(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
2024年10月3日(03.10.2024)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2024/203277 A1

(51) 国際特許分類:
C04B 35/468 (2006.01) *H01G 4/30* (2006.01)
H01B 3/12 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2024/009537

(22) 国際出願日： 2024年3月12日(12.03.2024)

(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 2023-053844 2023年3月29日(29.03.2023) JP

(71) 出願人：太陽誘電株式会社(**TAIYO YUDEN CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒1040031 東京都中央区京橋二丁目７番１９号 Tokyo (JP).

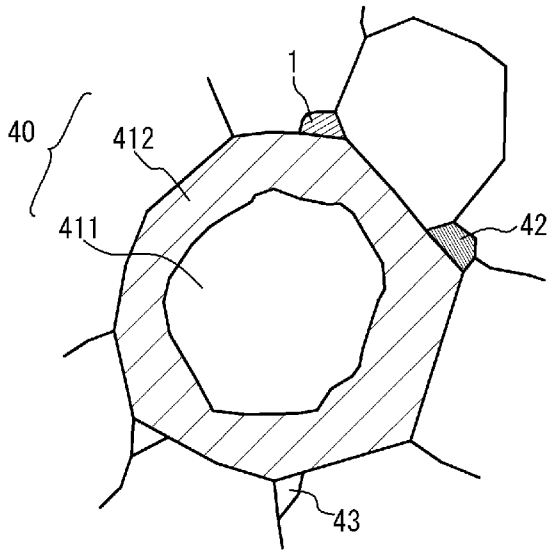
(72) 発明者：齋藤裕太(**SAITO, Yuta**); 〒1040031 東京都中央区京橋二丁目７番１９号 太陽誘電株式会社内 Tokyo (JP). 波多野桂一(**HATANO, Keiichi**); 〒1040031 東京都中央区京橋二丁目７番１９号 太陽誘電株式会社内 Tokyo (JP). 津島湧使(**TSUSHIMA, Yuji**); 〒1040031 東京都中央区京橋二丁目７番１９号 太陽誘電株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人：片山修平 (**KATAYAMA, Shuhei**); 〒1040031 東京都中央区京橋１－６－１ 三井住友海上テプコビル 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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL,

(54) **Title:** DIELECTRIC CERAMIC COMPOSITION AND LAMINATED CERAMIC ELECTRONIC COMPONENT

(54) 発明の名称： 誘電体磁器組成物および積層セラミック電子部品



(57) **Abstract:** The dielectric ceramic composition comprises: a main phase containing barium titanate having a perovskite structure; first crystal particles that satisfy $5.00 \leq a \leq 7.00$ and $0.50 \leq b \leq 1.50$ when the elemental ratio of titanium to the content of barium is taken as a and the elemental ratio of magnesium to the content of barium is taken as b; and second crystal particles that satisfy $1.50 \leq c \leq 3.50$, $0.03 \leq d \leq 0.30$, $0.03 \leq e \leq 0.30$, and $0.03 \leq f \leq 0.40$ when the elemental ratio of titanium to the content of barium is taken as c, the elemental ratio of magnesium to the content of barium is taken as d, the elemental ratio of manganese to the content of barium is taken as e, and the elemental ratio of nickel to the content of barium is taken as f.

WO 2024/203277 A1

［続葉有］

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, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, 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, ME, 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))

(57)　要約:誘電体磁器組成物は、ペロブスカイト型構造を有するチタン酸バリウムを含む主相と、バリウムの含有量に対するチタンの元素比率をａ、バリウムの含有量に対するマグネシウムの元素比率をｂとしたとき、５．００≦ａ≦７．００であり、０．５０≦ｂ≦１．５０を満たす第１結晶粒子と、バリウムの含有量に対するチタンの元素比率をｃ、バリウムの含有量に対するマグネシウムの元素比率をｄ、バリウムの含有量に対するマンガンの元素比率をｅ、バリウムの含有量に対するニッケルの元素比率をｆとしたとき、１．５０≦ｃ≦３．５０であり、０．０３≦ｄ≦０．３０であり、０．０３≦ｅ≦０．３０であり、０．０３≦ｆ≦０．４０を満たす第２結晶粒子と、を有する。

明　細　書

発明の名称 ： 誘電体磁器組成物および積層セラミック電子部品

技術分野

[0001]　本発明は、誘電体磁器組成物および積層セラミック電子部品に関する。

背景技術

[0002]　携帯電話を代表とする高周波通信用システムなどにおいて、積層セラミックコンデンサ（ＭＬＣＣ：Multi-Layer ceramic capacitor）などの積層セラミック電子部品が用いられている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開２０１２－１３１６６９号公報

特許文献2：特開２０１６－１５３３５９号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004]　積層セラミック電子部品の誘電体層に用いられる誘電体磁器組成物には、チタン酸バリウムをコア部とし、各種添加物が固溶したシェル部がコア部を囲むコア－シェル構造の焼結体が利用されている。この構造を取ることで、１２５℃付近に存在するチタン酸バリウムの強誘電体相から常誘電体相へ変化するキュリー温度近傍における大きな静電容量の発現を、シェル部では各種添加物の効果により低温に遷移させることが可能であり、室温付近の実用となる温度領域において、静電容量をより高める設計が可能となっている。

[0005]　コア－シェル構造を伴わないチタン酸バリウムの応用例として、チタン酸バリウム複合酸化物として、$Ba_4Ti_{12}O_{27}$ないし、$Ba_6Ti_{17}O_{40}$を少なくとも１つ含有し、さらにチタン酸バリウムに対して金属換算で０．０４質量％以上０．２０質量％以下のマンガンを含有している圧電セラミックスが開示されている（例えば、特許文献１参照）。

[0006]　また、$(Ba_{1-x}Ca_x)_a(Ti_{1-y}Zr_y)O_3$（式中、０．０９≦ｘ≦０

．３０、０．０２５≦ｙ≦０．０８５、０．９８６≦ａ≦１．０２０である。）で表される金属酸化物と、該金属酸化物１００重量部に対して、金属換算で０．０４重量部以上０．３６重量部以下のマンガンとを含有し、チタン酸バリウム複合酸化物として、$BaTi_2O_5$、$BaTi_4O_9$、$BaTi_5O_{11}$、$BaTi_6O_{13}$、$BaTi_7O_{14}$、$BaTi_8O_{16}$、$Ba_2Ti_5O_{12}$、$Ba_2Ti_6O_{13}$、$Ba_2Ti_9O_{20}$、$Ba_4Ti_{11}O_{26}$、$Ba_4Ti_{13}O_{30}$、$CaTi_2O_4$、$CaTi_2O_5$、$CaTi_4O_9$、$Ca_2Ti_5O_{12}$、$CaZr_4O_9$、$Ca_2Zr_7O_{16}$、$Ca_6Zr_{19}O_{44}$、$CaZrTi_2O_7$、および$Ca_2Zr_5Ti_2O_{16}$、から選ばれる少なくとも一つの金属酸化物を含有する圧電セラミックスが開示されている（例えば、特許文献２参照）。

[0007] 特許文献１および特許文献２に開示されている圧電セラミックスを積層セラミック電子部品の誘電体層に用いられている誘電体磁器組成物に応用しようとしたところ、特許文献１および特許文献２に開示されているとおりに、結晶粒子の最大粒子径が２μｍ以上となることが確認され、誘電体層が１０μｍ以下となるような積層セラミック電子部品においては、結晶粒界数が少なくなって絶縁抵抗が著しく劣化してしまう課題が生じた。

[0008] 近年、車載電子制御装置など人の生命に関わる電子回路においても、積層セラミックコンデンサの使用用途が拡大していることから、高い絶縁抵抗を確保することが必要となった。

[0009] 本発明は、上記課題に鑑みなされたものであり、高い絶縁抵抗を実現することができる誘電体磁器組成物および積層セラミック電子部品を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0010] 本発明に係る誘電体磁器組成物は、ペロブスカイト型構造を有するチタン酸バリウムを含む主相と、バリウム、チタン、およびマグネシウムを含み、バリウムの含有量に対するチタンの元素比率をａ、バリウムの含有量に対するマグネシウムの元素比率をｂとしたとき、５．００≦ａ≦７．００であり、０．５０≦ｂ≦１．５０を満たす第１結晶粒子と、バリウム、チタン、マ

グネシウム、マンガン、およびニッケルを含み、バリウムの含有量に対するチタンの元素比率をｃ、バリウムの含有量に対するマグネシウムの元素比率をｄ、バリウムの含有量に対するマンガンの元素比率をｅ、バリウムの含有量に対するニッケルの元素比率をｆとしたとき、１．５０≦ｃ≦３．５０であり、０．０３≦ｄ≦０．３０であり、０．０３≦ｅ≦０．３０であり、０．０３≦ｆ≦０．４０を満たす第２結晶粒子と、を有する。

[0011] 上記誘電体磁器組成物において、前記第１結晶粒子は、さらにマンガンおよびニッケルを含み、前記第１結晶粒子において、バリウムの含有量に対するマンガンの元素比率をｇ、バリウムの含有量に対するニッケルの元素比率をｈとしたとき、０．１０≦ｇ≦４．００であり、０．１０≦ｈ≦４．００を満たしていてもよい。

[0012] 上記誘電体磁器組成物は、シリケート、エンスタテイト、バリウムマグネシウムシリケート、またはフレスノイトの少なくとも１つを含む第３結晶粒子をさらに含んでいてもよい。

[0013] 上記誘電体磁器組成物において、前記第１結晶粒子および前記第２結晶粒子は、前記主相の粒界に位置していてもよい。

[0014] 上記誘電体磁器組成物において、前記第１結晶粒子および前記第２結晶粒子は、前記主相の粒界三重点に位置していてもよい。

[0015] 上記誘電体磁器組成物において、前記第３結晶粒子は、前記主相の粒界に位置していてもよい。

[0016] 上記誘電体磁器組成物において、前記第３結晶粒子は、前記主相の粒界三重点に位置していてもよい。

[0017] 上記誘電体磁器組成物において、前記主相は、コア部と、前記コア部を覆うシェル部と、を有していてもよい。

[0018] 上記誘電体磁器組成物において、前記シェル部に希土類元素を含んでいてもよい。

[0019] 上記誘電体磁器組成物において、チタンに対するバリウムの元素比率が０．９４０以上０．９８０以下であり、チタンに対するガドリニウムの元素比

率が０．００５以上０．０５以下であり、チタンに対するマグネシウムの元素比率が０．００２以上０．０２以下であってもよい。

[0020] 本発明に係る他の誘電体磁器組成物は、ペロブスカイト型構造を有し、チタン酸バリウムを含み、コア部および前記コア部を覆うシェル部を有する主相と、バリウム、チタン、およびマグネシウムを含み、バリウムの含有量に対するチタンの元素比率をａ、バリウムの含有量に対するマグネシウムの元素比率をｂとしたとき、５．００≦ａ≦７．００であり、０．５０≦ｂ≦１．５０を満たす第１結晶粒子と、を有する。

[0021] 上記誘電体磁器組成物において、前記第１結晶粒子は、さらにマンガンおよびニッケルを含み、前記第１結晶粒子において、バリウムの含有量に対するマンガンの元素比率をｇ、バリウムの含有量に対するニッケルの元素比率をｈとしたとき、０．１０≦ｇ≦４．００であり、０．１０≦ｈ≦４．００を満たしていてもよい。

[0022] 本発明に係る積層セラミック電子部品は、誘電体磁器組成物を含む複数の誘電体層と、前記複数の誘電体層を挟んで互いに対向する複数の内部電極と、前記複数の内部電極に電気的に接続される外部電極と、を有する。

発明の効果

[0023] 本発明によれば、高い絶縁抵抗を実現することができる誘電体磁器組成物および積層セラミック電子部品を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0024] [図1]第１実施形態に係る誘電体磁器組成物を例示する図である。

[図2]単位格子を例示する図である。

[図3]積層セラミックコンデンサの部分断面斜視図である。

[図4]図３のＡ－Ａ線断面図である。

[図5]図３のＢ－Ｂ線断面図である。

[図6]積層セラミックコンデンサの製造方法のフローを例示する図である。

[図7]（ａ）および（ｂ）は内部電極形成工程を例示する図である。

[図8]圧着工程を例示する図である。

[図9]サイドマージン部を例示する図である。

発明を実施するための形態

[0025] 以下、図面を参照しつつ、実施形態について説明する。

[0026] （第１実施形態）

第１実施形態に係る誘電体磁器組成物は、一般式ＡＢＯ$_3$で表されるペロブスカイト構造を有する結晶粒子を含むセラミックス多結晶体である。これらのセラミックス多結晶体は、図１で例示するように、主相結晶粒子４０を含むとともに、第１結晶粒子４１を含む。

[0027] 主相結晶粒子４０は、ペロブスカイト型構造を有するチタン酸バリウムを含む。第１結晶粒子４１は、バリウム、チタン、およびマグネシウムを含み、バリウムの含有量に対するチタンの元素比率をａ（以下、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａとも称する）、バリウムの含有量に対するマグネシウムの元素比率をｂ（以下、Ｍｇ／Ｔｉ元素比率ｂとも称する）としたとき、５．００≦ａ≦７．００であり、０．５０≦ｂ≦１．５０を満たす。

