

平成25年7月17日判決言渡

平成24年（行ケ）第10180号 審決取消請求事件

口頭弁論終結日 平成25年5月27日

判 決

原 告	株 式 会 社 M A R U W A
訴訟代理人弁理士	松 原 等
同	岡 本 雄 二
訴訟代理人弁護士	後 藤 昌 弘
同	鈴 木 智 子
同	古 谷 涉
被 告	京 セ ラ 株 式 会 社
訴訟代理人弁護士	松 本 司
同	井 上 裕 史
同	田 上 洋 平

主 文

- 1 特許庁が無効2010-800137号事件について平成24年4月18日にした審決を取り消す。
- 2 訴訟費用は被告の負担とする。

事 実 及 び 理 由

第1 請求

主文同旨

第2 前提となる事実

1 特許庁における手続の経緯等

被告は、発明の名称を「誘電体磁器及びこれを用いた誘電体共振器」とする特許第3830342号（平成12年6月26日、優先権主張基礎出願。同年9月18日特許出願，平成18年7月21日設定登録。以下「本件特許」という。）の特許権

者である。原告は、平成22年8月4日、本件特許について無効審判請求（無効2010－800137号事件）をし、特許庁は、平成23年5月27日、本件特許を無効にする旨の審決をした。

これに対して、被告は、同年7月5日、審決取消訴訟（知的財産高等裁判所平成23年（行ケ）10210号）を提起した。被告は、同月30日、訂正審判請求（訂正2011－390113号。後に、訂正請求とみなされた。以下「本件訂正」という。）をしたため、知的財産高等裁判所は、同年11月11日、平成23年法律第63号による改正前の特許法181条2項の規定により、同審決を取り消す旨の決定をした。

特許庁は、これを受けて無効2010－800137号事件の審理を再開し、平成24年4月18日、本件訂正を認める、審判の請求は成り立たない旨の審決（以下「審決」という。）をし、その謄本は、同月26日、原告に送達された。

2 特許請求の範囲

本件訂正後の本件特許の特許請求の範囲は、次のとおりである（以下、それぞれの請求項に記載の発明を、請求項の番号を付して「本件発明1」等という。また、本件発明1ないし5を、併せて、「本件発明」ということがある。）。

【請求項1】

金属元素として少なくとも稀土類元素（ L_n ：但し、 L_a を稀土類元素のうちモル比で90%以上含有するもの）、 Al 、 M （ M は Ca および／または Sr ）、及び Ti を含有し、

組成式を $aL_nO_x \cdot bAl_2O_3 \cdot cMO \cdot dTiO_2$ （但し、 $3 \leq x \leq 4$ ）と表したとき a 、 b 、 c 、 d が、

$$0.056 \leq a \leq 0.214$$

$$0.056 \leq b \leq 0.214$$

$$0.286 \leq c \leq 0.500$$

$$0.230 < d < 0.470$$

$$a + b + c + d = 1$$

を満足し、結晶系が六方晶および／または斜方晶の結晶を80体積%以上有する酸化物からなり、前記A1の酸化物の少なくとも一部が β - Al_2O_3 および／または θ - Al_2O_3 の結晶相として存在するとともに、前記 β - Al_2O_3 および／または θ - Al_2O_3 の結晶相を1/100000～3体積%含有し、1GHzでのQ値に換算した時のQ値が40000以上であることを特徴とする誘電体磁器。

【請求項2】

金属元素としてMn、WおよびTaのうち少なくとも1種を合計で MnO_2 、 WO_3 および Ta_2O_5 換算で合計0.01～3重量%含有することを特徴とする請求項1に記載の誘電体磁器。

【請求項3】

前記 β - Al_2O_3 および／または θ - Al_2O_3 の結晶相を1/5000～0.5体積%含有することを特徴とする請求項1または2に記載の誘電体磁器。

【請求項4】

前記 β - Al_2O_3 および θ - Al_2O_3 の平均結晶粒径は、0.1～40 μm であることを特徴とする請求項1乃至3のいずれかに記載の誘電体磁器。

【請求項5】

一対の入出力端子間に請求項1乃至4のいずれかに記載の誘電体磁器を配置してなり、電磁界結合により作動するようにしたことを特徴とする誘電体共振器。

3 審決の理由の概要

(1) 審決の理由は、別紙審決書写に記載のとおりである。審決は、要するに、本件発明1は、甲1（特開平6-76633号公報）に記載の発明（以下「甲1発明」という。）に対して、甲1に具体的に開示されていない特定事項を付加した下位概念の発明に相当するものではあるが、甲1発明と比較して特段の効果を有するから選択発明として新規性が認められるべきであるし、また、本件発明1で付加された特定事項は、甲1には記載も示唆もされておらず、当該特定事項で特定することによ

り、特段の効果を奏するのであるから、本件発明 1 は甲 1 に基づいて当業者が容易に発明することができたとはいえない、本件発明 2 ないし 5 についても同様である等として、請求人（原告）の無効審判請求を不成立とするものである。

(2) 審決が認定した甲 1 発明の内容、甲 1 発明と本件発明 1 との一致点及び相違点は、次のとおりである。

ア 甲 1 発明の内容

金属元素として希土類元素 (L n)、A l、C a および T i を含み、これらの成分をモル比で $a \text{ L n}_2\text{O}_x \cdot b \text{ A l}_2\text{O}_3 \cdot c \text{ C a O} \cdot d \text{ T i O}_2$ と表した時、a、b、c、d および x の値が

$$a + b + c + d = 1$$

$$0.056 \leq a \leq 0.214$$

$$0.056 \leq b \leq 0.214$$

$$0.286 \leq c \leq 0.500$$

$$0.230 < d < 0.470$$

$$3 \leq x \leq 4$$

を満足することからなり、次の結晶系からなるものを包含する誘電体磁器組成物。

(A) 結晶系が六方晶および／または斜方晶の結晶を 80 体積%以上有する酸化物からなり、

(B) A l の酸化物の少なくとも一部が $\beta\text{-A l}_2\text{O}_3$ の結晶相として存在するとともに、前記 $\beta\text{-A l}_2\text{O}_3$ の結晶相を 1/100000～3 体積%含有すること。

イ 一致点

金属元素として少なくとも希土類元素 (L n)、A l、M (MはC a および／またはS r)、及びT i を含有し、

組成式を $a \text{ L n}_2\text{O}_x \cdot b \text{ A l}_2\text{O}_3 \cdot c \text{ M O} \cdot d \text{ T i O}_2$ (但し、 $3 \leq x \leq 4$) と表したとき a、b、c、d が、

$$0.056 \leq a \leq 0.214$$

$$0.056 \leq b \leq 0.214$$

$$0.286 \leq c \leq 0.500$$

$$0.230 < d < 0.470$$

$$a + b + c + d = 1$$

を満足し、

(A) 結晶系が六方晶および／または斜方晶の結晶を80体積%以上有する酸化物からなり、

(B) 前記A1の酸化物の少なくとも一部が β -Al₂O₃および／または θ -Al₂O₃、の結晶相として存在するとともに、前記 β -Al₂O₃および／または θ -Al₂O₃の結晶相を1／100000～3体積%含有する誘電体磁器。

ウ 相違点

本件発明1では、「希土類」として「Ln：但し、Laを希土類元素のうちモル比で90%以上含有するもの」を使用し、且つ、1GHzでのQ値に換算した時のQ値が40000以上であるのに対し、甲1発明では、そのような特定がなされていない点

