同軸誘電体共振器を作製した。該同軸誘電体共振器の大きさは、軸長１２ｍｍ、外形（大略矩形状の開放面の一辺の長さ）１０．６ｍｍ、穴径３ｍｍであった。

【００９９】

得られた同軸誘電体共振器について、共振周波数２ＧＨｚで無負荷Ｑ値を評価した。その結果、同軸誘電体共振器としての無負荷Ｑ値は１３２０であった。このように、本発明に係る高周波用誘電体磁器を使用することにより、優れた高周波特性を有する同軸誘電体共振器が得られた。

【０１００】

［実施例１４～２５］（第２発明）

SnO_2、TiO_2、及びMg_2SiO_4を表３に示した配合比になるように所定量を秤量し、実施例１３と同条件で混合し、仮焼し、粉砕した。この仮焼粉を出発原料として用い、表３に示した配合量になるようにＭｎＯを所定量秤量して混合し、実施例１３と同様にしてバインダ添加及び成形などを行い、空気雰囲気下において表３に示されるように１２２５～１３００℃の温度にて２時間焼成して、高周波用誘電体磁器を作製し、実施例１３と同様な方法で特性を評価した。その結果を表３に示す。尚、表３及び後述の表４の「状態」欄は、製造時の焼成に際して接触する敷き板と反応した痕跡が視認されたかどうかの状態を示すものであり、「良」の表記は敷き板と反応した痕跡が視認されなかったことを指し、「敷き板と反応」の表記は敷き板と反応した痕跡が視認されたことを指す。

【０１０１】

［比較例６～１７］（第２発明）

SnO_2、TiO_2、及びMg_2SiO_4を表４に示した配合比になるように所定量を秤量し、実施例１３と同条件で混合し、仮焼し、粉砕した。この仮焼粉を出発原料として用い、表４に示した配合量になるようにＭｎＯを所定量秤量して混合し、実施例１３と同様にしてバインダ添加及び成形を行い、空気雰囲気下において表４に示されるように１２２５～１３００℃の温度にて２時間焼成して、高周波用誘電体磁器を作製し、実施例１３と同様な方法で特性を評価した。その結果を表４に示す。尚、比較例１３は、第１発明の実施例に該当する。

【０１０２】
【表３】

	mol% SnO2	mol% TiO2	mol% Mg2SiO4	mol% a (Sn,Ti)O2	mol% b Mg2SiO4	mol% c MgTi2O5	mol% d MgSiO3	MnO添加量 重量部	εr	Q値	τf ppm／℃	焼成温度 ℃	相対密度 %	状態
実施例13	4.8	4.8	90.4	4.9	91.2	2.0	2.0	0.5	7.5	56100	−28	1250	96	良
実施例14	9.8	9.8	80.4	10.4	81.2	4.2	4.2	0.5	8.4	53720	−26	1250	96	良
実施例15	11.7	11.7	76.6	12.6	77.4	5.0	5.0	1.0	8.4	58770	−24	1250	97	良
実施例16	13.4	13.4	73.2	14.6	73.8	5.8	5.8	1.0	8.9	69830	−24	1250	97	良
実施例17	16.4	16.4	67.2	18.2	67.3	7.3	7.3	1.0	9.6	59650	−16	1250	98	良
実施例18	18.9	18.9	62.2	21.4	61.5	8.6	8.6	1.0	10.4	69800	−15	1250	97	良
実施例19	19.0	19.0	62.0	21.4	61.5	8.6	8.6	1.0	9.5	53000	−15	1250	97	良
実施例20	21.1	21.1	57.8	24.2	56.4	9.7	9.7	1.0	11.0	62250	10	1250	98	良
実施例21	24.7	24.7	50.6	29.0	47.8	11.6	11.6	2.0	10.9	56920	12	1250	99	良
実施例22	27.5	27.5	45.0	32.9	40.8	13.2	13.2	2.0	10.9	54920	15	1250	98	良
実施例23	29.7	29.7	40.6	36.2	34.9	14.5	14.5	5.0	11.2	50000	14	1225	95	良
実施例24	29.7	29.7	40.6	36.2	34.9	14.5	14.5	5.0	11.2	53400	17	1250	96	良
実施例25	29.7	29.7	40.6	36.2	34.9	14.5	14.5	5.0	11.2	54500	18	1300	98	良