[0028] 例えば、誘電体磁器組成物の断面において、主相結晶粒子４０および第１結晶粒子４１が総数として４００個以上確認される視野で観察をしたときに、主相結晶粒子４０の面積比率は５０．０％以上９９．９５％以下であり、第１結晶粒子４１の面積比率は０．０５０％以上４５．０％以下である。

[0029] 主相結晶粒子４０の主成分である、ペロブスカイト型構造を有するチタン酸バリウムの結晶粒子は、図２で例示するような単位格子を有する。この単位格子には、格子の頂点に位置するＡサイト、格子の面心に位置するＯサイト、およびＯサイトを頂点とする八面体内に位置するＢサイトがそれぞれ存在する。ペロブスカイト構造では、Ａサイトにバリウム（Ｂａ），ストロンチウム（Ｓｒ），カルシウム（Ｃａ）といった二価の陽イオンを取りうるアルカリ土類金属が配座し、Ｂサイトにハフニウム（Ｈｆ），ジルコニウム（Ｚｒ），チタン（Ｔｉ）といった四価の陽イオンを取りうる金属原子が配座する。

[0030] ペロブスカイト構造は、化学量論組成から外れた組成式も許容する。すな

わち、Ａサイト元素とＢサイト元素の比率は必ずしも１対１である必要はなく、ペロブスカイト構造を保持しうる範囲で欠陥が生成していていもよい。また、酸素についても欠陥が生成されていてもよい。例えば、組成式$A_{\alpha}BO_{3-\beta}$としたとき、０．９８≦α≦１．０１、０≦β≦０．２０の範囲の組成を許容し得る。

[0031] しかしながら、例えば酸素欠陥が生成することによって、抵抗率が低下したり、イオン伝導性を示したりすることにより、積層セラミックコンデンサとして用いる場合の電気的寿命が低下したり、誘電損失が大きくなり、実用上用いることができない場合がある。このため、ペロブスカイト構造を有する主相結晶粒子４０に対して、必要に応じて、アルカリ土類元素であるマグネシウム（Ｍｇ）、カルシウム（Ｃａ）、ストロンチウム（Ｓｒ）、バリウム（Ｂａ）の少なくとも１つを含ませてもよい。これにより、抵抗率を向上させたり、電気的長寿命を高めたり、静電容量に対する誘電損失を低減させることが可能である。

[0032] また、必要に応じて、主相結晶粒子４０は、第１遷移元素であるスカンジウム（Ｓｃ）、チタン（Ｔｉ）、バナジウム（Ｖ）、クロム（Ｃｒ）、鉄（Ｆｅ）、コバルト（Ｃｏ）、ニッケル（Ｎｉ）、銅（Ｃｕ）、亜鉛（Ｚｎ）の少なくとも１つを含んでいてもよい。これにより、抵抗率を向上させたり、電気的長寿命を高めたり、静電容量に対する誘電損失を低減させることが可能である。

[0033] また、主相結晶粒子４０は、必要に応じて、第２遷移元素であるイットリウム（Ｙ）、ジルコニウム（Ｚｒ）、ニオブ（Ｎｂ）、モリブデン（Ｍｏ）、ルテニウム（Ｒｕ）、ロジウム（Ｒｈ）、パラジウム（Ｐｄ）、銀（Ａｇ）の少なくとも１つを含んでいてもよい。これにより、抵抗率を向上させたり、電気的長寿命を高めたり、静電容量に対する誘電損失を低減させることが可能である。

[0034] また、主相結晶粒子４０は、必要に応じて、第３遷移元素であるランタン（Ｌａ）、セリウム（Ｃｅ）、プラセオジム（Ｐｒ）、ネオジム（Ｎｄ）、

サマリウム（Ｓｍ）、ユーロピウム（Ｅｕ）、ガドリニウム（Ｇｄ）、テルビウム（Ｔｂ）、ジスプロシウム（Ｄｙ）、ホルミウム（Ｈｏ）、エルビウム（Ｅｒ）、ツリウム（Ｔｍ）、イッテルビウム（Ｙｂ）、ルテチウム（Ｌｕ）、ハフニウム（Ｈｆ）、タンタル（Ｔａ）、タングステン（Ｗ）、レニウム（Ｒｅ）、オスミウム（Ｏｓ）、イリジウム（Ｉｒ）、白金（Ｐｔ）、金（Ａｕ）の少なくとも１つを含んでいてもよい。これにより、抵抗率を向上させたり、電気的長寿命を高めたり、静電容量に対する誘電損失を低減させることが可能である。

[0035] 上述したアルカリ土類元素、第１遷移金属元素、第２遷移金属元素、および第３遷移金属元素の少なくとも１つを添加物として用いることで、誘電体磁器組成物を得るための１０００℃から１４００℃における焼成温度域で、主相結晶粒子４０の界面から内部へアルカリ土類元素、第１遷移金属元素、第２遷移金属元素、および第３遷移金属元素の少なくとも１つを固溶させて、主相結晶粒子４０にコア部４１１およびシェル部４１２を生成することができる。例えば、誘電体磁器組成物は、バリウムの含有量に対するガドリニウムの元素比率であるＧｄ／Ｔｉ元素比ｊが、０．００５≦ｊ≦０．０５となるように、チタン酸バリウム１００ｍｏｌに対して、酸化ガドリニウム（Gd_2O_3）換算で０．２５ｍｏｌ以上、２．５ｍｏｌ以下のガドリニウムの添加を行うことが好ましい。酸化ガドリニウムの添加に加えて、バリウムの含有量に対するマグネシウム元素比率であるＭｇ／Ｔｉ元素比ｋが、０．００２≦ｋ≦０．０５となるように、チタン酸バリウム１００ｍｏｌに対して、酸化マグネシウム（ＭｇＯ）換算で０．２ｍｏｌ以上、２．０ｍｏｌ以下の添加を行うことが好ましい。例えば、０．００５≦ｊ≦０．０５、および０．００２≦ｋ≦０．０２が成立する場合に、添加したガドリニウムと、マンガンと、チタンとが、チタン酸バリウム結晶粒子の表面で反応し、Ｇｄ（Ｔｉ，Ｍｇ）O_3と考えられる複合型ペロブスカイト化合物の様態でシェル部として生成することができる。それにより、誘電体磁器組成物は、酸素欠陥が粒界およびシェル部の内部を移動することを抑制し、抵抗率の低下を抑制

して、電気的寿命を向上させることが可能となる。

[0036] ところで、コアーシェル構造において、一般的に焼成温度が高くなるにしたがって、各種添加物がチタン酸バリウムからなる結晶粒子により多く固溶して、シェル部４１２が厚くなり、コア部４１１の粒径が小さくなる傾向にある。シェル部４１２においては、例えばマグネシウムなどの、チタンよりも価数が小さいアクセプタ元素がＢサイト元素として固溶することにより、還元焼成時におけるチタンの還元を抑制し、絶縁抵抗を向上させることができる。したがって、一例としては、積層セラミックコンデンサの高い絶縁抵抗の確保のためには、アクセプタ元素をシェル部４１２に固溶させる必要がある。

[0037] しかしながら、アクセプタ元素がシェル部４１２に固溶することで酸素欠陥が生成し、電気的寿命を低下させて信頼性を低下させる場合があった。したがって、高い絶縁抵抗と高い信頼性を両立するためには、アクセプタ元素のシェル部４１２への固溶量を精密に制御する必要がある。

[0038] 本実施形態に係る誘電体磁器組成物は、ペロブスカイト型構造を有するチタン酸バリウムを含む主相結晶粒子４０に加えて、５．００≦Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａ≦７．００であり、０．５０≦Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂ≦１．５０を満たす第１結晶粒子４１を備えている。この構成のように第１結晶粒子４１を意図的に析出させることによって、高い信頼性を実現することができるとともに、高い絶縁抵抗を実現することができる。Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａは、５．１５以上であることが好ましく、５．４０以上であることで高い絶縁抵抗を実現することができ、より好ましい。また、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａは、６．８５以下であることが好ましく、６．６０以下であることで高い絶縁抵抗を実現することができ、より好ましい。Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂは、０．６０以上であることが好ましく、０．７５以上であることで高い絶縁抵抗を実現することができ、より好ましい。また、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂは、１．４０以下であることが好ましく、１．２５以下であることで高い絶縁抵抗を実現することができ、より好ましい。

[0039] 第１結晶粒子４１は、さらにマンガンおよびニッケルを含み、バリウムの含有量に対するマンガンの元素比率をｇ（以下、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｇとも称する）、バリウムの含有量に対するニッケルの元素比率をｈ（以下、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｈとも称する）としたとき、０．１０≦ｇ≦４．００であり、０．１０≦ｈ≦４．００を満たすことが好ましい。誘電体磁器組成物の抵抗率の低下を抑制できるからである。Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｇは、０．５０以上であることがより好ましく、１．００以上であることで高い絶縁抵抗を実現することができ、さらに好ましい。また、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｇは、３．７５以下であることがより好ましく、３．５０以下であることで高い絶縁抵抗を実現することができ、さらに好ましい。Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｈは、０．５０以上であることが好ましく、１．００以上であることで高い絶縁抵抗を実現することができ、より好ましい。また、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｈは、３．７５以下であることが好ましく、３．５０以下であることで高い絶縁抵抗を実現することができ、より好ましい。

[0040] また、第１結晶粒子４１は、カルシウム、スカンジウム、バナジウム、クロム、鉄、コバルト、ニッケル、銅、亜鉛、イットリウム、ジルコニウム、ニオブ、およびモリブデンの少なくとも１つを含んでいてもよい。誘電体磁器組成物の抵抗率の低下を抑制できるからである。

[0041] 誘電体磁器組成物に第１結晶粒子４１が含まれていることは、以下の手順で確認することができる。

[0042] まず、誘電体磁器組成物の表面を露出させる。この露出方法は特に限定されず、素子を切断ないし研磨する方法等を採用することができる。このとき、内部のセラミックス組織を十分に観察するには、最終的に２ミクロン以下のダイヤモンドペースト等でもって、鏡面と判断できる平滑さが得られることが好ましい。前記の素子を切断ないし研磨する方法等は、ＳＥＭによって観察する際に好適である。さらに、前記の鏡面と判断できる平滑さを持った誘電体磁器組成物の表面から、イオンビーム等を用いて、厚さ１００ｎｍ以下の薄片を得ることもできる。前記薄片は、ＳＴＥＭによって観察する際に

好適である 。

[0043] 次に、走査型電子顕微鏡（ＳＥＭ：Ｓｃａｎｎｉｎｇ Ｅｌｅｃｔｒｏｎ Ｍｉｃｒｏｓｃｏｐｅ）または走査型透過電子顕微鏡（ＳＴＥＭ：Ｓｃａｎｎｉｎｇ Ｔｒａｎｓｍｉｓｓｉｏｎ Ｅｌｅｃｔｒｏｎ Ｍｉｃｒｏｓｃｏｐｅ）に装着したエネルギー分散型Ｘ線分光器（ＥＤＳ：Ｅｎｅｒｇｙ Ｄｉｓｐｅｒｓｉｖｅ Ｘ－ｒａｙ Ｓｐｅｃｔｒｏｍｅｔｒｙ）または波長分散型Ｘ線分光器（ＷＤＳ：Ｗａｖｅｌｅｎｇｔｈ Ｄｉｓｐｅｒｓｉｖｅ Ｘ－ｒａｙ Ｓｐｅｃｔｒｏｍｅｔｒｙ）、電子線マイクロアナライザ（ＥＰＭＡ：Ｅ ｌｅｃｔｒｏｎ Ｐｒｏｂｅ Ｍｉｃｒｏ Ａｎａｌｙｚｅｒ）、およびレーザ照射型誘導結合プラズマ質量分析（ＬＡ－ＩＣＰＭＳ）等によって、第１結晶粒子４１における、組成を同定する。

[0044] 例えばＥＤＳ測定においては、簡単にはバリウムのＫ線ないしＬ線に対するチタンのＫ線強度及び、マグネシウムのＫ線強度でもって、特定される。より詳細には、それらの強度から、原子番号効果、吸収効果、蛍光励起効果を勘案した補正（ＺＡＦ補正）を行い、バリウムの元素含有量に対する各々の比率を算出し、各元素の比率とする。

[0045] ＥＤＳ測定を行う際には、特にバリウムのＬα線およびチタンのＫα線による測定では、そのエネルギピークが近接しており、十分な元素含有量の比較が難しい場合がある。このため、測定の際に、ピークの被りの無い、バリウムのＬβ２線およびＬｌｌａｂ線が十分な強度で得られていることが望ましい。具体的には、そのピークにおける強度が、１００００カウント以上となることが望ましい。このとき、バリウムによる特性Ｘ線の強度が特定でき、元素含有量が算出できるから、バリウムのＬα線およびチタンのＫα線が重なり合っていたとしても、チタンのＫα線の強度が特定でき、元素含有量が精度良く評価することができる。

[0046] 上記の方法で得られた、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａが５．００以上７．００以下かつ、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂが０．５０以上１．５０以下となる結晶粒子が確認された場合に、その結晶粒子が第１結晶粒子４１であると判定するこ