第3 取消事由に関する当事者の主張

1 原告の主張

(1) 本件発明1と甲1発明との相違点認定の誤り（取消事由1）

審決は、本件発明1と甲1発明との相違点を、「Ln：但し、Laを希土類元素のうちモル比で90%以上含有するものを使用し、且つ、1GHzでのQ値に換算した時のQ値が40000以上であること」と認定した。しかし、「La90%以上を使用すること」及び「Q値（以下、『Q値』は、『1GHzで換算した時のQ値』を指すこととする。）40000以上である」との両者を充足する事項を相違点とした点で誤りがある。

本件発明1において、Laを使用したことと、Q値40000以上との関係は、安価なLaを使用しながらもQ値40000以上が得られたという経済的関係にす

ぎず、 $L a$ を使用したから Q 値40000以上が得られたという一体不可分の関係が存在するわけではない。本件明細書（本件訂正後の、本件特許に係る明細書及び図面をいう。以下同じ。）では、 Q 値を向上させる要因について、 $\beta - Al_2O_3$ 等の含有、結晶系、製造方法（焼結過程と降温過程）等々、多数の要因を挙げている。したがって、「 Q 値40000以上」は「 $L a$ を使用した」ことのみによるものでないと解されるべきであるから、審決が「 $L a$ を使用したこと」と「 Q 値40000以上」との両者を充足する事項を相違点と認定したことは、誤りである。なお、甲1でも Q 値40000以上は Nd 、 Dy 、 Pr 、 Sm 等を使用した実施例でも得られている。

また、審決が、 $L a$ 90%以上を使用することを相違点とした点には誤りがある。 $L a$ 90%以上を使用することは、甲1に実施例として具体的に開示されている（【表2】の試料No.35）。

（2）容易想到性判断の誤り－臨界的意義（取消事由2）

審決は、本件発明1は、甲1発明を相違点に係る構成に限定した点で新規性を有し、相違点に係る構成は、甲1に記載又は示唆がされておらず、効果の顕著性があるとして、進歩性を肯定した。

しかし、審決の判断は、以下のとおり誤りである。

相違点のうち、「希土類として $L a$ 90%以上含有するものを使用すること」は、甲1に実施例として具体的に開示されている（【表2】の試料No.35）。また、相違点のうち Q 値が40000以上であることは、数値を限定したものにすぎず、臨界的な意義が認められないから、容易想到性の根拠とはならない。

本件発明1の Q 値40000以上の下限値である40000と、甲1発明の試料No.35が示す Q 値39000とは、2.5%の差であり、甲36に記載された測定誤差 $\pm 5 \sim 20\%$ のうち最小の $\pm 5\%$ よりも僅かな誤差であるから、本件発明と甲1発明とは、実質的に同一であり、本件発明1は新規性を有しない。

本件発明1の Q 値40000以上の下限値である40000による効果と、甲1

発明の試料No.35が示すQ値39000による効果との差異は、誘電損失の微差であり、仮にそれが有意差であるとしても誘電損失の徐変差にすぎないから、Q値40000以上の数値限定に臨界的意義はなく、本件発明1は容易想到というべきである。

(3) 容易想到性判断の誤り－効果の顕著性（取消事由3）

ア 効果の認定の誤り

審決は、本件発明1の効果として、「試料No.1, 22, 27, 29～48は、 ϵ_r が31.0～45.9であってQ値が40000以上であることが示されている。」としているが、そのみではなく、実質的には「A/B比の広い範囲にわたって40000以上のQ値を与えている」ことと、「測定精度や標準偏差を考慮しても40000未満を含まないという意味で、かつ、40000未満の実施例はあり得ないという意味で、Q値が必ず40000以上となる」ことを認定する。

しかし、本件明細書の【表3】の試料No.1, 22, 27, 29～48のうち、試料No.1, 22, 27, 30～41, 43～47は、本件発明2の実施例であり、本件発明1の効果を認定するための基礎にすることはできない。同様に、これらの試料も含むグラフに基づき、「同グラフによれば、本件発明1では・・・A/B比の広い範囲に亘って40000以上のQ値を与えていることは明らか」と認定したことも誤りである。

本件発明1は「高いQ値を得ることができる」(【0083】)ものであるが、さらに本件発明2はMn, W, Taの付加により「著しくQ値が向上する」(【0027】)もので、試料No.1, 22, 27, 30～41, 43～47のQ値は、本件発明2により初めて得られた値である。本件発明1による「高いQ値」と本件発明2による「著しくQ値が向上」の寄与率は、本件明細書に記載されておらず、不明である。よって、試料No.1, 22, 27, 30～41, 43～47を本件発明1の効果の認定の基礎資料にすることはできない。

本件明細書には、本件発明1によりQ値が必ず40000以上となることは記載

されていない。本件明細書の【表 3】の試料No.42, 48のQ値40000は, 甲36に記載された測定誤差 $\pm 5 \sim 20\%$ のうち最小 $\pm 5\%$ を考慮すると, $42105 \geq Q \geq 38095$ の範囲を含むものであるし, 試料No.29のQ値45000は, 同様にして $51000 \geq Q \geq 39000$ の範囲を含むものである。試料No.42, 48のQ値が, 本件発明1の広大な範囲内で偶然に最小値を示した実施例であるとは考えられないし, 本件発明2を実施した試料No.1, 22, 27, 30~41, 43~47では, 仮にMn, W, Taを付加しなかったならば, 「著しくQ値が向上」しなくなるから, Q値が40000未満になる可能性がある。したがって, 「測定精度を考慮しても40000未満を含まないと言う意味で, Q値が必ず40000以上となる」ものでないことは明らかである。

再現実験の結果(甲58)によっても, 本件発明1の効果は, 「Q値が必ず40000以上となる」ものではないことが確認された。

イ 効果の顕著性の判断の誤り

審決は, 希土類元素をLaへ特定しかつQ値を40000以上とする相違点に係る構成を有する本件発明1により達成されるQ値は, 甲1に開示された希土類としてLaを用いる誘電体磁器のQ値と比較して顕著に高いとする。

しかし, 上記判断は, 誤った効果の認定を前提とするものであるから, 誤りである。

本件発明1の効果は, 「A/B比が0.912~1.132という狭い範囲において40000~45000のQ値を与える例がある」ということにとどまり, 本件発明1の効果は, 「測定精度を考慮しても40000未満を含まないと言う意味で, Q値が必ず40000以上となる」というものではない。このような狭く高さもないQ値の分布が, A/B比が1において39000のQ値を与えることが確認されている甲1発明の試料No.35の効果と比べて, 予想できない顕著な効果であるとは到底いえない。

また, 甲21及び甲37の記載からすると, 本件発明の磁器組成物や甲1の磁器

組成物と同じ $a \text{Ln}_2\text{O}_x \cdot b \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot c \text{CaO} \cdot d \text{TiO}_2$ 系で、希土類として La を含めるならば 40000 以上の「高 Q 値」を示すことが認められる。

本件発明 1 の試料 No. 29, 42, 48 の比誘電率 ϵ_r は、甲 1 の実施例 35 よりも低く、本件明細書には「 τ_f が ± 30 (ppm/°C) 以内の優れた誘電特性が得られた」(【0078】) と記載されている。甲 1 の実施例 35 の τ_f も ± 30 以内であり、本件発明 1 との相違はない。本件発明 1 により得られる ϵ_r , τ_f が甲 1 発明のそれらと比較して顕著に優れているとはいえない。

本件発明 1 によって、甲 1 発明と比較して予期できなかった特段の効果が奏されているものとすることはできない。

(4) 本件発明 2 ないし 5 の新規性・進歩性判断の誤り (取消事由 4)