【０１０３】

【表４】

	mol% SnO2	mol% TiO2	mol% Mg2SiO4	mol% a (Sn,Ti)O2	mol% b Mg2SiO4	mol% c MgTi2O5	mol% d MgSiO3	MnO添加量 重量部	εr	Q値	τf ppm／℃	焼成温度 ℃	相対密度 %	状態
比較例6	0.0	0.0	100.0	0.0	100.0	0.0	0.0	0.1	7.3	80380	-68	1250	99	良
比較例7	1.2	1.2	97.6	1.2	97.8	0.5	0.5	0.1	7.2	76220	-60	1250	99	良
比較例8	2.0	2.0	96.1	2.0	96.4	0.8	0.8	0.1	7.1	61000	-40	1250	98	良
比較例9	31.1	31.1	37.8	38.3	31.1	15.3	15.3	0.1	13.5	33530	37	1250	97	良
比較例10	33.1	33.1	33.9	41.2	25.8	16.5	16.5	0.1	15.0	32900	59	1250	97	良
比較例11	18.9	18.9	62.2	21.4	61.5	8.6	8.6	0.1	8.4	20430	-25	1200	91	良
比較例12	18.9	18.9	62.2	21.4	61.5	8.6	8.6	0.1	9.4	32500	-20	1225	94	良
比較例13	29.7	29.7	40.6	36.2	34.9	14.5	14.5	0.0	9.0	40300	10	1225	94	良
比較例14	29.7	29.7	40.6	36.2	34.9	14.5	14.5	7.0	12.5	30020	20	1225	97	良
比較例15	29.7	29.7	40.6	36.2	34.9	14.5	14.5	7.0	12.5	28700	23	1250	95	敷き板と反応
比較例16	29.7	29.7	40.6	36.2	34.9	14.5	14.5	7.0	12.5	26540	28	1300	94	敷き板と反応
比較例17	29.7	29.7	40.6	36.2	34.9	14.5	14.5	10.0	17.0	21200	40	1225	97	敷き板と反応

【０１０４】

［実施例２６］（第３発明）

SnO_2を４．８ｍｏｌ％、TiO_2を４．８ｍｏｌ％、Mg_2SiO_4を９０．５ｍｏｌ％となるように所定量を秤量し（表５参照）、これらをエタノール及びZrO_2ボールとともにボールミルに入れ、１２時間湿式混合した。その後、溶液を脱媒後、解砕した。この解砕で得られた粉末の粒度分布は、図８に示すとおりであった（Ｄ５０を表５に示

す）。この粉末に適量のポリビニルアルコール（ＰＶＡ）溶液を加えて乾燥した後、直径１０ｍｍ、厚み３．５ｍｍのペレットに成形し、空気雰囲気下において、１３００℃で２時間焼成した。

【０１０５】

こうして得られた高周波用誘電体磁器（生成相につき表５参照）を、直径９．６ｍｍ及び厚み３．３ｍｍの大きさに加工した後、誘電共振法による測定で、共振周波数５．９～６．５ＧＨｚにおける$Q_m \times f$。値、比誘電率ε_r、および共振周波数の温度係数τ_fを求めた。その結果を表５に示す。

【０１０６】

尚、上記焼成により得られた高周波用誘電体磁器の表面の算術平均粗さＲａを測定した。その結果を表５に示した。

【０１０７】

得られた高周波用誘電体磁器についてＸ線回折分析を行ったところ、図９に示されるように、チタン酸スズ（$(Sn_{0.8}Ti_{0.2})O_2$）、フォルステライト（Mg_2SiO_4）、マグネシウムチタネート（$MgTi_2O_5$）、及びステアタイト（$MgSiO_3$）の結晶相から構成されていることが確認された。

【０１０８】

一方、上記の解砕で得られた粉末１００ｗｔ％に対して、ＰＶＡ２．７５ｗｔ％、セロゾール１ｗｔ％、及び分散剤１ｗｔ％を添加してスプレー顆粒を作製した。このスプレー顆粒を用いて、グリーン密度が２．１ｇ／ｃｍ^{3}になるように成形し、その後１３００℃×２時間の空気雰囲気条件下で焼成した。かくして得られた高周波用誘電体磁器を構成部材として用いて、図３に示されるような同軸誘電体共振器を作製した。該同軸誘電体共振器の大きさは、軸長１２ｍｍ、外形（大略矩形状の開放面の一辺の長さ）１０．６ｍｍ、穴径３ｍｍであった。