とができる。すなわち、周囲に存在するチタン酸バリウムからなる主相結晶粒子４０と比較して、バリウムに対してチタンおよびマグネシウムの元素比率が大きいことでもって、第１結晶粒子４１のチタン酸バリウム複合酸化物であると判断する。このとき、観察の際にＳＥＭを用いている場合には、反射電子像（ＢＳＥ像：Ｂａｃｋ　Ｓｃａｔｔｅｒｅｄ　Ｅｌｅｃｔｒｏｎ　Ｉｍａｇｅ）による観察において、主相結晶粒子４０に対して、第１結晶粒子４１は、相対的に輝度が低く、暗く観察されることが特徴である。また、観察の際にＳＴＥＭを用いている場合には、高角度散乱暗視野像（ＨＡＡＤＦ－ＳＴＥＭ像：ｈｉｇｈ－ａｎｇｌｅ　ａｎｎｕｌａｒ　ｄａｒｋ－ｆｉｅｌｄ　ｓｃａｎｎｉｎｇ　ｔｒａｎｓｍｉｓｓｉｏｎ　ｅｌｅｃｔｒｏｎ　ｍｉｃｒｏｓｃｏｐｙ　ｉｍａｇｅ）による観察において、主相結晶粒子４０に対して、第１結晶粒子４１は、相対的に輝度が低く、暗く観察されることが特徴である。

[0047] また、第１結晶粒子４１に含まれるマンガン含有量およびニッケル含有量を定量する場合は、簡単にはバリウムのＫ線ないしＬ線に対するマンガンのＫ線強度およびニッケルのＫ線強度でもって、定量される。より詳細には、それらの強度から、原子番号効果、吸収効果、蛍光励起効果を勘案した補正（ＺＡＦ補正）を行い、バリウムの元素含有量に対する各々の比率を算出し、各元素の比率とする。

また、第１結晶粒子４１の粒子径がＳＥＭでのＥＤＳ分析における空間分解能よりも小さい場合、走査型透過電子顕微鏡（ＳＴＥＭ：　Ｓｃａｎｎｉｎｇ　Ｔｒａｎｓｍｉｓｓｉｏｎ　Ｅｌｅｃｔｒｏｎ　Ｍｉｃｒｏｓｃｏｐｅ）　によって、観察し、第１結晶粒子４１における組成を、ＥＤＳを用いて同定することが望ましい。

[0048] 図１で例示するように、誘電体磁器組成物は、主相結晶粒子４０および第１結晶粒子４１に加えて、第２結晶粒子４２を含んでいることが好ましい第２結晶粒子４２は、バリウム、チタン、マグネシウム、マンガン、およびニッケルを含み、バリウムの含有量に対するチタンの元素比率をｃ（以下、Ｔ

ｉ／Ｂａ元素比率ｃとも称する）、バリウムの含有量に対するマグネシウムの元素比率をｄ（以下、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄとも称する）、バリウムの含有量に対するマンガンの元素比率をｅ（以下、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅとも称する）、バリウムの含有量に対するニッケルの元素比率をｆ（以下、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆとも称する）としたとき、１．５０≦Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃ≦３．５０であり、０．０３≦Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄ≦０．３０であり、０．０３≦Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅ≦０．３０であり、０．０３≦Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆ≦０．４０を満たす。

[0049] 例えば、誘電体磁器組成物の断面において、主相結晶粒子４０、第１結晶粒子４１、および第２結晶粒子４２が総数として４００個以上確認される視野で観察をしたときに、主相結晶粒子４０の面積比率は５０．０％以上９９．９５％以下であり、第１結晶粒子４１の面積比率は０．０５０％以上４５．０％以下であり、第２結晶粒子４２の面積比率は０．０５０％以上１５．０％以下である。

[0050] 第２結晶粒子４２は、添加物としてチタンを主成分とする添加物を用いた場合に、副次的に生成される結晶粒子となる。第２結晶粒子４２を意図的に析出させることによって、主相結晶粒子４および第１結晶粒子４１が得られるとともに、高い信頼性が求められている積層セラミックコンデンサにおいて、高い絶縁抵抗を得ることが可能となる。

[0051] Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃは、１．７０以上であることがより好ましく、１．９０以上であることで高い絶縁抵抗を実現することができ、さらに好ましい。また、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃは、２．７０以下であることがより好ましく、２．５０以下であることで高い絶縁抵抗を実現することができ、さらに好ましい。Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄは、０．０５以上であることが好ましく、０．０８以上であることで高い絶縁抵抗を実現することができ、より好ましい。また、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄは、０．２５以下であることが好ましく、０．２０以下であることで高い絶縁抵抗を実現することができ、より好ましい。Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅは、０．０５以上であることがより好ましく、０．

０８以上であることで高い絶縁抵抗を実現することができ、さらに好ましい。また、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅは、０．２５以下であることがより好ましく、０．２０以下であることで高い絶縁抵抗を実現することができ、さらに好ましい。Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆは、０．０５以上であることが好ましく、０．１０以上であることで高い絶縁抵抗を実現することができ、より好ましい。また、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆは、０．３５以下であることが好ましく、０．３０以下であることで高い絶縁抵抗を実現することができ、より好ましい。

[0052] 第２結晶粒子４２は、さらに、カルシウム、スカンジウム、バナジウム、クロム、鉄、コバルト、ニッケル、銅、亜鉛、イットリウム、ジルコニウム、ニオブ、およびモリブデンの少なくとも１つを含んでいてもよい。誘電体磁器組成物の抵抗率の低下を抑制できるからである。

[0053] 誘電体磁器組成物が第２結晶粒子４２を含有していることは、以下の手順で確認することができる。

[0054] まず、誘電体磁器組成物の表面を露出させる。この露出方法は特に限定されず、素子を切断ないし研磨する方法等を採用することができる。このとき、内部のセラミックス組織を十分に観察するには、最終的に２ミクロン以下のダイヤモンドペースト等でもって、鏡面と判断できる平滑さが得られることが好ましい。前記の素子を切断ないし研磨する方法等は、ＳＥＭによって観察する際に好適である。さらに、前記の鏡面と判断できる平滑さを持った誘電体磁器組成物の表面から、イオンビーム等を用いて、厚さ１００ｎｍ以下の薄片を得ることもできる。前記薄片は、ＳＴＥＭによって観察する際に好適である。

[0055] 次に、ＳＥＭ又はＳＴＥＭに装着したＥＤＳ又はＷＤＳ、ＥＰＭＡ及びＬＡ－ＩＣＰＭＳなどによって、第２結晶粒子４２における、組成を同定する。

[0056] 例えばＥＤＳ測定においては、簡単にはバリウムのＫ線ないしＬ線に対するチタンのＫ線強度、マグネシウムのＫ線強度、マンガンのＫ線強度、およ

びニッケルのＫ線強度でもって、特定される。より詳細には、それらの強度から、原子番号効果、吸収効果、蛍光励起効果を勘案した補正（ＺＡＦ補正）を行い、バリウムの元素含有量に対する各々の比率を算出し、各元素の比率とする。試料厚みが例えば数１０ｎｍ以下となるような十分に薄い場合は、クリフロリマー法で用いる比例係数(Ｋ因子)による補正を行い、各元素の比率としてもよい。また、クリフロリマー法で用いる補正に加えて、試料の吸収効果を勘案した補正を行い、各元素の比率としてもよい。試料の吸収効果は試料の厚みと密度を求めることで補正することができる。試料の厚みは、例えば二波励起条件下にて収束電子回折（ＣＢＥＤ：Ｃｏｎｖｅｒｇｅｎｔ－Ｂｅａｍ　Ｅｌｅｃｔｒｏｎ　Ｄｉｆｆｒａｃｔｉｏｎ)図形を取得し、回折ディスクにて観察される ロッキングカーブを解析することで求めることができる。ＣＢＥＤ図形を取得する粒子は主相結晶粒子４０等を用いることができる。試料の密度は、例えばチタン酸バリウムの密度である６．０２ｇ／ｃｍ^{3}等の値を用いることができる。

[0057] ＥＤＳ測定を行う際には、特にバリウムのＬα線およびチタンのＫα線による測定では、そのエネルギピークが近接しており、十分な元素含有量の比較が難しい場合がある。このため、測定の際に、ピークの被りの無い、バリウムのＬβ２線およびＬｌｌａｂ線が十分な強度で得られていることが望ましい。具体的には、そのピークにおける強度が、１００００カウント以上となることが望ましい。このとき、バリウムによる特性Ｘ線の強度が特定でき、元素含有量が算出できるから、バリウムのＬα線およびチタンのＫα線が重なり合っていたとしても、チタンのＫα線の強度が特定でき、元素含有量が精度良く評価することができる。

[0058] 上記の方法で得られた、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃが、１．５０≦ｃ≦３．５０であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄが、０．０３≦ｄ≦０．３０であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅが、０．０３≦ｅ≦０．３０であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆが、０．０３≦ｆ≦０．４０となるとなる結晶粒子が確認された場合に、その結晶粒子が第２結晶粒子４２であると判定することができる。すなわち

、周囲に存在するチタン酸バリウムからなる主相結晶粒子４０と比較して、バリウムに対してチタン、マグネシウム、マンガン、およびニッケルの元素比率が大きくかつ、第１結晶粒子４１と比較して、バリウムに対してチタン、マグネシウム、マンガン、およびニッケルの元素比率が小さいことでもって、第２結晶粒子４２のチタン酸バリウム複合酸化物であると判断する。このとき、観察の際にＳＥＭを用いている場合には、反射電子像（ＢＳＥ像：Ｂａｃｋ Ｓｃａｔｔｅｒｅｄ Ｅｌｅｃｔｒｏｎ Ｉｍａｇｅ）による観察において、主相結晶粒子４０に対して、第２結晶粒子４２は、相対的に輝度が低く、暗く観察されることが特徴である。また、観察の際にＳＴＥＭを用いている場合には、高角度散乱暗視野像（ＨＡＡＤＦ－ＳＴＥＭ像：ｈｉｇｈ－ａｎｇｌｅ ａｎｎｕｌａｒ ｄａｒｋ－ｆｉｅｌｄ ｓｃａｎｎｉｎｇ ｔｒａｎｓｍｉｓｓｉｏｎ ｅｌｅｃｔｒｏｎ ｍｉｃｒｏｓｃｏｐｙ ｉｍａｇｅ）による観察において、主相結晶粒子４０に対して、第２結晶粒子４２は、相対的に輝度が低く、暗く観察されることが特徴である。また、第２結晶粒子４２に含まれるマンガン含有量およびニッケル含有量を定量する場合は、簡単にはバリウムのＫ線ないしＬ線に対するマンガンのＫ線強度およびニッケルのＫ線強度でもって、定量される。より詳細には、それらの強度から、原子番号効果、吸収効果、蛍光励起効果を勘案した補正（ＺＡＦ補正）を行い、バリウムの元素含有量に対する各々の比率を算出し、各元素の比率とする。試料厚みが例えば数１０ｎｍ以下となるような十分に薄い場合は、クリフロリマー法で用いる比例係数(Ｋ因子)による補正を行い、各元素の比率としてもよい。また、クリフロリマー法で用いる補正に加えて、試料の吸収効果を勘案した補正を行い、各元素の比率としてもよい。試料の吸収効果は試料の厚みと密度を求めることで補正することができる。試料の厚みは、例えば二波励起条件下にて収束電子回折（ＣＢＥＤ：Ｃｏｎｖｅｒｇｅｎｔ－Ｂｅａｍ Ｅｌｅｃｔｒｏｎ Ｄｉｆｆｒａｃｔｉｏｎ)図形を取得し、回折ディスクにて観察されるロッキングカーブを解析することで求めることができる。ＣＢＥＤ図形を取得する粒子は主相結晶粒子４０等を用

いることができる。試料の密度は、例えばチタン酸バリウムの密度である６．０２ｇ／ｃｍ^{3}等の値を用いることができる。

[0059] また、第２結晶粒子４２の粒子径がＳＥＭでのＥＤＳ分析における空間分解能よりも小さい場合、走査型透過電子顕微鏡（ＳＴＥＭ： Ｓｃａｎｎｉｎｇ Ｔｒａｎｓｍｉｓｓｉｏｎ Ｅｌｅｃｔｒｏｎ Ｍｉｃｒｏｓｃｏｐｅ）によって、第２結晶粒子４２における、組成を同定することが望ましい。

[0060] なお、誘電体磁器組成物は、主相結晶粒子４０、第１結晶粒子４１、および第２結晶粒子４２以外に、これらとは組成もしくは結晶構造の異なる第３結晶粒子４３、空隙４４などを含んでいてもよい。例えば、誘電体磁器組成物の断面において、主相結晶粒子４０、第１結晶粒子４１、第２結晶粒子４２、および第３結晶粒子４３が総数として４００個以上確認される視野で観察をしたときに、第３結晶粒子４３の面積比率は０．０５０％以上１５．０％以下である。

[0061] 第３結晶粒子４３は、シリケート（SiO_2）、エンスタテイト（$MgSiO_3$）、バリウムマグネシウムシリケート（$BaMgSiO_4$）、フレスノイト（$Ba_2TiSi_2O_8$）などの結晶粒子である。第３結晶粒子を含むことにより、誘電体磁器組成物を１３００℃以下で焼成して十分に緻密化することが可能となる。第３結晶粒子４３の代わりに、シリケート（SiO_2）、エンスタテイト（$MgSiO_3$）、バリウムマグネシウムシリケート（$BaMgSiO_4$）、フレスノイト（$Ba_2TiSi_2O_8$）などのガラス粒子が誘電体磁器組成物に含まれていてもよい。