審決の、本件発明 1 についての新規性・進歩性判断には誤りがあるから、同様に本件発明 2 ないし 5 についての新規性・進歩性判断にも誤りがある。

2 被告の反論

(1) 本件発明 1 と甲 1 発明との相違点認定の誤り (取消事由 1) に対して

原告は、本件発明 1 と甲 1 発明の実施例である試料 No. 35 とを対比して相違点を抽出すべきであると主張する。しかし、本件発明 1 と甲 1 発明のクレームとを対比すれば、その相違点は本件審決が認定したとおりであり、誤りはない。

本件発明 1 は、希土類元素として経済的に安価な「 La を使用した場合でも Q 値 40000 以上」という優れた特性の誘電体磁器を安定して提供する発明である。甲 1 発明でも「Q 値 40000 以上」は達成されているが、それは希土類元素として高価な「 Nd 」を使用したものであるから、本件発明 1 における「Q 値 40000 以上」は「 La を使用した」ことと技術的に不可分の関係にあるといえる。

審決が本件発明 1 と甲 1 発明との相違点につき、「 La 90% 以上を使用すること」と「Q 値 40000 以上」の両者を充足する事項を相違点としたことに誤りはない。

(2) 容易想到性判断の誤り—臨界的意義 (取消事由 2) に対して

原告は本件発明 1 は「Q 値 4 0 0 0 0 以上」とする数値限定発明であるが、同数値には臨界的意義はない旨主張する。

しかし、原告の主張は、以下のとおり失当である。すなわち、数値限定発明における進歩性の有無は、数値によって限定された発明において、同発明の「効果」に臨界的意義があるか否かによって判断される。本件発明 1 の「Q 値 4 0 0 0 0 以上」は、誘電体磁器の「特性」（効果）を特定事項としたものであり、本件発明 1 に臨界的意義があることは、ア記載のとおりである。

(3) 容易想到性判断の誤りー効果の顕著性（取消事由 3）に対して

原告は、審決が認定した本件発明 1 の効果は「試料No. 1, 2 2, 2 7, 3 0～4 1, 4 3～4 7」を試料とするものであるところ、これらは本件発明 2 の効果であって、本件発明 1 の効果ではないことを前提とし、本件発明 1 は「試料No. 2 9, 4 2, 4 8」のみを試料とすべきであり、これらの試料の Q 値は測定精度を考慮すると、4 0 0 0 0 以上となるものではなく、審決の効果に係る認定は誤りである旨主張する。

しかし、原告の指摘する「試料No. 1, 2 2, 2 7, 3 0～4 1, 4 3～4 7」は、本件発明 1 の構成要件をすべて備えており、これらの試料を、本件発明 1 の実施例から除外して本件発明 1 の効果を検討すべき理由はない。

原告の主張を前提とすれば、特許発明の実施例の構成に、特許請求の範囲に記載された以外の構成があれば、当該実施例の効果は、その付加された構成によるものとなるが、そうであれば、特許発明の範囲は、実施例と全く同一のものしか許されないこととなり、合理性を欠く。

本件発明 1 が奏する効果は、従来は Q 値を低減させるものと考えられてきた「 β - Al_2O_3 」や「 θ - Al_2O_3 」（以下「 β アルミナ等」という。）をあえて第二層として析出させることにより、希土類元素として経済的に安価な La を使用した場合でも「Q 値 4 0 0 0 0 以上」という優れた特性の誘電体磁器を「安定して」供給できるという効果を有する発明であって、単に「Q 値 4 0 0 0 0 以上」を実現した

発明ではない。

したがって、審決が「希土類元素としてNdより安価なLaをモル比で90%以上用いることで、A/B比の広い範囲に亘って40000以上のQ値を与えていることは明らかであり」とした認定に誤りはない。

本件発明1の効果は、Laを使用した「Q値40000以上」という優れた特性だけでなく、このような特性を有する誘電体磁器を「安定して」製造できることでもあり、このような効果は当業者が予測できる効果ではない。したがって、上記の特段の効果が、甲1の試料No.35の記載から当業者が予測可能な効果か否かを検証しており、測定誤差や標準偏差を考慮し、あるいは、甲37の記載を参照したとしても、甲1は、 β アルミナ等を析出させることにより「Q値40000以上」という優れた特性の誘電体磁器を「安定して」製造できる技術的事項を開示、示唆したものではないとした審決の判断に、誤りはない。

(4) 本件発明2ないし5の新規性・進歩性判断の誤り（取消事由4）に対して
審決の、本件発明2ないし5についての新規性・進歩性判断には、同様に誤りがない。

第4 当裁判所の判断

1 認定事実

(1) 本件明細書の記載について

本件明細書には、次のとおりの記載がある（表は別紙のとおり。）。

「【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、マイクロ波、ミリ波等の高周波領域において、高い比誘電率 ϵ_r 、共振の先鋭度Q値を有する誘電体磁器及び誘電体共振器に関し、例えば前記高周波領域において使用される種々の共振器用材料やMIC (Monolithic IC) 用誘電体基板材料、誘電体導波路用材料や積層型セラミックコンデンサー等に使用される誘電体

磁器及びこれを用いた誘電体共振器に関する。

【0002】

【従来の技術】

誘電体磁器は、マイクロ波やミリ波等の高周波領域において、誘電体共振器、MIC用誘電体基板や導波路等に広く利用されている。その要求される特性としては、

(1) 誘電体中では伝搬する電磁波の波長が $(1/\epsilon_r)^{1/2}$ に短縮されるので、小型化の要求に対して比誘電率が大きいこと、(2) 高周波領域での誘電損失が小さいこと、すなわち高Qであること、(3) 共振周波数の温度に対する変化が小さいこと、即ち比誘電率 ϵ_r の温度依存性が小さく且つ安定であること、以上の3特性が主として挙げられる。

【0003】

この様な誘電体磁器として、例えば特開平4-118807には $\text{CaO}-\text{TiO}_2-\text{Nb}_2\text{O}_5-\text{MO}$ (MはZn, Mg, Co, Mn等)系からなる誘電体磁器が示されている。しかし、この誘電体磁器では、1GHzに換算した時のQ値が1600～25000程度と低く、共振周波数の温度係数 τ_f が215～835ppm/°C程度と大きいため、Q値を向上させ、かつ τ_f を小さくするという課題があった。

【0004】

そこで、本出願人は、LnAlCaTi系の誘電体磁器(特開平6-76633号公報参照、Lnは稀土類元素)、LnAlSrCaTi系の誘電体磁器(特開平11-278927号参照)およびLnAlCaSrBaTi系の誘電体磁器(特開平11-106255号参照)を提案した。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

しかし、LnAlCaTi系誘電体磁器(特開平6-76633号公報参照、Lnは稀土類元素)では、比誘電率 ϵ_r が30～47の範囲においてQ値が20000～58000であり、場合によってはQ値が35000より小さくなるのでQ値を

向上させる必要があるという課題があった。

【0006】

また、 LnAlSrCaTi 系の誘電体磁器（特開平11-278927号参照）では比誘電率 ϵ_r が30～48の範囲においてQ値が20000～75000であり、同様に場合によってはQ値が35000より小さくなるのでQ値を向上させる必要があるという課題があった。

【0007】

さらに、 LnAlCaSrBaTi 系の誘電体磁器（特開平11-106255号参照）では、比誘電率 ϵ_r が31～47でQ値が30000～68000であり、同様に場合によってはQ値が35000より小さくなるのでQ値を向上させる必要があるという課題があった。

【0008】

本発明は、上記事情に鑑みて完成されたもので、その目的は比誘電率 ϵ_r が30～48の範囲においてQ値40000以上、特に ϵ_r が40以上の範囲においてQ値が45000以上と高く、かつ比誘電率 ϵ_r の温度依存性が小さくかつ安定である誘電体磁器及び誘電体共振器を提供することである。」