【０１０９】

得られた同軸誘電体共振器について、共振周波数２ＧＨｚで無負荷Ｑ値を評価した。その結果、同軸誘電体共振器としての無負荷Ｑ値は１３６０であった。このように、本発明に係る高周波用誘電体磁器を使用することにより、優れた高周波特性を有する同軸誘電体共振器が得られた。

【０１１０】

［実施例２７～３６］（第３発明）

SnO_2、TiO_2、及びMg_2SiO_4を表５に示した配合比になるように所定量を秤量し、実施例２６と同条件で混合、解砕及び成形などを行い、空気雰囲気下において１２００～１３５０℃の温度にて２時間焼成して、高周波用誘電体磁器を作製し、実施例２６と同様な方法で特性を評価した。その結果を表５に示す。

【０１１１】

［比較例１８～２４］（第３発明）

SnO_2、TiO_2、及びMg_2SiO_4を表６に示した配合比になるように所定量を秤量し、実施例２６と同条件で混合、解砕及び成形などを行い、空気雰囲気下において１２００～１３５０℃の温度にて２時間焼成して、高周波用誘電体磁器を作製し、実施例２６と同様な方法で特性を評価した。その結果を表６に示す。尚、比較例２１及び比較例２２は、第１発明の実施例に該当する。

【０１１２】

【表５】

	mol%			a	b	c	d				D50	算術平均粗さ	10.6mmφ同軸共振器
	SnO2	TiO2	Mg2SiO4	(Sn,Ti)O2	Mg2SiO4	MgTi2O5	MgSiO3	εr	Qm×f0値 GHz	τf ppm／℃	μm	Ra μm	無負荷Q
実施例26	4.8	4.8	90.4	4.9	91.2	2.0	2.0	7.5	50052	−30	1.2	0.8	1360
実施例27	9.8	9.8	80.4	10.4	81.2	4.2	4.2	8.4	50768	−28	1.1	0.8	1300
実施例28	11.7	11.7	76.6	12.6	77.4	5.0	5.0	8.4	50768	−28	1.3	0.9	1290
実施例29	13.4	13.4	73.2	14.6	73.8	5.8	5.8	8.9	71872	−27	1.3	0.9	1300
実施例30	16.4	16.4	67.2	18.2	67.3	7.3	7.3	9.6	56261	−18	1.4	1.0	1280
実施例31	18.9	18.9	62.2	21.4	61.5	8.6	8.6	10.4	74844	−4	1.4	1.0	1300
実施例32	19.0	19.0	62.0	21.4	61.5	8.6	8.6	9.5	53000	−15	1.5	1.1	1260
実施例33	21.1	21.1	57.8	24.2	56.4	9.7	9.7	11.0	62252	8	1.5	1.3	1240
実施例34	24.7	24.7	50.6	29.0	47.8	11.6	11.6	10.9	50286	−3	1.5	1.4	1180
実施例35	27.5	27.5	45.0	32.9	40.8	13.2	13.2	10.9	50118	10	1.8	1.6	1150
実施例36	29.7	29.7	40.6	36.2	34.9	14.5	14.5	11.2	50002	15	1.8	1.8	1100

【０１１３】

【表６】

	mol% SnO2	TiO2	Mg2SiO4	a (Sn,Ti)O2	b Mg2SiO4	c MgTi2O5	d MgSiO3	εr	Qm×f0値 GHz	τf ppm／℃	D50 μm	算術平均粗さ Ra μm	10.6mm□ 同軸共振器 無負荷Q
比較例18	0.0	0.0	100.0	0.0	100.0	0.0	0.0	7.3	80378	−68	0.6	0.3	1460
比較例19	1.2	1.2	97.6	1.2	97.8	0.5	0.5	7.2	76219	−60	0.8	0.4	1400
比較例20	2.0	2.0	96.1	2.0	96.4	0.8	0.8	7.1	31000	−40	1.0	1.6	1000
比較例21	18.9	18.9	62.2	21.4	61.5	8.6	8.6	10.4	74844	−4	2.1	2.1	920
比較例22	18.9	18.9	62.2	21.4	61.5	8.6	8.6	10.4	74844	−4	2.5	2.5	830
比較例23	31.1	31.1	37.8	38.3	31.1	15.3	15.3	13.5	33530	37	2.1	2.1	900
比較例24	33.1	33.1	33.9	41.2	25.8	16.5	16.5	15.0	32897	59	2.8	2.5	800