[0062] 誘電体磁器組成物は、主相結晶粒子４０、第１結晶粒子４１、第２結晶粒子４２、および第３結晶粒子４３に加えて、ゲイキーライト（$MgTiO_3$）、酸化マンガンニッケル（（Ｍｎ，Ｎｉ）Ｏ）、パイロファナイト（$MnTiO_3$）といった添加した物質由来、もしくは電極由来で生じる副化合物を含んでいてもよい。

[0063] 図１で例示するように、第１結晶粒子４１および第２結晶粒子４２は、主

相結晶粒子４０の粒界に位置することが好ましい。誘電体磁器組成物の抵抗率の低下を抑制できるからである。

[0064] 第１結晶粒子４１および第２結晶粒子４２は、主相結晶粒子４０の粒界三重点に位置することが好ましい。誘電体磁器組成物の抵抗率の低下を抑制できるからである。なお、粒界三重点とは、３つの結晶粒界の境界のことである。

[0065] 第３結晶粒子４３は、主相結晶粒子４０の粒界に位置することが好ましい。誘電体磁器組成物の比誘電率の低下を抑制できるからである。

[0066] 第３結晶粒子４３は、主相結晶粒子４０の粒界三重点に位置することが好ましい。誘電体磁器組成物の比誘電率の低下を抑制できるからである。

[0067] 主相結晶粒子４０のシェル部４１２に希土類元素を含んでいることが好ましい。誘電体磁器組成物の寿命が向上するからである。

[0068] 主相結晶粒子４０、第１結晶粒子４１、第２結晶粒子４２、第３結晶粒子４３全体において、バリウムの含有量に対するチタンの元素比率は、０．９４０より大きく０．９８０以下であることが好ましい。充分な第１結晶粒子４１および第２結晶粒子４２が生成するからである。

[0069] （第２実施形態）

第２実施形態においては、第１実施形態に係る誘電体磁器組成物を用いた積層セラミックコンデンサ１００について説明する。

[0070] 図３は、積層セラミックコンデンサ１００の部分断面斜視図である。図４は、図３のＡ－Ａ線断面図である。図５は、図３のＢ－Ｂ線断面図である。図３～５で例示するように、積層セラミックコンデンサ１００は、略直方体形状を有する積層チップ１０と、積層チップ１０のいずれかの対向する２端面に設けられた外部電極２０ａ、２０ｂとを備える。なお、積層チップ１０の当該２端面以外の４面のうち、積層方向の上面および下面以外の２面を側面と称する。外部電極２０ａ、２０ｂは、積層チップ１０の積層方向の上面、下面および２側面に延在している。ただし、外部電極２０ａ、２０ｂは、互いに離間している。

[0071] 積層チップ１０は、誘電体磁器組成物を含む誘電体層１１と、卑金属材料を含む内部電極層１２とが、交互に積層された構成を有する。各内部電極層１２の端縁は、積層チップ１０の外部電極２０ａが設けられた端面と、外部電極２０ｂが設けられた端面とに、交互に露出している。それにより、各内部電極層１２は、外部電極２０ａと外部電極２０ｂとに、交互に導通している。その結果、積層セラミックコンデンサ１００は、複数の誘電体層１１が内部電極層１２を介して積層された構成を有する。また、誘電体層１１と内部電極層１２との積層体において、積層方向の最外層には内部電極層１２が配置され、当該積層体の上面および下面は、カバー層１３によって覆われている。カバー層１３は、セラミック材料を主成分とする。例えば、カバー層１３の材料は、誘電体層１１とセラミック材料の主成分が同じである。

[0072] 積層セラミックコンデンサ１００のサイズは、例えば、長さ０．２５ｍｍ、幅０．１２５ｍｍ、高さ０．１２５ｍｍであり、または長さ０．４ｍｍ、幅０．２ｍｍ、高さ０．２ｍｍ、または長さ０．６ｍｍ、幅０．３ｍｍ、高さ０．３ｍｍであり、または長さ１．０ｍｍ、幅０．５ｍｍ、高さ０．５ｍｍであり、または長さ３．２ｍｍ、幅１．６ｍｍ、高さ１．６ｍｍであり、または長さ４．５ｍｍ、幅３．２ｍｍ、高さ２．５ｍｍであるが、これらのサイズに限定されるものではない。

[0073] 内部電極層１２は、Ｎｉ（ニッケル）、Ｃｕ（銅）、Ｓｎ（スズ）等の卑金属を主成分とする。内部電極層１２として、Ｐｔ（白金），Ｐｄ（パラジウム），Ａｇ（銀），Ａｕ（金）などの貴金属やこれらを含む合金を用いてもよい。

[0074] 図４で例示するように、外部電極２０ａに接続された内部電極層１２と外部電極２０ｂに接続された内部電極層１２とが対向する領域は、積層セラミックコンデンサ１００において電気容量を生じる領域である。そこで、当該電気容量を生じる領域を、容量領域１４と称する。すなわち、容量領域１４は、異なる外部電極に接続された隣接する内部電極層１２同士が対向する領域である。

[0075] 外部電極２０ａに接続された内部電極層１２同士が、外部電極２０ｂに接続された内部電極層１２を介さずに対向する領域を、エンドマージン１５と称する。また、外部電極２０ｂに接続された内部電極層１２同士が、外部電極２０ａに接続された内部電極層１２を介さずに対向する領域も、エンドマージン１５である。すなわち、エンドマージン１５は、同じ外部電極に接続された内部電極層１２が異なる外部電極に接続された内部電極層１２を介さずに対向する領域である。エンドマージン１５は、電気容量を生じない領域である。

[0076] 図５で例示するように、積層チップ１０において、積層チップ１０の２側面から内部電極層１２に至るまでの領域をサイドマージン１６と称する。すなわち、サイドマージン１６は、上記積層構造において積層された複数の内部電極層１２が２側面側に延びた端部を覆うように設けられた領域である。サイドマージン１６も、電気容量を生じない領域である。

[0077] 本実施形態に係る積層セラミックコンデンサ１００においては、容量領域１４の誘電体層１１の少なくとも一部に図１で例示した主相結晶粒子４０および第１結晶粒子４１が含まれている。それにより、高い信頼性を実現することができるとともに、高い絶縁抵抗を実現することができる。

[0078] 続いて、積層セラミックコンデンサ１００の製造方法について説明する。図６
は、積層セラミックコンデンサ１００の製造方法のフローを例示する図である。

[0079] （原料粉末作製工程）

まず、誘電体層１１を形成するための誘電体磁器組成物を用意する。誘電体層１１に含まれるＡサイト元素およびＢサイト元素は、通常はABO_3の粒子の焼結体の形で誘電体層１１に含まれる。例えば、チタン酸バリウムは、ペロブスカイト構造を有する室温付近において正方晶系に属する化合物であって、高い比誘電率を示す。このチタン酸バリウムは、一般的に、二酸化チタンなどのチタン原料と炭酸バリウムなどのバリウム原料とを反応させて合

成することができる。誘電体層１１の主成分となるチタン酸バリウムの合成方法としては、従来種々の方法が知られており、例えば固相法、ゾルーゲル法、水熱法等が知られている。本実施形態においては、これらのいずれも採用することができる。

[0080] 前記の方法によって得られたチタン酸バリウム粉末に、所定の添加物を添加する。一例として、第１実施形態に係る誘電体磁器組成物の例で示した範囲における添加物が用いられる。必要に応じて、Ｚｒ（ジルコニウム）、Ｖ（バナジウム）、Ｃｒ（クロム）、Ｃｏ（コバルト）、Ｎｉ（ニッケル）、Ｌｉ（リチウム）、Ｂ（ホウ素）、Ｎａ（ナトリウム）、Ｋ（カリウム）、を含有した酸化物もしくはガラスを用いてもよい。また、必要に応じて、希土類元素として、Ｓｃ（スカンジウム）、Ｙ（イットリウム）、Ｌａ（ランタン）、Ｃｅ（セリウム）、Ｐｒ（プラセオジム）、Ｎｄ（ネオジム）、Ｐｍ（プロメチウム）、Ｓｍ（サマリウム）、Ｔｂ（テルビウム）、Ｄｙ（ジスプロシウム）、Ｈｏ（ホルミウム）、Ｅｒ(エルビウム)、Ｔｍ（ツリウム）、Ｙ（イッテルビウム）およびＬｕ（ルテチウム）の酸化物を添加してもよい。

[0081] なお、第１結晶粒子４１を生成するためには、１モルのチタン酸バリウムに対して、酸化チタン（TiO_2）換算で０．００２モル以上、０．０６モル以下の、チタンを主成分とする添加物を添加し、酸化マグネシウム（ＭｇＯ）換算で０．００２モル以上、０．０５モル以下の、マグネシウムを主成分とする添加物を添加することが好ましい。これにより、第１結晶粒子４１が生成される。なお、チタンを主成分とする添加物としては、酸化チタン以外に、水酸化チタン（$Ti(OH)_4$）、塩化チタン（$TiCl_4$）、炭化チタン（ＴｉＣ）、硫化チタン（TiS_2）などを用いてもよい。また、マグネシウムを主成分とする添加物として、酸化マグネシウム以外に水酸化マグネシウム（ＭｇＯＨ）、塩化マグネシウム（$MgCl_2$）、炭酸マグネシウム（$MgCO_3$）、硫化マグネシウム（ＭｇＳ）などを用いてもよい。

[0082] また、第２結晶粒子４２を生成するためには、１モルのチタン酸バリウム

に対して、酸化チタン（TiO_2）換算で０．００２モル以上、０．０８モル以下の、チタンを主成分とする添加物を添加し、酸化マグネシウム（ＭｇＯ）換算で０．００２モル以上、０．０５モル以下の、マグネシウムを主成分とする添加物を添加し、炭酸マンガン（$MnCO_3$）換算で０．００２モル以上、０．０５モル以下の、マンガンを主成分とする添加物を添加することが好ましい。これにより、第２結晶粒子４２が生成される。チタンを主成分とする添加物としては、酸化チタン以外に、水酸化チタン（$Ti(OH)_4$）、塩化チタン（$TiCl_4$）、炭化チタン（ＴｉＣ）、硫化チタン（TiS_2）などを用いてもよい。また、マグネシウムを主成分とする添加物としては酸化マグネシウム以外に水酸化マグネシウム（ＭｇＯＨ）、塩化マグネシウム（$MgCl_2$）、炭酸マグネシウム（$MgCO_3$）、硫化マグネシウム（ＭｇＳ）などを用いてもよい。また、マンガンを主成分とする添加物としては炭酸マンガン以外に一酸化マンガン（ＭｎＯ）や三酸化二マンガン（Mn_3O_4）、二酸化マンガン（MnO_2）などを用いてもよい。

[0083] 例えば、チタン酸バリウム粉末に添加化合物を含む化合物を湿式混合し、乾燥および粉砕してチタン酸バリウム粉末と、添加化合物が混合されたセラミック材料を調製する。例えば、上記のようにして得られたセラミック材料について、必要に応じて粉砕処理して粒径を調節し、あるいは分級処理と組み合わせることで粒径を整えてもよい。以上の工程により、誘電体磁器組成物が得られる。

[0084]（塗工工程）

次に、得られた誘電体磁器組成物に、ポリビニルブチラール（ＰＶＢ）樹脂等のバインダと、エタノール、トルエン等の有機溶剤と、可塑剤とを加えて湿式混合する。得られたスラリを使用して、例えばダイコータ法やドクターブレード法により、基材上にセラミックグリーンシート５１を塗工して乾燥させる。基材は、例えば、ポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）フィルムである。塗工工程を例示する図は省略した。

[0085]（内部電極形成工程）

次に、図７（ａ）で例示するように、セラミックグリーンシート５１の表面に、有機バインダを含む内部電極形成用の金属導電ペーストをスクリーン印刷、グラビア印刷等により印刷することで、極性の異なる一対の外部電極に交互に引き出される内部電極パターン５２を配置する。金属導電ペーストには、共材としてセラミック粒子を添加する。セラミック粒子の主成分は、特に限定するものではないが、誘電体層１１の主成分セラミックと同じであることが好ましい。例えば、平均粒子径が５０ｎｍ以下のチタン酸バリウムを均一に分散させてもよい。

[0086] 次に、原料粉末作製工程で得られた誘電体磁器組成物に、エチルセルロース系等のバインダと、ターピネオール系等の有機溶剤とを加え、ロールミルにて混練して逆パターン層用の誘電体パターンペーストを得る。図７（ａ）で例示するように、セラミックグリーンシート５１上において、内部電極パターン５２が印刷されていない周辺領域に誘電体パターンペーストを印刷することで誘電体パターン５３を配置し、内部電極パターン５２との段差を埋める。内部電極パターン５２および誘電体パターン５３が印刷されたセラミックグリーンシート５１を積層単位と称する。

[0087] その後、図７（ｂ）で例示するように、内部電極層１２と誘電体層１１とが互い違いになるように、かつ内部電極層１２が誘電体層１１の長さ方向の両端面に端縁が交互に露出して極性の異なる一対の外部電極２０ａ，２０ｂに交互に引き出されるように、積層単位を積層していく。例えば、内部電極パターン５２の積層数を１００～１０００層とする。