「【0015】

【作用】

本発明の誘電体磁器では $\beta\text{-Al}_2\text{O}_3$ および／または $\theta\text{-Al}_2\text{O}_3$ の結晶相を含有させることによりQ値を向上させることができる。

【0016】

また、結晶系が六方晶および／または斜方晶である結晶を80体積%以上とすることにより、Q値を向上させることができる。」

「【0020】

特に本発明の誘電体磁器は $\text{LnAlO}_{(x+3)/2}$ ($3 \leq x \leq 4$) と MTiO_3 との固溶体からなるペロブスカイト型結晶を主結晶相とし、他の結晶相として $\beta\text{-Al}_2$

O_3 および／または $\theta - \text{Al}_2\text{O}_3$ が存在することが好ましい。」

「【0023】

また、前記 $\beta - \text{Al}_2\text{O}_3$ および／または $\theta - \text{Al}_2\text{O}_3$ を1／100000～3体積%含有することが重要である。これは前記 $\beta - \text{Al}_2\text{O}_3$ および／または $\theta - \text{Al}_2\text{O}_3$ の含有量を1／100000～3体積%含有すると著しくQ値が向上するからである。さらにQ値を高くするためには1／20000～2体積%含有することが好ましい。またさらにQ値を高くするためには1／5000～0.5体積%の範囲で含有することが特に好ましい。

【0024】

また、Q値を著しく高くするためには、 $\beta - \text{Al}_2\text{O}_3$ および／または $\theta - \text{Al}_2\text{O}_3$ との平均結晶粒径は0.1～40 μm が好ましく、特に好ましくは $\beta - \text{Al}_2\text{O}_3$ の平均結晶粒径は0.1～6 μm 、 $\theta - \text{Al}_2\text{O}_3$ の平均結晶粒径は3～40 μm である。また著しくQ値を高くするためには前記 $\beta - \text{Al}_2\text{O}_3$ の結晶の平均アスペクト比は2～30が好ましい。」

「【0027】

さらに、本発明の誘電体磁器は金属元素としてMn、WおよびTaのうち少なくとも1種以上を MnO_2 、 WO_3 および Ta_2O_5 換算で0.01～3重量%含有するものである。Mn、WおよびTaのうち少なくとも1種以上を MnO_2 、 WO_3 および Ta_2O_5 換算で0.01～3重量%含有するのは、0.01～3重量%含有すると著しくQ値が向上するからである。Q値を高くするためにはMn、WおよびTaのうち少なくとも1種を全量中 MnO_2 、 WO_3 および Ta_2O_5 換算で特に0.02～2重量%含有することが好ましく、さらにMnを MnO_2 換算で0.02～0.5重量%含有することが好ましい。」

「【0045】

また、本発明の誘電体磁器に含まれる六方晶および／または斜方晶の結晶は、例えば六方晶の LaAlO_3 、 AlNdO_3 、斜方晶の CaTiO_3 などのうち少なくとも

も1種以上で同定される。・・・」

「【0047】

本発明の誘電体磁器中に含有する β - Al_2O_3 および／または θ - Al_2O_3 は例えば、 $\text{La}_2\text{O}_3 \cdot 11\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Nd}_2\text{O}_3 \cdot 11\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{CaO} \cdot 6\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{SrO} \cdot 6\text{Al}_2\text{O}_3$ などのうち少なくとも1種からなる。・・・

【0048】

本発明の誘電体磁器に含有される稀土類元素(Ln)はY, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, ErおよびYbの酸化物のうち少なくとも1種以上からなることが望ましい。Q値を高くするためには稀土類元素はLa, Nd, Sm, Eu, Gd, Dyのうち少なくとも1種以上からなることが好ましい。さらにQ値を高くするためには稀土類元素はLa, Nd, Smのうち少なくとも1種以上からなることが特に望ましい。本発明においてQ値を高くするためには稀土類元素のうちLaが最も好ましい。

【0049】

本発明の誘電体磁器の製造方法としては、金属元素として少なくとも稀土類元素(Ln:但し、Laを稀土類元素のうちモル比で90%以上含有するもの)、Al, M(MはCaまたは／およびSr)、及びTiを含有する成形体を1630～1680℃で5～10時間焼成した後、1630～1300℃を310～500℃/時間で降温し、さらに1300～1100℃を5～100℃/時間で降温し、さらにまた1100～1050℃で20時間以上保持する工程を含むことを特徴とする。この製造方法を用いることにより、 β - Al_2O_3 および／または θ - Al_2O_3 が生成してQ値を高くすることができる。また、上述の本発明の製造方法により、稀土類元素(Ln:但し、Laを稀土類元素のうちモル比で90%以上含有するもの)、Al, M(MはCaおよび／またはSr)、及びTiを含有する酸化物からなる結晶のうち、結晶系が六方晶および／または斜方晶である結晶を80体積%以上とすることができ、その結果Q値を向上させることができる。

【0050】

さらにQ値を高くするため、さらに1050～1000℃で20時間以上保持することが好ましい。好ましくは、1630℃～1680℃で6～9時間保持した後、1630～1300℃を350～450℃／時間で降温し、さらに1300～1100℃を8～40℃／時間で降温し、さらにまた1100～1050℃で30時間以上保持して焼成する。また、本発明の製造方法は、前記原料を所定形状に成形する前に前記原料を1320～1350℃で1～10時間仮焼する工程を含むことが好ましい。1320℃未満あるいは1350℃よりも高い温度での仮焼では焼成工程で β - Al_2O_3 および／または θ - Al_2O_3 が十分生成しないため、Q値の向上の効果が著しくないからである。」

「【0065】

【実施例】

出発原料として高純度の稀土類酸化物、酸化アルミニウム (Al_2O_3)、炭酸カルシウム (CaCO_3)、炭酸ストロンチウム (SrCO_3)、酸化チタン (TiO_2) の各粉末を用いそれらを表1のモル比a, b, c, dとなるように秤量後、純水を加え混合し、この混合原料の平均粒径が2.0 μm 以下となるまで、ボールミルにより約20時間湿式混合し、粉砕を行った。この混合物を乾燥後、1330℃で2時間仮焼し、仮焼物を得た。この仮焼物に炭酸マンガン (MnCO_3)、酸化タングステン (WO_3) および酸化タンタル (Ta_2O_5) を表1の重量%となる様混合後、純水を加え、この混合原料の平均粒径が2.0 μm 以下となるまで、ボールミルにより約20時間湿式混合し、粉砕を行った。

【0066】

更に、得られたスラリーに5重量%のバインダーを加え、スプレードライにより整粒した。得られた整粒粉体を約1 t o n / c m²の圧力で円板状に成形後脱脂した。脱脂した成形体を大気中で1630℃～1680℃で5～10時間保持した後、1630～1300℃を310～500℃／時間で降温し、さらに1300～110

0℃を5～100℃／時間で降温し，さらにまた1100～1050℃で30時間保持，1050～1000℃で30時間保持して焼成した。

【0067】

そして，得られた焼結体の円板部（主面）を平面研磨し，アセトン中で超音波洗浄し，150℃で1時間乾燥した後，円柱共振器法により測定周波数3.5～4.5 GHzで比誘電率 ϵ_r ，Q値，共振周波数の温度係数 τf を測定した。Q値は，マイクロ波誘電体において一般に成立する（Q値）×（測定周波数f）＝（一定）の関係から，1GHzでのQ値に換算した。共振周波数の温度係数は，25℃の時の共振周波数を基準にして，25～85℃の温度係数 τf を算出した。

【0068】

また，焼結体をTechnoorg Linda製イオンシニング装置を用いて加工し，透過電子顕微鏡による観察，制限視野電子回折像による解析およびEDS分析により，焼結体に含有する β -Al₂O₃および／または θ -Al₂O₃の体積%，結晶粒径，アスペクト比等，および結晶系が六方晶および／または斜方晶である結晶の体積%などを下記（2a）～（2f）の通り測定した。」