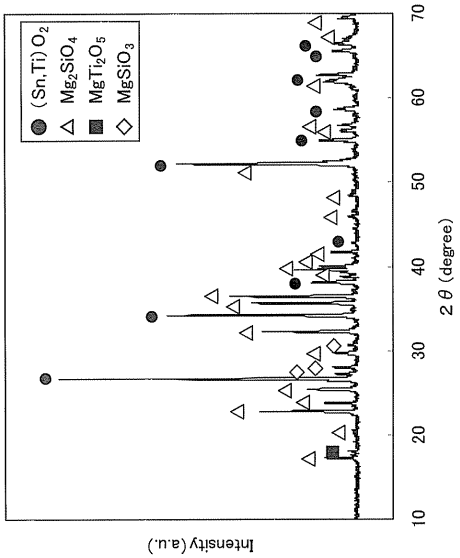
【産業上の利用可能性】

【０１１４】

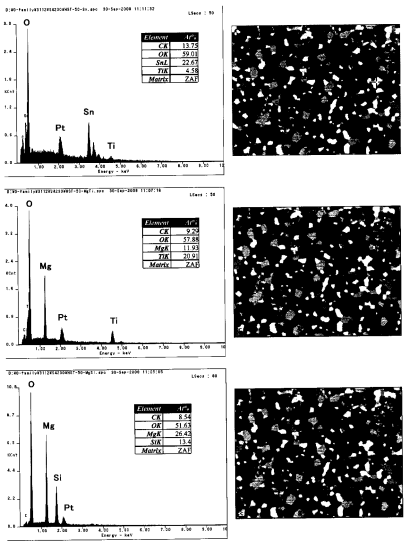
以上のように、本発明の高周波用誘電体磁器組成物は、通信用フィルタ等の高周波用誘電体磁器電子部品を作製するのに利用することが可能である。

【０１１５】
以上のように、本発明の高周波用誘電体磁器は、低誘電率且つ高Q_m値であり温度特性に優れるため、例えば、マイクロ波及びミリ波などの高周波領域で使用される集積回路等の高周波回路素子の構成部材として最適である。
【符号の説明】
【０１１６】
１・・・同軸誘電体共振器
２・・・支持部材
３・・・誘電体磁器基板
４・・・ストリップ導体
５・・・金属ケース
Ｈ・・・電磁界
６・・・誘電体磁器基板
７・・・ストリップ導体
８・・・接地導体膜
９・・・平面高周波回路