[0088]（圧着工程）

図８で例示するように、積層単位が積層された積層体の上下にカバーシート５４を所定数（例えば２～１０層）だけ積層して熱圧着する。カバーシート５４のセラミック材料として、一例としては上述した誘電体磁器組成物を用いることができる。その後、所定チップ寸法（例えば１．０ｍｍ×０．５ｍｍ）にカットする。

[0089]（焼成工程）

このようにして得られたセラミック積層体を、N_2雰囲気、大気雰囲気、等で脱バインダ処理した後に外部電極２０ａ，２０ｂの下地層となる金属ペーストをディップ法で塗布し、酸素分圧10^{-12}～10^{-9}ａｔｍの還元雰囲気中で１１００～１３００℃で１０分～２時間焼成する。このようにして、積層セラミックコンデンサ１００が得られる。なお、焼成工程においては、急速昇温を行う。焼成工程における昇温速度は、例えば、６０００℃／ｈである。これにより、焼成における実質的な時間を短縮し、より高い量産性を得ることが可能となる。

[0090] （アニール工程）

その後、酸素分圧10^{-12}～10^{-9}ａｔｍの還元雰囲気中で９００～１１５０℃で３０分～２時間アニールし、徐冷する。冷却速度は例えば、２００℃／ｈという速度で冷却を行う。このようにして、容量領域１４の誘電体層１１の少なくとも一部に、図１で例示した主相結晶粒子４０を形成することができるとともに、第１結晶粒子４１を形成することができる。

[0091] （再酸化処理工程）

その後、N_2ガス雰囲気中で６００℃～１０００℃で再酸化処理を行ってもよい。

[0092] （めっき処理工程）

その後、外部電極２０ａ，２０ｂの下地層上に、めっき処理により、Ｃｕ，Ｎｉ，Ｓｎ等の金属コーティングを行う。以上の工程により、積層セラミックコンデンサ１００が完成する。

[0093] 本実施形態に係る製造方法によれば、容量領域１４の誘電体層１１の少なくとも一部に、図１で例示した主相結晶粒子４０を形成することができるとともに、第１結晶粒子４１を形成することができる。それにより、高い信頼性を実現することができるとともに、高い絶縁抵抗を実現することができる。

[0094] 積層セラミックコンデンサの直流抵抗率ρ（Ω・ｃｍ）については、次の方法で測定する。

[0095] まず、焼成工程、アニール工程、再酸化処理工程、およびめっき処理工程を経た積層セラミックコンデンサ１００について、直流電流Ｉ（ｎＡ）の測定を行う。次に、積層セラミックコンデンサ１００について、図４および図５で例示したＡ－Ａ線断面およびＢ－Ｂ線断面について、切断ないし研磨する方法等で容量領域１４を露出させて、最終的に２ミクロン以下のダイヤモンドペーストなどでもって、鏡面と判断できる平滑さが得られている状態にて、その内部電極層１２の有効面積について算出する。有効面積Ｓは、図４における容量領域１４における内部電極層１２の長さＬ（Ｘ軸方向）と積層数Ｎと、図５における容量領域１４における内部電極層１２の幅Ｗ（Ｙ軸方向）とでもって、Ｓ＝Ｌ　×　Ｗ　×　（Ｎ－１）で算出する。また、このとき誘電体層１１の各々の厚みについても測定を行い、その平均の厚みｔを算出する。このとき、直流抵抗率ρ（Ω・ｃｍ）は、測定時の直流電圧をＶ（Ｖ）とした場合に、ρ＝Ｖ／Ｉｘ Ｓ／ｔで計算することができる。

[0096] なお、上記各実施形態においては、積層セラミック電子部品の一例として積層セラミックコンデンサについて説明したが、それに限られない。例えば、バリスタやサーミスタなどの、他の積層セラミック電子部品を用いてもよい。

実施例

[0097]（実施例１）

平均粒径１５０ｎｍのチタン酸バリウム粉末を用意し、チタン酸バリウム粉末１００ｍｏｌに対して、Gd_2O_3を０．７５ｍｏｌ添加し、TiO_2を２．０ｍｏｌ添加し、$MnCO_3$を１．５ｍｏｌ添加し、SiO_2を１．０ｍｏｌ添加し、ＭｇＯを０．５ｍｏｌ添加し、誘電体磁器組成物を得た。Ｂａ／Ｔｉ元素比率は、０．９８０とした。

[0098] 誘電体磁器組成物をエタノール、トルエン、ＰＶＢ（ポリビニルブチラール）樹脂と混合し、誘電体スラリを作製した。このスラリをダイコータでセラミックグリーンシートに成形し、乾燥させた。内部電極層１２の主成分金属と、共材と、バインダ（エチルセルロース）と、溶剤と、必要に応じてそ

の他助剤を含んでいる金属導電ペーストを遊星ボールミルで作製し、セラミックグリーンシートにスクリーン印刷した。セラミックグリーンシート上に金属導電ペーストが印刷された積層単位を１１枚重ね、その上下にカバーシートをそれぞれ積層した。その後、熱圧着により積層体を得て、所定の形状に切断した。得られた積層体をＮ２雰囲気中で脱バインダした後に、積層体の両端面から各側面にかけて、Ｎｉを主成分とする金属フィラー、共材、バインダ、溶剤などを含む金属導電ペーストを下地層用に塗布し、乾燥させた。その後、還元雰囲気中、１３００℃で下地層用の金属導電ペーストを積層体と同時に焼成して焼結体を得た。昇温速度は、６０００℃／ｈとした。得られた焼結体の形状寸法は、長さ０．６ｍｍ、幅０．３ｍｍ、高さ０．３ｍｍであった。その後、９００～１１５０℃で１時間のアニール処理を行った。その後、９５０℃にて、再酸化処理を行なった。その後、メッキ処理して下地層の表面にＣｕめっき層、Ｎｉめっき層およびＳｎめっき層を形成し、積層セラミックコンデンサ１００を得た。誘電体層１１の平均厚みは、２．０μｍであった。

[0099]（実施例２）

実施例２では、チタン酸バリウム粉末１００ｍｏｌに対して、Gd_2O_3を０．７５ｍｏｌ添加し、TiO_2を４．０ｍｏｌ添加し、$MnCO_3$を１．５ｍｏｌ添加し、SiO_2を１．０ｍｏｌ添加し、ＭｇＯを０．５ｍｏｌ添加し、誘電体磁器組成物を得た。Ｂａ／Ｔｉ元素比率は、０．９６２とした。焼成温度を１２５０℃とした。アニール時間を１時間とした。その他の条件は、実施例１と同じとした。

[0100]（実施例３）

実施例３では、チタン酸バリウム粉末１００ｍｏｌに対して、Gd_2O_3を０．７５ｍｏｌ添加し、TiO_2を４．０ｍｏｌ添加し、$MnCO_3$を１．５ｍｏｌ添加し、SiO_2を１．０ｍｏｌ添加し、ＭｇＯを０．５ｍｏｌ添加し、誘電体磁器組成物を得た。Ｂａ／Ｔｉ元素比率は、０．９６２とした。焼成温度を１２５０℃とした。アニール時間を０．５時間とした。その他の条

件は、実施例１と同じとした。

[0101]（実施例４）

実施例４では、チタン酸バリウム粉末１００ｍｏｌに対して、Gd_2O_3を０．７５ｍｏｌ添加し、TiO_2を４．０ｍｏｌ添加し、$MnCO_3$を１．５ｍｏｌ添加し、SiO_2を１．０ｍｏｌ添加し、ＭｇＯを０．５ｍｏｌ添加し、誘電体磁器組成物を得た。Ｂａ／Ｔｉ元素比率は、０．９６２とした。焼成温度を１２５０℃とした。アニール時間を２時間とした。その他の条件は、実施例１と同じとした。

[0102]（実施例５）

実施例５では、チタン酸バリウム粉末１００ｍｏｌに対して、Gd_2O_3を０．７５ｍｏｌ添加し、TiO_2を６．０ｍｏｌ添加し、$MnCO_3$を１．５ｍｏｌ添加し、SiO_2を１．０ｍｏｌ添加し、ＭｇＯを０．５ｍｏｌ添加し、誘電体磁器組成物を得た。Ｂａ／Ｔｉ元素比率は、０．９４３とした。焼成温度を１２００℃とした。アニール時間を１時間とした。その他の条件は、実施例１と同じとした。

[0103]（実施例６）

実施例６では、チタン酸バリウム粉末１００ｍｏｌに対して、Gd_2O_3を０．７５ｍｏｌ添加し、TiO_2を４．０ｍｏｌ添加し、$MnCO_3$を１．５ｍｏｌ添加し、SiO_2を１．０ｍｏｌ添加し、ＭｇＯを０．２ｍｏｌ添加し、誘電体磁器組成物を得た。Ｂａ／Ｔｉ元素比率は、０．９６２とした。焼成温度を１２８０℃とした。アニール時間を１時間とした。その他の条件は、実施例１と同じとした。

[0104]（実施例７）

実施例７では、チタン酸バリウム粉末１００ｍｏｌに対して、Gd_2O_3を０．７５ｍｏｌ添加し、TiO_2を４．０ｍｏｌ添加し、$MnCO_3$を１．５ｍｏｌ添加し、SiO_2を１．０ｍｏｌ添加し、ＭｇＯを１．０ｍｏｌ添加し、誘電体磁器組成物を得た。Ｂａ／Ｔｉ元素比率は、０．９６２とした。焼成温度を１２５０℃とした。アニール時間を１時間とした。その他の条件は

、実施例１と同じとした。

[0105]（実施例８）

実施例８では、チタン酸バリウム粉末１００ｍｏｌに対して、Gd_2O_3を０．７５ｍｏｌ添加し、TiO_2を４．０ｍｏｌ添加し、$MnCO_3$を１．５ｍｏｌ添加し、SiO_2を１．０ｍｏｌ添加し、ＭｇＯを２．０ｍｏｌ添加し、誘電体磁器組成物を得た。Ｂａ／Ｔｉ元素比率は、０．９６２とした。焼成温度を１２５０℃とした。アニール時間を１時間とした。その他の条件は、実施例１と同じとした。

[0106]（実施例９）

実施例９では、チタン酸バリウム粉末１００ｍｏｌに対して、Gd_2O_3を０．７５ｍｏｌ添加し、TiO_2を４．０ｍｏｌ添加し、$MnCO_3$を１．５ｍｏｌ添加し、SiO_2を０．２ｍｏｌ添加し、ＭｇＯを０．５ｍｏｌ添加し、誘電体磁器組成物を得た。Ｂａ／Ｔｉ元素比率は、０．９６２とした。焼成温度を１３００℃とした。アニール時間を１時間とした。その他の条件は、実施例１と同じとした。

[0107]（実施例１０）

実施例１０では、チタン酸バリウム粉末１００ｍｏｌに対して、Gd_2O_3を０．７５ｍｏｌ添加し、TiO_2を４．０ｍｏｌ添加し、$MnCO_3$を１．５ｍｏｌ添加し、SiO_2を０．５ｍｏｌ添加し、ＭｇＯを０．５ｍｏｌ添加し、誘電体磁器組成物を得た。Ｂａ／Ｔｉ元素比率は、０．９６２とした。焼成温度を１３００℃とした。アニール時間を１時間とした。その他の条件は、実施例１と同じとした。

[0108]（実施例１１）

実施例１１では、チタン酸バリウム粉末１００ｍｏｌに対して、Gd_2O_3を０．７５ｍｏｌ添加し、TiO_2を４．０ｍｏｌ添加し、$MnCO_3$を１．５ｍｏｌ添加し、SiO_2を２．０ｍｏｌ添加し、ＭｇＯを０．５ｍｏｌ添加し、誘電体磁器組成物を得た。Ｂａ／Ｔｉ元素比率は、０．９６２とした。焼成温度を１２００℃とした。アニール時間を１時間とした。その他の条件

は、実施例１と同じとした。

[0109]（実施例１２）

実施例１２では、チタン酸バリウム粉末１００ｍｏｌに対して、Gd_2O_3を０．７５ｍｏｌ添加し、TiO_2を４．０ｍｏｌ添加し、$MnCO_3$を５．０ｍｏｌ添加し、SiO_2を０．５ｍｏｌ添加し、ＭｇＯを０．５ｍｏｌ添加し、誘電体磁器組成物を得た。Ｂａ／Ｔｉ元素比率は、０．９６２とした。焼成温度を１３００℃とした。アニール時間を０．５時間とした。その他の条件は、実施例１と同じとした。

[0110]（実施例１３）

実施例１３では、チタン酸バリウム粉末１００ｍｏｌに対して、Gd_2O_3を０．７５ｍｏｌ添加し、TiO_2を４．０ｍｏｌ添加し、$MnCO_3$を０．２ｍｏｌ添加し、SiO_2を０．５ｍｏｌ添加し、ＭｇＯを０．５ｍｏｌ添加し、誘電体磁器組成物を得た。Ｂａ／Ｔｉ元素比率は、０．９６２とした。焼成温度を１３００℃とした。アニール時間を２時間とした。その他の条件は、実施例１と同じとした。

[0111]（比較例１）

比較例１では、チタン酸バリウム粉末１００ｍｏｌに対して、Gd_2O_3を０．７５ｍｏｌ添加し、TiO_2を１．０ｍｏｌ添加し、$MnCO_3$を１．５ｍｏｌ添加し、SiO_2を１．０ｍｏｌ添加し、ＭｇＯを０．５ｍｏｌ添加し、誘電体磁器組成物を得た。Ｂａ／Ｔｉ元素比率は、０．９９０とした。焼成温度を１３２０℃とした。アニール時間を２時間とした。その他の条件は、実施例１と同じとした。