「【0078】

表1～3から明らかなように， β -Al₂O₃および／または θ -Al₂O₃が存在する本発明の範囲内のNo.1，22，27，29～48は，比誘電率 ϵ_r が30～48，1GHzに換算した時のQ値が40000以上，特に ϵ_r が40以上の場合のQ値が45000以上と高く， τf が±30（ppm／℃）以内の優れた誘電特性が得られた。

【0079】

一方， β -Al₂O₃， θ -Al₂O₃を含まない本発明の範囲外の誘電体磁器（No.49～56）は， ϵ_r が低いか，Q値が低いか，又は τf の絶対値が30を超えていた。」

「【0083】

【発明の効果】

本発明において、金属元素として少なくとも稀土類元素（ L_n ：但し、 L_a を稀土類元素のうちモル比で90%以上含有するもの）、 Al 、 M （ M は Ca および／または Sr ）、及び Ti を含有する酸化物からなり、前記 Al の酸化物の少なくとも一部が $\beta-Al_2O_3$ および／または $\theta-Al_2O_3$ の結晶相として存在することにより、高周波領域において高い比誘電率 ϵ_r 及び高い Q 値を得ることができる。これにより、マイクロ波やミリ波領域において使用される共振器用材料やMIC用誘電体基板材料、誘電体導波路、誘電体アンテナ、その他の各種電子部品等に適用することができる。」

(2) 甲1の記載について

甲1には、次のとおりの記載がある（表は別紙のとおり）。

「【特許請求の範囲】

【請求項1】金属元素として希土類元素（ L_n ）、 Al 、 Ca および Ti を含み、これらの成分をモル比で

$$aL_n2O_x \cdot bAl_2O_3 \cdot cCaO \cdot dTiO_2$$

と表した時、 a 、 b 、 c 、 d および x の値が

$$a + b + c + d = 1$$

$$0.056 \leq a \leq 0.214$$

$$0.056 \leq b \leq 0.214$$

$$0.286 \leq c \leq 0.500$$

$$0.230 < d < 0.470$$

$$3 \leq x \leq 4$$

を満足することを特徴とする誘電体磁器組成物。」

「【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、例えば、自動車電話、コードレステレホン、パーソナル無線機、衛星放送受信機に搭載されるマイクロ波領域での共振器や回路基板

材料として適した新規な誘電体磁器組成物および誘電体共振器に関する。」

「【０００８】本発明は・・・比誘電率が大きく、高Ｑ値で、比誘電率の温度依存性が小さく且つ安定である誘電体磁器組成物および誘電体共振器を提供せんとするものである。」

【０００９】

【問題点を解決するための手段】本発明者等は上記問題に対し、検討を重ねた結果、 Ln_2O_x 、 Al_2O_3 、 CaO 、 TiO_2 （ Ln は少なくとも１種類以上の希土類元素であり、 $3 \leq x \leq 4$ ）からなり、これらを特定の範囲に調整することによって、比誘電率が大きく、高Ｑ値で、比誘電率の温度依存性が小さく且つ安定である誘電体磁器組成物が得られることを知見した。」

「【００１６】希土類元素（ Ln ）としては、 Y 、 La 、 Ce 、 Pr 、 Sm 、 Eu 、 Gd 、 Dy 、 Er 、 Yb 、 Nd 等があり、これらのなかでも Nd が最も良い。そして、本発明では、希土類元素（ Ln ）は２種類以上であっても良い。比誘電率の温度依存性の点からは、 Y 、 Ce 、 Pr 、 Sm 、 Eu 、 Gd 、 Dy 、 Er 、 Yb が好ましい。」

「【００１８】本発明の誘電体磁器組成物は、例えば、以下のようにして作成される。出発原料として、高純度の希土類酸化物、酸化アルミニウム、酸化チタン、炭酸カルシウムの各粉末を用いて、所望の割合となるように秤量する。この主成分に対して Nb_2O_5 、 Ta_2O_5 、 ZnO 等の粉末を添加しても良い。そして、この後、純水を加え、混合原料の平均粒径が $1.6 \mu m$ 以下となるまで $10 \sim 30$ 時間、ジルコニアボール等を使用したミルにより湿式混合・粉砕を行う。この混合物を乾燥後、 $1100 \sim 1300^\circ C$ で $1 \sim 4$ 時間仮焼し、さらに $0.8 \sim 5$ 重量%のバインダーを加えてから整粒し、得られた粉末を所望の成形手段、例えば、金型プレス、冷間静水圧プレス、押出し成形等により任意の形状に成形後、 $1500 \sim 1700^\circ C$ の温度で $1 \sim 10$ 時間大気中において焼成することにより得られる。」

「【００２０】

【作用】本発明の誘電体磁器組成物では、金属元素として希土類元素(Ln), Al, CaおよびTiを含む複合酸化物であるが、これらを特定の範囲に調整することによって、比誘電率が大きく、高Q値で、比誘電率の温度依存性が小さく且つ安定である誘電体磁器組成物が得られる。」

「【0022】

【実施例】出発原料として高純度の希土類酸化物(Nd_2O_3)、酸化アルミニウム(Al_2O_3)、酸化チタン(TiO_2)、炭酸カルシウム(CaCO_3)の各粉末を用いてそれらを表1となるように秤量後、純水を加え、混合原料の平均粒径が $1.6\mu\text{m}$ 以下となるまで、ミルにより約20時間湿式混合・粉砕を行なった。」

「【0024】この混合物を乾燥後、 1200°C で2時間仮焼し、さらに約1重量%のバインダーを加えてから整粒し、得られた粉末を約 $1000\text{Kg}/\text{cm}^2$ の圧力で円板状に成形し、 $1500\sim 1700^\circ\text{C}$ の温度で2時間大気中において焼成した。

【0025】得られた磁器の円板部を平面研磨し、アセトン中で超音波洗浄し、 150°C で1時間乾燥した後、円柱共振器法により測定周波数 $3.5\sim 4.5\text{GHz}$ で誘電率、Q値、共振周波数の温度係数 τf を測定した。Q値は、マイクロ波誘電体において一般に成立する $Q\text{値}\times\text{測定周波数}f=\text{一定}$ の関係から 1GHz でのQ値に換算した。共振周波数の温度係数 τf は、 -40°C から $+85^\circ\text{C}$ 間で共振周波数を測定し、 25°C の時の共振周波数を基準にして、 $-40^\circ\text{C}\sim 25^\circ\text{C}$ および $25^\circ\text{C}\sim +85^\circ\text{C}$ の温度係数 τf を算出した。結果を表1に示す。」

「【0027】表1からも明かなように、本発明により得られた誘電体は、比誘電率が30以上、Q値が20000(1GHz において)以上、 τf が ± 30 [ppm/ $^\circ\text{C}$] 以内の優れた誘電特性が得られた。一方、本発明の範囲外の誘電体では、比誘電率、またはQ値が低いか、または τf の絶対値が30を越えている。

【0028】また、本発明者等は、表1の試料No.7, 8, 10において、 Nd_2O_3 のNdを他の希土類元素と代えて実験を行った。結果を表2に示す。」

「【0030】この表2より、希土類酸化物として Nd_2O_3 に代えて他の希土類酸

化物を用いても、まだ比誘電率36以上、Q値が26000以上、 τf の絶対値が26以内と実用用十分な特性値を有していることが判る。」

「【0035】

【発明の効果】以上、詳述した通り、本発明の誘電体磁器組成物は、金属元素として希土類元素(Ln)、Al、CaおよびTiを含む複合酸化物であるが、これらを特定の範囲に調整することによって、高周波において高い誘電率、高いQ値、及び共振周波数の温度係数の小さい誘電特性を有することができる。従って、高周波にて使用される共振器あるいは回路基板材料としての用途に対し満足したものが得られる。」