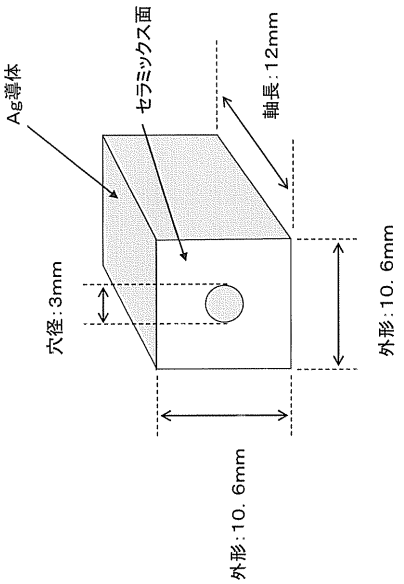
【図１】



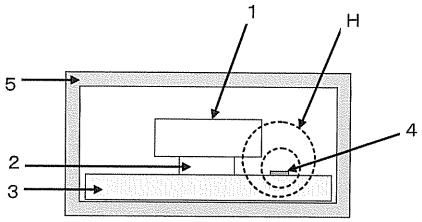
【図２】



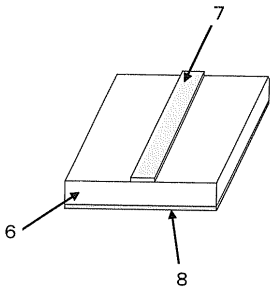
【図３】



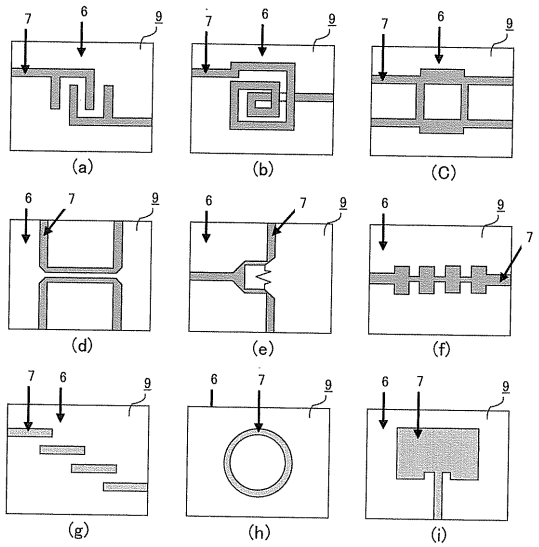
【図４】



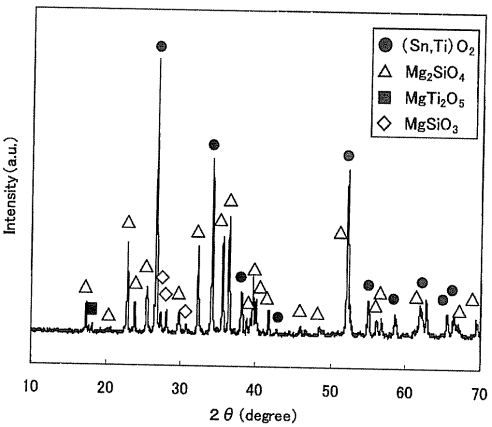
【図５】



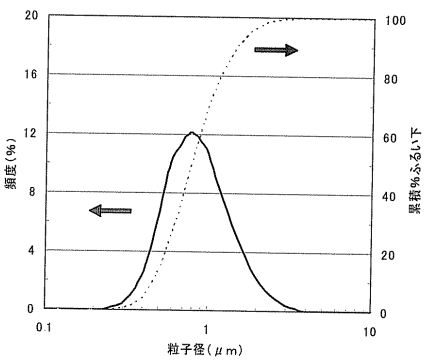
【図６】



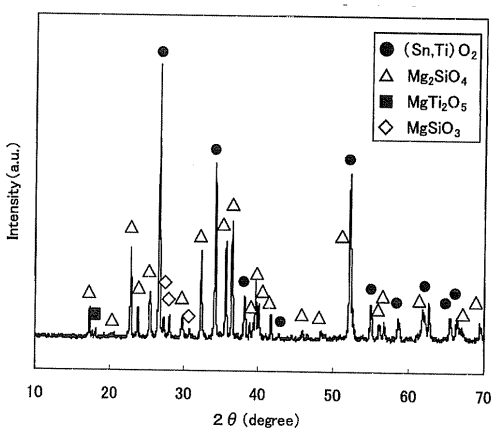
【図７】



【図８】



【図９】


(Sn,Ti) O2
Mg2SiO4
MgTi2O5
MgSiO3
Intensity (a.u.)
10
20
30
40
50
60
70
2θ (degree)

フロントページの続き

審査官　武石　卓

(56)参考文献　特開２００５－２３９４４６（ＪＰ，Ａ）
特開２００２－１０４８７０（ＪＰ，Ａ）
特開平０５－３２５６３８（ＪＰ，Ａ）
国際公開第２００４／１０６２６１（WO，Ａ１）
特開平０７－２０１２２３（ＪＰ，Ａ）
特開２０００－１４３３３６（ＪＰ，Ａ）
特開２００１－１３０９５２（ＪＰ，Ａ）
特開平０８－３３５８１０（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
Ｃ０４Ｂ　３５／００－３５／２２
Ｈ０１Ｂ　３／１２
Ｈ０１Ｐ　７／０４
Ｈ０１Ｐ　７／０８
Ｈ０１Ｐ　７／１０
ＣＡｐｌｕｓ／ＲＥＧＩＳＴＲＹ（ＳＴＮ）
ＪＳＴＰｌｕｓ／ＪＭＥＤＰｌｕｓ／ＪＳＴ７５８０（ＪＤｒｅａｍＩＩＩ）