[0112]（比較例２）

比較例２では、チタン酸バリウム粉末１００ｍｏｌに対して、Gd_2O_3を０．７５ｍｏｌ添加し、TiO_2を８．０ｍｏｌ添加し、$MnCO_3$を１．５ｍｏｌ添加し、SiO_2を１．０ｍｏｌ添加し、ＭｇＯを０．５ｍｏｌ添加し、誘電体磁器組成物を得た。Ｂａ／Ｔｉ元素比率は、０．９２６とした。焼成温度を１１６０℃とした。アニール時間を１時間とした。その他の条件は

、実施例１と同じとした。

[0113] （比較例３）

比較例３では、チタン酸バリウム粉末１００ｍｏｌに対して、Gd_2O_3を０．７５ｍｏｌ添加し、TiO_2を４．０ｍｏｌ添加し、$MnCO_3$を１．５ｍｏｌ添加し、SiO_2を１．０ｍｏｌ添加し、ＭｇＯを０．０５ｍｏｌ添加し、誘電体磁器組成物を得た。Ｂａ／Ｔｉ元素比率は、０．９６２とした。焼成温度を１３００℃とした。アニール時間を１時間とした。その他の条件は、実施例１と同じとした。

[0114] （比較例４）

比較例４では、チタン酸バリウム粉末１００ｍｏｌに対して、Gd_2O_3を０．７５ｍｏｌ添加し、TiO_2を４．０ｍｏｌ添加し、$MnCO_3$を１．５ｍｏｌ添加し、SiO_2を１．０ｍｏｌ添加し、ＭｇＯを５．０ｍｏｌ添加し、誘電体磁器組成物を得た。Ｂａ／Ｔｉ元素比率は、０．９６２とした。焼成温度を１２００℃とした。アニール時間を１時間とした。その他の条件は、実施例１と同じとした。

[0115] （比較例５）

比較例５では、チタン酸バリウム粉末１００ｍｏｌに対して、Gd_2O_3を０．７５ｍｏｌ添加し、TiO_2を４．０ｍｏｌ添加し、$MnCO_3$を１．５ｍｏｌ添加し、SiO_2を１．０ｍｏｌ添加し、ＭｇＯを０．５ｍｏｌ添加し、誘電体磁器組成物を得た。Ｂａ／Ｔｉ元素比率は、０．９６２とした。焼成温度を１２５０℃とした。アニール時間を０時間とした。すなわち、アニール処理を実施しなかった。その他の条件は、実施例１と同じとした。

[0116] 実施例１～１３および比較例１～５の条件を表１に示す。

[表1]

	添加量(mol)					Ba/Ti	焼成温度(℃)	アニール時間(Hr)
	Gd_2O_3	TiO_2	$MnCO_3$	SiO_2	MgO			
実施例1	0.75	2.0	1.5	1.0	0.5	0.980	1300	1
実施例2	0.75	4.0	1.5	1.0	0.5	0.962	1250	1
実施例3	0.75	4.0	1.5	1.0	0.5	0.962	1250	0.5
実施例4	0.75	4.0	1.5	1.0	0.5	0.962	1250	2
実施例5	0.75	6.0	1.5	1.0	0.5	0.943	1200	1
実施例6	0.75	4.0	1.5	1.0	0.2	0.962	1280	1
実施例7	0.75	4.0	1.5	1.0	1.0	0.962	1250	1
実施例8	0.75	4.0	1.5	1.0	2.0	0.962	1250	1
実施例9	0.75	4.0	1.5	0.2	0.5	0.962	1300	1
実施例10	0.75	4.0	1.5	0.5	0.5	0.962	1300	1
実施例11	0.75	4.0	1.5	2.0	0.5	0.962	1200	1
実施例12	0.75	4.0	5.0	0.5	0.5	0.962	1300	0.5
実施例13	0.75	4.0	0.2	0.5	0.5	0.962	1300	2
比較例1	0.75	1.0	1.5	1.0	0.5	0.990	1320	1
比較例2	0.75	8.0	1.5	1.0	0.5	0.926	1160	1
比較例3	0.75	4.0	1.5	1.0	0.05	0.962	1300	1
比較例4	0.75	4.0	1.5	1.0	5.0	0.962	1200	1
比較例5	0.75	4.0	1.5	1.0	0.5	0.962	1250	0

[0117] 実施例１～１３および比較例１～５のそれぞれの積層セラミックコンデンサについて、絶縁抵抗計による６０Ｖを３０秒印加時における１５０℃での直流電流Ｉの測定を行い、抵抗率ρを算出した。また、誘電体層に、５．００≦Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａ≦７．００であり、０．５０≦Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂ≦１．５０を満たす第１結晶粒子の有無を確認した。また、第１結晶粒子におけるＴｉ／Ｂａ元素比率ａ、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂ、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｇ、およびＮｉ／Ｂａ元素比率ｈを測定した。さらに、周囲に存在するチタン酸バリウムからなる主相結晶粒子と比較して、バリウムに対してチタン、マグネシウム、マンガン、およびニッケルの元素比率が大きくかつ、第１結晶粒子と比較して、バリウムに対してチタン、マグネシウム、マンガン

、およびニッケルの元素比率が小さい第２結晶粒子の有無を確認した。また、第２結晶粒子におけるＴｉ／Ｂａ元素比率ｃ、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄ、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅ、およびＮｉ／Ｂａ元素比率ｆを測定した。結果を表２に示す。

[0118] 実施例１では、第１結晶粒子が確認された。第１結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａは、５．３２であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂは１．００であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｇは２．２８であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｈは１．７６であった。また、第２結晶粒子が確認された。第２結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃは１．６２であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄは０．１４であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅは０．１４であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆは０．１８であった。抵抗率ρは２．９×１０^{11}Ω・ｃｍであった。

[0119] 実施例２では、第１結晶粒子が確認された。第１結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａは、５．６０であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂは１．１１であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｇは２．８５であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｈは２．０２であった。また、第２結晶粒子が確認された。第２結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃは２．１６であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄは０．１３であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅは０．１２であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆは０．２０であった。抵抗率ρは９．５×１０^{11}Ω・ｃｍであった。

[0120] 実施例３では、第１結晶粒子が確認された。第１結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａは、５．６６であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂは１．１４であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｇは３．４２であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｈは１．０１であった。また、第２結晶粒子が確認された。第２結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃは２．３１であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄは０．１２であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅは０．０３であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆは０．３７であった。抵抗率ρは２．１×１０^{11}Ω・ｃｍであった。

[0121] 実施例４では、第１結晶粒子が確認された。第１結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａは、５．７１であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂは１．１０であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｇは１．７１であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｈは３

．０３であった。また、第２結晶粒子は確認されなかった。抵抗率ρは４．１×１０^{10}Ω・ｃｍであった。

[0122] 実施例５では、第１結晶粒子が確認された。第１結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａは、６．８５であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂは１．０８であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｇは０．１５であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｈは２．１０であった。また、第２結晶粒子が確認された。第２結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃは３．２３であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄは０．１１であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅは０．１２であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆは０．１９であった。抵抗率ρは１．５×１０^{11}Ω・ｃｍであった。

[0123] 実施例６では、第１結晶粒子が確認された。第１結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａは、５．８２であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂは０．５４であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｇは２．７４であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｈは２．０４であった。また、第２結晶粒子が確認された。第２結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃは２．２０であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄは０．０３であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅは０．１２であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆは０．１６であった。抵抗率ρは２．０×１０^{11}Ω・ｃｍであった。

[0124] 実施例７では、第１結晶粒子が確認された。第１結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａは、５．７１であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂは１．２１であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｇは２．７２であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｈは２．０２であった。また、第２結晶粒子が確認された。第２結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃは２．０９であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄは０．１６であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅは０．１１であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆは０．２４であった。抵抗率ρは６．６×１０^{11}Ω・ｃｍであった。

[0125] 実施例８では、第１結晶粒子が確認された。第１結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａは、５．６０であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂは１．４４であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｇは２．９１であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｈは１．９４であった。また、第２結晶粒子が確認された。第２結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃは２．０３であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄは０．２

９であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅは０．１１であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆは０．２４であった。抵抗率ρは２．９×１０^{11}Ω・ｃｍであった。

[0126] 実施例９では、第１結晶粒子が確認された。第１結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａは、５．１５であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂは０．７８であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｇは２．８８であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｈは１．９６であった。また、第２結晶粒子が確認された。第２結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃは２．１８であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄは０．１２であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅは０．１２であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆは０．２２であった。抵抗率ρは５．１×１０^{11}Ω・ｃｍであった。

[0127] 実施例１０では、第１結晶粒子が確認された。第１結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａは、５．２６であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂは０．９２であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｇは２．８９であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｈは２．００であった。また、第２結晶粒子が確認された。第２結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃは２．２４であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄは０．１２であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅは０．１２であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆは０．２２であった。抵抗率ρは４．９×１０^{11}Ω・ｃｍであった。

[0128] 実施例１１では、第１結晶粒子が確認された。第１結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａは、６．７２であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂは１．３３であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｇは１．９１であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｈは１．９８であった。また、第２結晶粒子が確認された。第２結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃは２．２２であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄは０．１２であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅは０．１２であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆは０．２２であった。抵抗率ρは３．９×１０^{11}Ω・ｃｍであった。

[0129] 実施例１２では、第１結晶粒子が確認された。第１結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａは、５．３８であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂは０．９２であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｇは４．１３であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｈは０．０７であった。また、第２結晶粒子が確認された。第２結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃは２．７６であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄは０．

１２であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅは０．０２であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆは０．３２であった。抵抗率ρは２．３×１０^{10}Ω・ｃｍであった。

[0130] 実施例１３では、第１結晶粒子が確認された。第１結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ａは、５．４３であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｂは０．９７であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｇは０．０５であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｈは４．１２であった。また、第２結晶粒子が確認された。第２結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃは１．８３であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄは０．１３であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅは０．３２であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆは０．０５であった。抵抗率ρは２．４×１０^{10}Ω・ｃｍであった。

[0131] 比較例１では、第１結晶粒子も第２結晶粒子も確認されなかった。抵抗率ρは４．４×１０^{9}Ω・ｃｍであった。

[0132] 比較例２では、第１結晶粒子が確認されず、第２結晶粒子が確認された。第２結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃは３．０５であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄは０．１１であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅは０．１１であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆは０．１８であった。抵抗率ρは１．３×１０^{9}Ω・ｃｍであった。

[0133] 比較例３では、第１結晶粒子が確認されず、第２結晶粒子が確認された。第２結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃは２．３７であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄは０．００であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅは０．３５であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆは０．３８であった。抵抗率ρは５．８×１０^{9}Ω・ｃｍであった。

[0134] 比較例４では、第１結晶粒子が確認されず、第２結晶粒子が確認された。第２結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃは２．０９であり、Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄは０．３１であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅは０．１１であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆは０．２２であった。抵抗率ρは１．８×１０^{9}Ω・ｃｍであった。

[0135] 比較例５では、第１結晶粒子が確認されず、第２結晶粒子が確認された。第２結晶粒子において、Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃは２．１６であり、Ｍｇ／Ｂ

ａ元素比率ｄは０．１３であり、Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅは０．１２であり、Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆは０．２０であった。抵抗率ρは８．０×１０^{9}Ω・ｃｍであった。

[0136] 実施例１～１３および比較例１～５の結果について表２に示す。

[表2]

	第1結晶粒子					第2結晶粒子					抵抗率 (Ω·cm)
	有無	a Ti/Ba	b Mg/Ba	g Mn/Ba	h Ni/Ba	有無	c Ti/Ba	d Mg/Ba	e Mn/Ba	f Ni/Ba	
実施例1	有	5.32	1.00	2.28	1.76	有	1.62	0.14	0.14	0.18	2.9×10^{11}
実施例2	有	5.60	1.11	2.85	2.02	有	2.16	0.13	0.12	0.20	9.5×10^{11}
実施例3	有	5.66	1.14	3.42	1.01	有	2.31	0.12	0.03	0.37	2.1×10^{11}
実施例4	有	5.71	1.10	1.71	3.03	無	－	－	－	－	4.1×10^{10}
実施例5	有	6.85	1.08	0.15	2.10	有	3.23	0.11	0.12	0.19	1.5×10^{11}
実施例6	有	5.82	0.54	2.74	2.04	有	2.20	0.03	0.12	0.16	2.0×10^{11}
実施例7	有	5.71	1.21	2.72	2.02	有	2.09	0.16	0.11	0.24	6.6×10^{11}
実施例8	有	5.60	1.44	2.91	1.94	有	2.03	0.29	0.11	0.24	2.9×10^{11}
実施例9	有	5.15	0.78	2.88	1.96	有	2.18	0.12	0.12	0.22	5.1×10^{11}
実施例10	有	5.26	0.92	2.89	2.00	有	2.24	0.12	0.12	0.22	4.9×10^{11}
実施例11	有	6.72	1.33	1.91	1.98	有	2.22	0.12	0.12	0.22	3.9×10^{11}
実施例12	有	5.38	0.92	4.13	0.07	有	2.76	0.12	0.02	0.32	2.3×10^{10}
実施例13	有	5.43	0.97	0.05	4.12	有	1.83	0.13	0.32	0.05	2.4×10^{10}
比較例1	無	－	－	－	－	無	－	－	－	－	4.4×10^{9}
比較例2	無	－	－	－	－	有	3.05	0.11	0.11	0.18	1.3×10^{9}
比較例3	無	－	－	－	－	有	2.37	0.00	0.35	0.38	5.8×10^{9}
比較例4	無	－	－	－	－	有	2.09	0.31	0.11	0.22	1.8×10^{9}
比較例5	無	－	－	－	－	有	2.16	0.13	0.12	0.20	8.0×10^{8}