(3) 甲21及び甲37の記載

甲21（特開平11-130544号公報）の【表4】の試料No.103、127及び【表5】の試料No.165には、甲1発明の組成範囲に含まれ、希土類元素としてLaを単独で使用した誘電体磁器において、Q値が45000、41000及び45000となる例が記載されている。

甲37（特開平7-57537号公報）の図1の試料1ないし7にも、同様に、甲1発明の組成範囲に含まれ、希土類元素としてLaを単独で使用した誘電体磁器において、Q値が40000以上となる例が記載されている。

2 取消事由1についての判断

原告は、審決が本件発明1と甲1発明との相違点として、「Laを希土類元素のうちモル比で90%以上含有するものを使用すること」と「1GHzでのQ値に換算した時のQ値が40000以上であること」との両者を充足する事項を相違点と認定した点に対して、La90%以上を使用することは、甲1の実施例（表2の試料No. 35）に示されているから相違点ではないと主張する。

しかし、原告の上記主張は、以下のとおり採用できない。すなわち、当該発明（本件発明1）と先行発明（甲1発明）との相違点を確定する趣旨は、先行発明に係る技術事項を起点として、当該発明の相違点に係る構成に到達することが容易であった

か否かを検討するためのものである。甲１発明に、当該発明の構成（Ｌａを希土類元素のうちモル比で９０％以上含有するものを使用すること）に係る記載がない以上、同構成を当然に一致するものとして容易想到性の有無についての判断の基礎とすることは妥当とはいえない。

この点、甲１には、希土類元素としてＬａを単独で使用した実施例（Ｌａを希土類元素のうちモル比で１００％含有するものを使用した実施例、表２の試料№．３５）が記載されている。しかし、審決が引用した発明は、実施例から認定したものではないから、実施例記載部分から、本件発明１と甲１発明とが、希土類元素として「Ｌｎ：但し、Ｌａを希土類元素のうちモル比で９０％以上含有するもの」を使用する点で一致すると認定することは、妥当を欠くというべきである。

以上のとおり、本件発明１と甲１発明とが、希土類元素として「Ｌｎ：但し、Ｌａを希土類元素のうちモル比で９０％以上含有するもの」を使用する点で一致するとの原告の主張は、採用できない。

３ 取消事由３（容易想到性判断の誤り－効果の顕著性）について

当裁判所は、本件発明１の相違点に係る構成は、甲１発明から容易に想到することはできないとした審決には誤りがあると判断する。その理由は次のとおりである。

(1) 甲１発明は、希土類元素の種類を特定するものではない。もっとも、甲１には、希土類元素について、「希土類元素（Ｌｎ）としては、Ｙ、Ｌａ、Ｃｅ、Ｐｒ、Ｓｍ、Ｅｕ、Ｇｄ、Ｄｙ、Ｅｒ、Ｙｂ、Ｎｄ等があり、これらのなかでもＮｄが最も良い。そして、本発明では、希土類元素（Ｌｎ）は２種類以上であっても良い。比誘電率の温度依存性の点からは、Ｙ、Ｃｅ、Ｐｒ、Ｓｍ、Ｅｕ、Ｇｄ、Ｄｙ、Ｅｒ、Ｙｂが好ましい。」（【００１６】）と記載されており、希土類元素としてＬａを使用できることが記載されており、希土類元素としてＬａを単独で使用した実施例（【表２】の試料№．３５）が記載されている。以上によれば、甲１には、甲１発明において、希土類元素としてＬａを単独で使用する、すなわち、Ｌａを希土類元素のうちモル比で１００％含有するものを使用することについての示唆があるとい

える。

甲1において希土類元素としてL aを単独でを使用したもの(【表2】の試料No.35)については、Q値は39000とされ、本件発明1の下限值に近接する値が示されている。また、甲1発明の組成と一致し、希土類元素としてL aを単独でを使用した誘電体磁器において、40000以上のQ値が得られることは、当業者において広く知られた事項である(甲21(【表4】の試料No.103, 127, 【表5】の試料No.165), 甲37(図1の試料1~7))から、甲1発明のうち、希土類元素としてL aを単独でを使用したものにおいて、40000以上のQ値が得られることは、当業者が十分に予測し得るといえる。

以上によれば、甲1発明において、希土類元素としてL aを単独で使用する(すなわち、L aを希土類元素のうちモル比で90%以上含有するものを使用する)とともに、Q値を40000以上とすることに、困難性はないというべきである。

(2) この点について、被告は、本件発明1が奏する効果とは、単に、Q値40000以上ということではなく、希土類元素として経済的に安価なL aを使用した場合でも、Q値40000以上という優れた特性の誘電体磁器を安定して供給することができ、この点で顕著な効果がある旨を主張する。

しかし、上記のとおり、希土類元素として経済的に安価なL aを使用した場合でも、Q値40000以上という優れた特性の誘電体磁器を安定して供給できるとの点は、当業者が十分に予測し得ることである。したがって、この点の被告の主張は採用の限りでない。

4 まとめ

以上によれば、取消事由3に係る原告の主張は理由がある。また、本件発明2ないし5についても、本件発明1と同様の誤りがあり、取消事由4に係る原告の主張も理由がある。

5 甲1発明の技術内容に関する補足

(1) 今後審理が再開される審判手続においては、甲1発明の内容についても、再

検討を要するというべきであり、その点について補足する。

審決は、前記第2、3(2)アのとおり、甲1発明を「(A)結晶系が六方晶および／または斜方晶の結晶を80体積%以上有する酸化物からなり、(B)Alの酸化物の少なくとも一部が β -Al₂O₃の結晶相として存在するとともに、前記 β -Al₂O₃の結晶相を1/100000～3体積%含有すること。」との結晶系からなるものを包含するとして認定し、これを前提に、本件発明1と甲1発明の相違点を認定する。しかし、審決の甲1発明の認定には、誤りがあると解する。その理由は次のとおりである。

ア「(B)Alの酸化物の少なくとも一部が β -Al₂O₃の結晶相として存在するとともに、前記 β -Al₂O₃の結晶相を1/100000～3体積%含有すること。」との認定について

審決は、前記「(B)」が認定できる根拠として、おおむね、①甲10、11によれば、Al₂O₃-La₂O₃-TiO₂の3成分系では、組成により、第二相として β -Al₂O₃が生成する場合もあり得ることが周知である、②甲10、29には、3成分系の状態図が記載されており、いずれも β -Al₂O₃に該当する結晶が生成する領域があることが見てとれ、4成分系の状態図は、3成分系状態図を組み合わせた四面体の形で表現できるから、La₂O₃-Al₂O₃-CaO-TiO₂の4成分系においても、少なくとも、組成によっては β -Al₂O₃に該当する結晶が生成する可能性があるとして理解される、③一般式ABO₃で表されるペロブスカイト型結晶のAサイトイオン又はBサイトイオンが過不足する場合、第二相が生成する可能性があることは、当該技術分野における技術常識というべきである、④以上によれば、ペロブスカイト型結晶を主結晶相とする誘電体磁器組成物においては、主結晶相以外の第二相に β -Al₂O₃に該当する結晶が生成する可能性があることが示されている、⑤甲1の再現実験（甲4）において再現された試料の結晶構造は、主結晶相が斜方晶であり、第二相として β -Al₂O₃が0.07～8.29体積%含有していることが確認され、これは、本件発明で、第二相として β -Al₂O₃が1