[0137] 表２に示すように、実施例１～１３では、抵抗率ρ（Ω・ｃｍ）が１０^{10}オーダー以上となり、高い絶縁抵抗が実現されたことが確認された。これは、主相結晶粒子に加えて、第１結晶粒子が生成されたからであると考えられる。

[0138] 実施例４，１２，１３よりも実施例１～３，５～１１の抵抗率が高くなった。これは、実施例１～３，５～１１では、第１結晶粒子に加えて第２結晶粒子が確認され、第２結晶粒子において、１．５０≦Ｔｉ／Ｂａ元素比率ｃ≦３．５０であり、０．０３≦Ｍｇ／Ｂａ元素比率ｄ≦０．３０であり、０

．０３≦Ｍｎ／Ｂａ元素比率ｅ≦０．３０であり、０．０３≦Ｎｉ／Ｂａ元素比率ｆ≦０．４０を満たしたからであると考えられる。

[0139] なお、実施例１～１３について、誘電体層に含まれる主相結晶粒子に対してＥＤＳによる組成評価を行うことにより、主相結晶粒子がコアーシェル構造を持っていることを確認した。

[0140] 以上、本発明の実施例について詳述したが、本発明は係る特定の実施例に限定されるものではなく、特許請求の範囲に記載された本発明の要旨の範囲内において、種々の変形・変更が可能である。

符号の説明

[0141] １０　積層チップ

１１　誘電体層

１２　内部電極層

１３　カバー層

１４　容量領域

１５　エンドマージン

１６　サイドマージン

２０ａ，２０ｂ　外部電極

４０　主相結晶粒子

４１　第１結晶粒子

４２　第２結晶粒子

４３　第３結晶粒子

４４　空隙

５１　セラミックグリーンシート

５２　内部電極パターン

５３　誘電体パターン

５４　カバーシート

５５　サイドマージン部

１００　積層セラミックコンデンサ

請求の範囲

[請求項1] ペロブスカイト型構造を有するチタン酸バリウムを含む主相と、

バリウム、チタン、およびマグネシウムを含み、バリウムの含有量に対するチタンの元素比率をａ、バリウムの含有量に対するマグネシウムの元素比率をｂとしたとき、５．００≦ａ≦７．００であり、０．５０≦ｂ≦１．５０を満たす第１結晶粒子と、

バリウム、チタン、マグネシウム、マンガン、およびニッケルを含み、バリウムの含有量に対するチタンの元素比率をｃ、バリウムの含有量に対するマグネシウムの元素比率をｄ、バリウムの含有量に対するマンガンの元素比率をｅ、バリウムの含有量に対するニッケルの元素比率をｆとしたとき、１．５０≦ｃ≦３．５０であり、０．０３≦ｄ≦０．３０であり、０．０３≦ｅ≦０．３０であり、０．０３≦ｆ≦０．４０を満たす第２結晶粒子と、を有する、誘電体磁器組成物。

[請求項2] 前記第１結晶粒子は、さらにマンガンおよびニッケルを含み、

前記第１結晶粒子において、バリウムの含有量に対するマンガンの元素比率をｇ、バリウムの含有量に対するニッケルの元素比率をｈとしたとき、０．１０≦ｇ≦４．００であり、０．１０≦ｈ≦４．００を満たす、請求項１に記載の誘電体磁器組成物。

[請求項3] シリケート、エンスタテイト、バリウムマグネシウムシリケート、またはフレスノイトの少なくとも１つを含む第３結晶粒子をさらに含む、請求項１に記載の誘電体磁器組成物。

[請求項4] 前記第１結晶粒子および前記第２結晶粒子は、前記主相の粒界に位置する、請求項１に記載の誘電体磁器組成物。

[請求項5] 前記第１結晶粒子および前記第２結晶粒子は、前記主相の粒界三重点に位置する、請求項１に記載の誘電体磁器組成物。

[請求項6] 前記第３結晶粒子は、前記主相の粒界に位置する、請求項３に記載の誘電体磁器組成物。

[請求項7] 前記第３結晶粒子は、前記主相の粒界三重点に位置する、請求項３

に記載の誘電体磁器組成物。

[請求項8] 前記主相は、コア部と、前記コア部を覆うシェル部と、を有する、請求項１に記載の誘電体磁器組成物。

[請求項9] 前記シェル部に希土類元素を含む、請求項８に記載の誘電体磁器組成物。

[請求項10] チタンに対するバリウムの元素比率が０．９４０以上０．９８０以下であり、チタンに対するガドリニウムの元素比率が０．００５以上０．０５以下であり、チタンに対するマグネシウムの元素比率が０．００２以上０．０２以下である、請求項１に記載の誘電体磁器組成物。

[請求項11] ペロブスカイト型構造を有し、チタン酸バリウムを含み、コア部および前記コア部を覆うシェル部を有する主相と、

バリウム、チタン、およびマグネシウムを含み、バリウムの含有量に対するチタンの元素比率をａ、バリウムの含有量に対するマグネシウムの元素比率をｂとしたとき、５．００≦ａ≦７．００であり、０．５０≦ｂ≦１．５０を満たす第１結晶粒子と、を有する、誘電体磁器組成物。

[請求項12] 前記第１結晶粒子は、さらにマンガンおよびニッケルを含み、

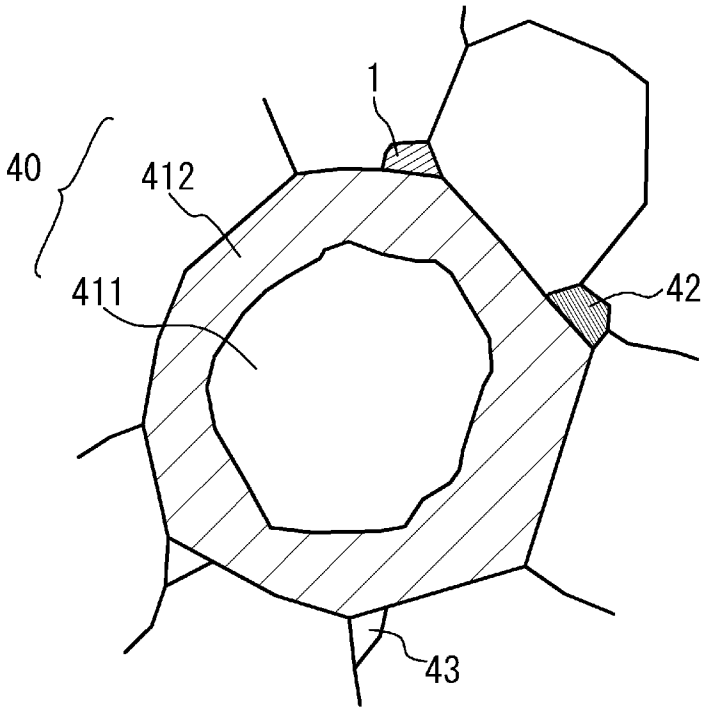
前記第１結晶粒子において、バリウムの含有量に対するマンガンの元素比率をｇ、バリウムの含有量に対するニッケルの元素比率をｈとしたとき、０．１０≦ｇ≦４．００であり、０．１０≦ｈ≦４．００を満たす、請求項１１に記載の誘電体磁器組成物。

[請求項13] 請求項１に記載の誘電体磁器組成物を含む複数の誘電体層と、

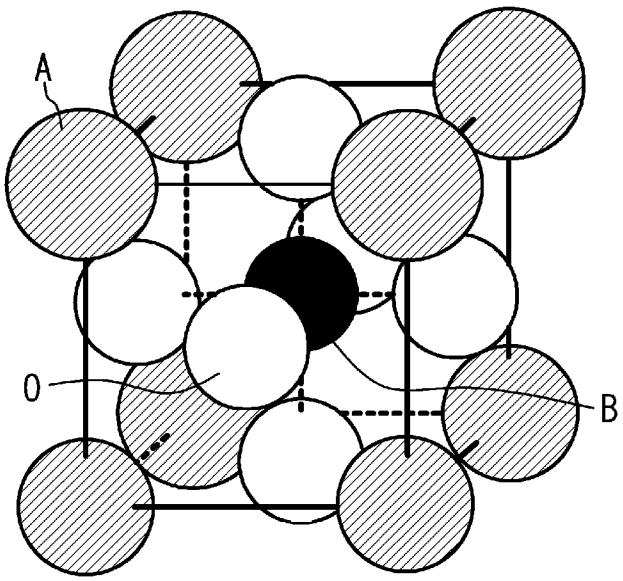
前記複数の誘電体層を挟んで互いに対向する複数の内部電極と、

前記複数の内部電極に電気的に接続される外部電極と、を有する、積層セラミック電子部品。

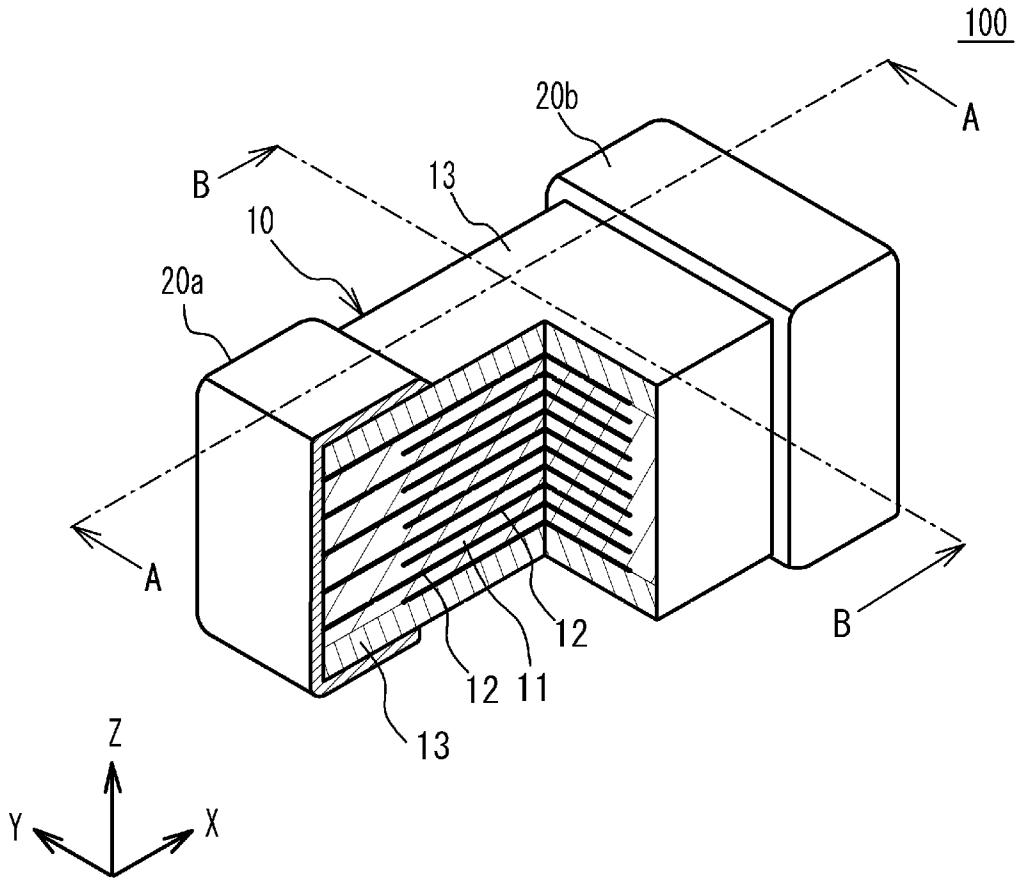
[図1]



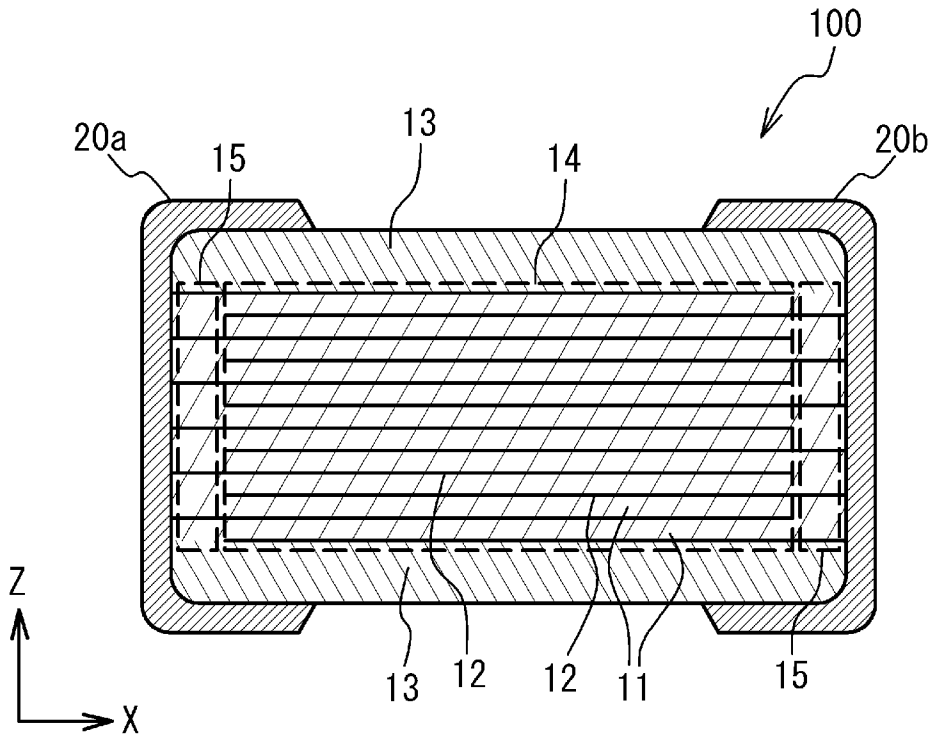
[図2]



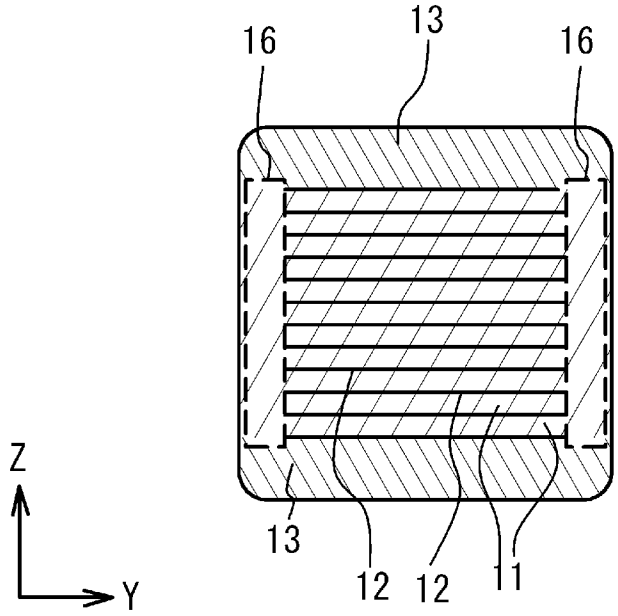
[図3]


100
20b
A
B
13
10
20a
A
B
12
12
11
13
Z
Y
X

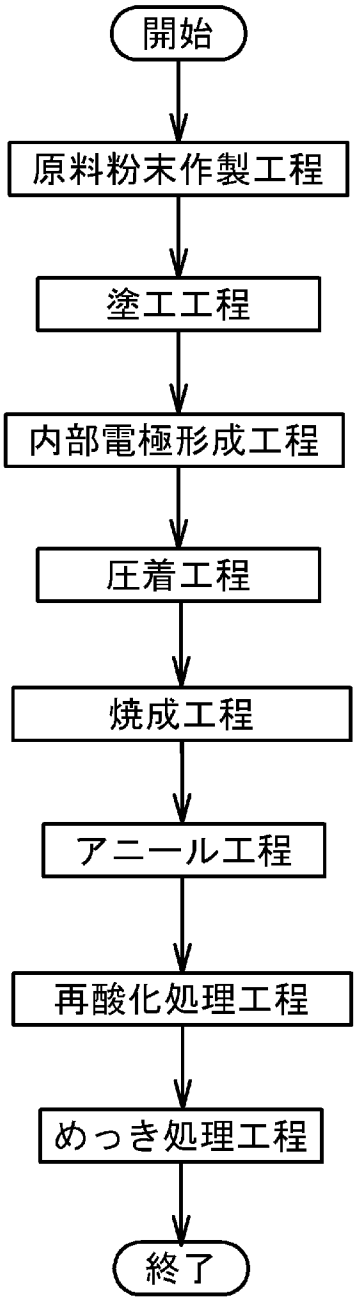
[図4]


100
20a
15
13
14
20b
Z
X
13
12
12
11
15

[図5]

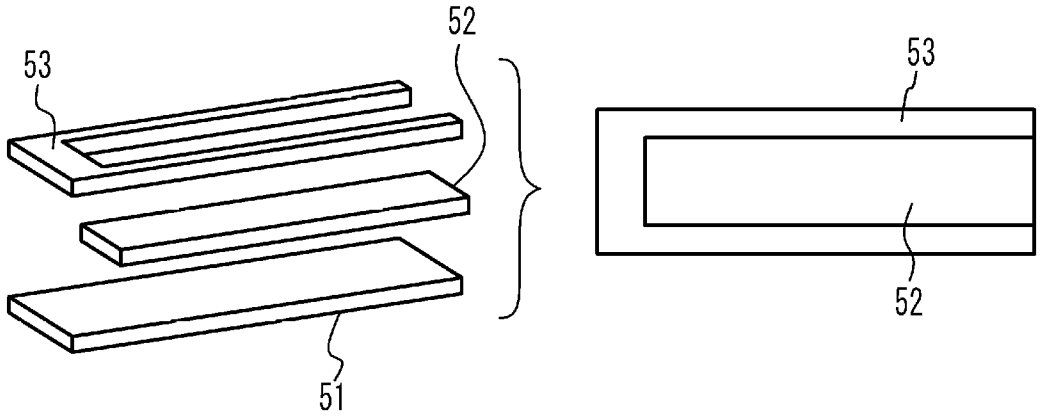


[図6]

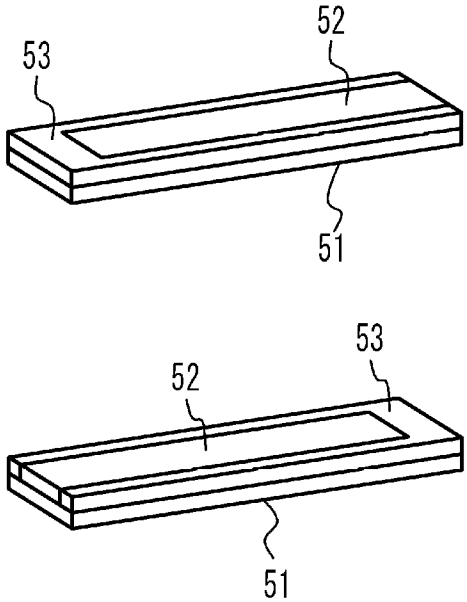

開始
原料粉末作製工程
塗工工程
内部電極形成工程
圧着工程
焼成工程
アニール工程
再酸化処理工程
めっき処理工程
終了

[図7]

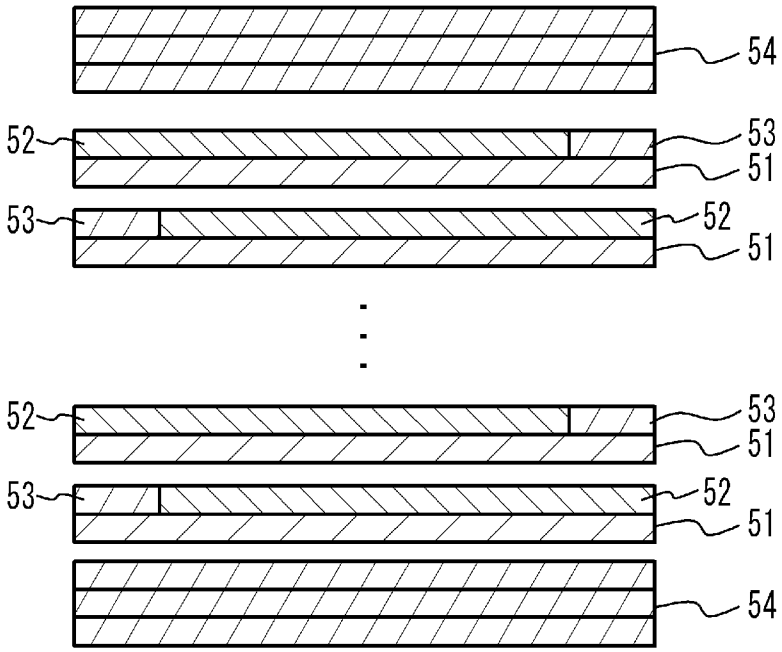
(a)



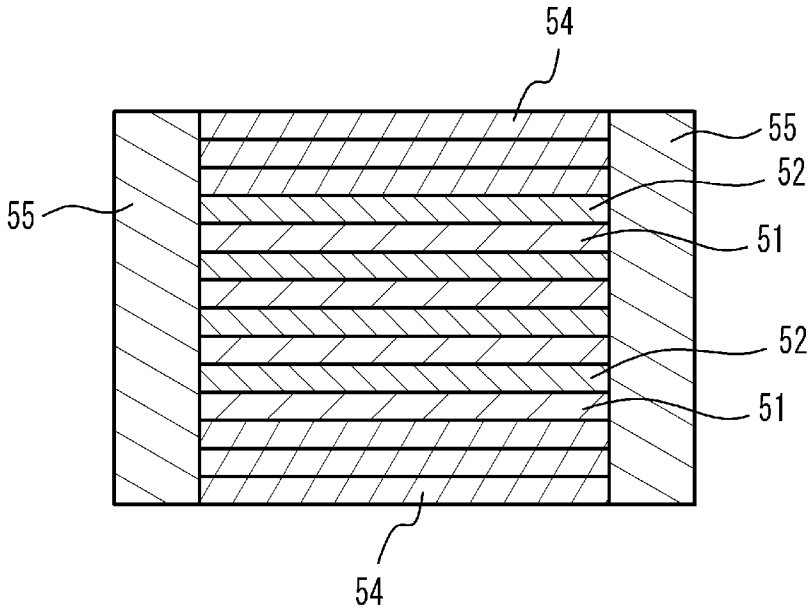
(b)



[図8]



[図9]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2024/009537

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C04B 35/468(2006.01)i; ***H01B 3/12***(2006.01)i; ***H01G 4/30***(2006.01)i
FI: C04B35/468 200; H01B3/12 303; H01G4/30 515; H01G4/30 201L

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)

C04B35/468; H01B3/12; H01G4/30

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 1971-2024
Registered utility model specifications of Japan 1996-2024
Published registered utility model applications of Japan 1994-2024

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 2022-181544 A (TDK CORPORATION) 08 December 2022 (2022-12-08) entire text	1-13
A	JP 2001-230149 A (TAIYO YUDEN CO., LTD.) 24 August 2001 (2001-08-24) entire text	1-13
A	WO 2014/002302 A1 (TAIYO YUDEN CO., LTD.) 03 January 2014 (2014-01-03) entire text	1-13
A	WO 2008/038722 A1 (KYOCERA CORPORATION) 03 April 2008 (2008-04-03) entire text	1-13

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

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
20 May 2024	**28 May 2024**

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

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/009537

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2022-181544 A	08 December 2022	US 2022/0392704 A1 entire text CN 115403368 A	
JP 2001-230149 A	24 August 2001	US 2001/0055193 A1 entire text TW 529047 B KR 10-2001-0082166 A CN 1309400 A	
WO 2014/002302 A1	03 January 2014	US 2015/0279565 A1 entire text KR 10-2014-0126733 A CN 104246929 A TW 201401312 A	
WO 2008/038722 A1	03 April 2008	US 2009/0225494 A1 entire text CN 101517672 A KR 10-2009-0011028 A TW 200834619 A	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2024/009537

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C04B 35/468(2006.01)i; H01B 3/12(2006.01)i; H01G 4/30(2006.01)i
FI: C04B35/468 200; H01B3/12 303; H01G4/30 515; H01G4/30 201L

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））

C04B35/468; H01B3/12; H01G4/30

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	１９７１－２０２４年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２４年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２４年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	JP 2022-181544 A (ＴＤＫ株式会社) 08.12.2022 (2022-12-08) 全文	1-13
A	JP 2001-230149 A (太陽誘電株式会社) 24.08.2001 (2001-08-24) 全文	1-13
A	WO 2014/002302 A1 (太陽誘電株式会社) 03.01.2014 (2014-01-03) 全文	1-13
A	WO 2008/038722 A1 (京セラ株式会社) 03.04.2008 (2008-04-03) 全文	1-13

☐ 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
“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献
“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	国際調査報告の発送日
20.05.2024	28.05.2024

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）
浅野　昭 4T 5794

電話番号 03-3581-1101 内線 3465

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/JP2024/009537

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2022-181544 A	08.12.2022	US 2022/0392704 A1 全文 CN 115403368 A	
JP 2001-230149 A	24.08.2001	US 2001/0055193 A1 全文 TW 529047 B KR 10-2001-0082166 A CN 1309400 A	
WO 2014/002302 A1	03.01.2014	US 2015/0279565 A1 全文 KR 10-2014-0126733 A CN 104246929 A TW 201401312 A	
WO 2008/038722 A1	03.04.2008	US 2009/0225494 A1 全文 CN 101517672 A KR 10-2009-0011028 A TW 200834619 A	