／１０００００～３体積％とする範囲を包含するものである、と判断している。

しかし、３つの３成分系状態図を四面体の形に組み合わせた４成分系状態図から、上記四面体の内部に存在する結晶相を推測することには、困難が伴う。のみならず、審決において組み合わせられた３つの３成分系状態図の温度は、それぞれ異なるもので、これらの状態図を組み合わせることは不適切であるし、いずれも１０００℃以上の高温での状態図であるから、このような高温での状態図から、室温での結晶相を推測することにも、困難が伴う。そうすると、審決の指摘する①ないし⑤の点を前提としたとしても、甲１の請求項１に記載の誘電体磁器組成物において、組成によっては、第二相として１／１０００００～３体積％の β - Al_2O_3 が生成する可能性を排除することができないと認められるに留まる。

甲１には、上記誘電体磁器組成物において、 β - Al_2O_3 が存在することについては記載も示唆もない。甲１の請求項１に記載の誘電体磁器組成物は、その組成によっては、第二相として１／１０００００～３体積％の β - Al_2O_3 が存在する結晶構造をとる可能性が排除できないとしても、そのような結晶構造ではない多種多様な結晶構造をとる可能性も存在するのであるから、甲１に、所定の組成を有し、第二相として１／１０００００～３体積％の β - Al_2O_3 を存在させた誘電体磁器組成物が直ちに記載されているとすることはできない。

そうすると、審決が、「(B) Al の酸化物の少なくとも一部が β - Al_2O_3 の結晶相として存在するとともに、前記 β - Al_2O_3 の結晶相を１／１０００００～３体積％含有すること。」の事項を含む甲１発明を認定したことには、疑問の余地がある。

イ 「(A) 結晶系が六方晶および／または斜方晶の結晶を８０体積％以上有する酸化物からなり」との認定について

上記と同様に、「(A) 結晶系が六方晶および／または斜方晶の結晶を８０体積％以上有する酸化物からなり」との点に関しても、組成によって、「結晶系が六方晶および／または斜方晶の結晶を８０体積％以上有する」ものとなる場合があるとして

も、甲 1 の請求項 1 に記載の組成であれば、必然的に「結晶系が六方晶および／または斜方晶の結晶を 80 体積％以上有する」とはいえない以上、甲 1 に、所定の組成を有する誘電体磁器組成物であって、「結晶系が六方晶および／または斜方晶の結晶を 80 体積％以上有する」ものが記載されているということとはできない。

(2) 以上のとおり、審決の甲 1 発明の認定には、誤りがあると解するので、今後審理が再開される審判手続においては、甲 1 発明についても、再検討を要するといふべきである。

6 結論

よって、主文のとおり判決する。

知的財産高等裁判所第 1 部

裁判長裁判官

飯 村 敏 明

裁判官

八 木 貴 美 子

裁判官

小 田 真 治

(別紙)

本件明細書の【0080】【表1】

【表1】

試料 No.	希土類元素 の比率	CaOとSrO との比率		Ln ₂ O ₃ a	Al ₂ O ₃ b	MO =CaO+SrO c	TiO ₂ d	(b+d) (a+c)	MnO ₂ (重量%)	WO ₃ (重量%)	Ta ₂ O ₅ (重量%)
		CaO	SrO								
1	0.1Y-0.9La	0.00	1.00	0.0800	0.0800	0.4400	0.4000	0.923	0.01	0.00	0.00
*2	0.1Sm-0.9Nd	0.50	0.50	0.1240	0.1300	0.3730	0.3730	1.012	1.00	0.00	0.00
*3	0.5La-0.5Sm	0.80	0.20	0.2140	0.2140	0.2860	0.2860	1.000	0.04	0.00	0.00
*4	Nd	0.40	0.60	0.1250	0.1280	0.3300	0.4190	1.198	0.50	0.00	0.00
*5	0.1La-0.9Nd	0.90	0.10	0.1250	0.1250	0.4170	0.3330	0.845	0.30	0.00	0.00
*6	0.5La-0.5Nd	0.30	0.70	0.2090	0.2050	0.2860	0.3000	1.020	0.00	0.00	0.01
*7	0.1Ce-0.9Sm	0.50	0.50	0.1539	0.1661	0.3300	0.3500	1.067	0.00	0.00	0.03
*8	0.1Ce-0.9Nd	0.50	0.50	0.0560	0.0560	0.4580	0.4300	0.948	0.00	0.00	0.05
*9	0.4Nd-0.6La	0.10	0.90	0.0800	0.0610	0.4854	0.3836	0.801	0.00	0.00	0.00
*10	0.1Pr-0.9Nd	0.50	0.50	0.0941	0.1099	0.4600	0.3450	0.805	0.00	0.01	0.00
*11	0.5Sm-0.5Nd	0.70	0.30	0.0770	0.0770	0.4300	0.4160	0.972	0.00	0.05	0.00
*12	Sm	0.20	0.80	0.0700	0.0560	0.4240	0.4500	1.024	0.00	0.08	0.00
*13	0.1Sm-0.9Nd	0.80	0.20	0.1320	0.1600	0.3270	0.3810	1.179	0.00	1.00	0.00
*14	0.5Sm-0.5Nd	0.50	0.50	0.1071	0.1090	0.3539	0.4300	1.189	0.00	1.20	0.00
*15	Eu	0.50	0.50	0.0600	0.0600	0.5000	0.3800	0.786	0.00	0.00	0.00
*16	0.1Eu-0.9Nd	0.40	0.60	0.1400	0.1750	0.3350	0.3500	1.105	0.00	0.01	0.50
*17	Gd	0.20	0.80	0.0600	0.0600	0.4105	0.4695	1.125	0.00	0.03	0.05
*18	0.1Gd-0.9Nd	0.80	0.20	0.0780	0.0780	0.4220	0.4220	1.000	0.00	0.08	1.50
*19	Dy	0.50	0.50	0.1166	0.1166	0.4267	0.3401	0.841	0.00	1.00	1.00
*20	0.1Dy-0.9Nd	0.40	0.60	0.1098	0.1098	0.3902	0.3902	1.000	0.03	0.02	0.50
*21	0.5Dy-0.5Nd	1.00	0.00	0.0790	0.0790	0.4610	0.3810	0.852	0.03	0.00	0.00
22	0.1Sm-0.9La	0.50	0.50	0.0881	0.0881	0.4119	0.4119	1.000	0.09	0.00	0.20
*23	0.3Nd-0.7La	0.40	0.60	0.1072	0.1072	0.4378	0.3460	0.836	1.00	0.00	0.01
*24	0.1Gd-0.9Eu	0.20	0.80	0.0884	0.0884	0.4100	0.4132	1.006	0.02	1.30	0.00
*25	0.2Dy-0.8Eu	0.50	0.50	0.1700	0.1760	0.3270	0.3270	1.012	0.00	0.00	0.00
*26	0.9Nd-0.1La	0.30	0.70	0.2130	0.2120	0.3440	0.2310	0.795	0.07	0.05	0.00
27	La	0.00	1.00	0.1000	0.1000	0.4000	0.4000	1.000	0.06	0.09	0.70
*28	0.9Nd-0.1La	0.50	0.50	0.1200	0.1220	0.3750	0.3830	1.020	0.01	0.00	0.00
29	La	0	1	0.1623	0.1623	0.3377	0.3377	1.000	0.00	0.00	0.00
30	La	0	1	0.1307	0.1597	0.3548	0.3548	1.060	0.05	0.00	0.00
31	La	0	1	0.2105	0.1688	0.3460	0.2747	0.797	1.00	0.00	0.00
32	La	0	1	0.1382	0.1438	0.3769	0.3411	0.941	0.50	0.00	0.00
33	La	0	1	0.1707	0.2086	0.3460	0.2747	0.935	0.20	0.00	0.00
34	La	0	1	0.1061	0.1061	0.3939	0.3939	1.000	0.10	0.00	0.00
35	La	0	1	0.1801	0.1444	0.3040	0.3715	1.066	0.01	0.01	0.00
36	La	0	1	0.1452	0.1452	0.3956	0.3140	0.849	0.05	0.05	0.00
37	La	0.1	0.9	0.1163	0.1259	0.4092	0.3488	0.903	1.00	0.01	0.00
38	La*	0	1	0.1211	0.1211	0.3789	0.3789	1.000	0.02	0.01	0.00
39	La	0	1	0.1276	0.1383	0.3597	0.3744	1.052	0.50	0.00	0.00
40	La	0	1	0.2162	0.1831	0.3041	0.3166	0.922	0.40	0.00	0.00
41	La	0.9	0.1	0.1410	0.1410	0.3590	0.3590	1.000	0.20	0.00	0.00
42	La	1	0	0.1707	0.2086	0.3166	0.3041	1.052	0.00	0.00	0.00
43	La	1	0	0.1071	0.1050	0.3506	0.4373	1.185	0.00	1.00	0.01
44	La	1	0	0.1125	0.1375	0.4125	0.3375	0.905	0.10	0.00	2.90
45	La	1	0	0.1515	0.1143	0.4185	0.3157	0.754	0.05	0.50	0.00
46	La	1	0	0.1329	0.1658	0.3121	0.3892	1.247	0.00	0.00	2.00
47	La	1	0	0.1897	0.1897	0.3103	0.3103	1.000	0.03	0.00	0.00
48	La	1	0	0.1308	0.1114	0.3979	0.3599	0.891	0.00	0.00	0.00
*49	Y	0.00	1.00	0.0800	0.0800	0.4200	0.4200	1.000	0.00	0.00	0.00
*50	0.9Yb-0.1Ce	0.00	1.00	0.2000	0.2100	0.2900	0.3000	1.041	0.00	0.00	0.00
*51	Nd	0.00	1.00	0.0660	0.0500	0.4850	0.3990	0.815	0.00	0.00	0.00
*52	0.1Dy-0.9Gd	0.50	0.50	0.2100	0.2000	0.2900	0.3000	1.000	0.00	0.00	0.00
*53	Ce	1.00	0.00	0.0750	0.0555	0.4900	0.3795	0.770	0.00	0.00	0.00
*54	0.5Pr-0.5Eu	1.00	0.00	0.1130	0.1260	0.4000	0.3610	0.949	0.00	0.00	0.00
*55	0.5Er-0.5La	1.00	0.00	0.0875	0.0675	0.3850	0.4800	1.210	0.00	0.00	0.00
*56	0.5Nd-0.5Y	1.00	0.00	0.1800	0.0900	0.3720	0.3780	0.880	0.00	0.00	0.00

*を付けた試料番号は本発明の請求範囲外のものである。

本件明細書の【0081】【表2】

【表2】

試料 No.	MnO ₂ +WO ₃ +Ta ₂ O ₅ (重量%)	1630~1680 °Cでの保持 時間(時間)	1630~1300°C の降温速度 (°C/時間)	1300~1100°C の降温速度 (°C/時間)	1100~1050°C での保持時間 (時間)	1050~1000°C での保持時間 (時間)
1	0.01	5	400	8	30	30
*2	1.00	7	350	10	30	30
*3	0.04	8	400	20	30	30
*4	0.50	9	450	30	30	30
*5	0.30	6	350	40	30	30
*6	0.01	7	400	15	30	30
*7	0.03	8	500	20	30	30
*8	0.05	10	310	25	30	30
*9	0.00	6	400	8	30	30
*10	0.01	7	350	10	30	30
*11	0.05	8	400	20	30	30
*12	0.08	9	450	30	30	30
*13	1.00	6	350	40	30	30
*14	1.20	7	400	15	30	30
*15	0.00	8	450	20	30	30
*16	0.51	9	400	25	30	30
*17	0.08	6	400	8	30	30
*18	1.58	7	350	10	30	30
*19	2.00	8	400	20	30	30
*20	0.55	9	450	30	30	30
*21	0.03	6	350	40	30	30
22	0.29	7	400	15	30	30
*23	1.01	8	450	20	30	30
*24	1.32	9	400	25	30	30
*25	0.00	6	400	8	30	30
*26	0.12	7	350	10	30	30
27	0.85	8	400	20	30	30
*28	0.01	9	450	30	30	30
29	0.00	6	350	40	30	30
30	0.05	7	400	15	30	30
31	1.00	8	450	20	30	30
32	0.50	10	400	25	30	30
33	0.20	6	400	8	30	30
34	0.10	7	350	10	30	30
35	0.02	8	400	20	30	30
36	0.10	9	450	30	30	30
37	1.01	5	350	40	30	30
38	0.03	7	400	15	30	30
39	0.50	8	450	20	30	30
40	0.40	9	400	25	30	30
41	0.20	6	400	8	30	30
42	0.00	7	350	10	30	30
43	1.01	8	400	20	30	30
44	3.00	9	450	30	30	30
45	0.55	6	350	40	30	30
46	2.00	7	400	15	30	30
47	0.03	8	450	20	30	30
48	0.00	9	400	25	30	30
*49	0.00	2	400	30	8	30
*50	0.00	14	350	25	10	30
*51	0.00	5	100	20	20	20
*52	0.00	7	700	30	20	20
*53	0.00	6	350	3	20	20
*54	0.00	7	400	300	20	20
*55	0.00	8	450	20	5	20
*56	0.00	9	450	25	5	5

*を付けた試料番号は本発明の請求範囲外のものである。

本件明細書の【0082】【表3】

【表3】

試料 No.	体積%			結晶系が六方晶および/または 斜方晶の結晶(体積%)	誘電特性		
	β - Al_2O_3	θ - Al_2O_3	β - Al_2O_3 + θ - Al_2O_3		ϵ_r	Q値	τ_f ppm/°C
10		0.00001	0.00001		97	45.2	45000 26.3
*2	0.0005	0.0005	0.001		94	34.8	48000 -26.9
*3	2.15	0.12	2.27		99	31.2	50000 2.0
*4	0.001	0.001	0.002		90	39.9	43000 -16.5
*5	0.002	0.00005	0.00205		99	38.2	48000 -14.0
*8	0.30	2.70	3.00		94	32.4	59000 -26.5
*7	0.00008	0.0001	0.00018		98	38.9	43000 -0.5
*8	0.0002	0.0003	0.0005		95	43.2	45000 11.9
*9	0	0.0005	0.0005		92	39.0	40000 29.0
*10	0.020	0.003	0.023		100	37.5	43000 28.4
*11	0.0005	0.0010	0.0015		99	46.8	46000 29.1
*12	0.01	0.06	0.07		93	48.0	49000 21.2
*13	0.31	0.11	0.42		93	45.2	50000 -4.5
*14	0.15	0.29	0.44		99	38.8	42000 11.1
*15	0.00006	0.00008	0.00014		90	36.0	40000 16.5
*16	0.02	0.60	0.62		100	35.5	44000 -14.3
*17	0.002	0.004	0.006		100	34.5	42000 19.2
*18	0.05	0.05	0.10		97	42.5	52000 21.1
*19	0.07	0.13	0.20		100	41.1	58000 1.1
*20	0.12	0.26	0.38		99	39.5	54000 2.1
*21	0.25	0.00	0.25		100	34.0	51000 2.7
22	0.017	0.021	0.038		98	43.2	45000 27.4
*23	0.20	0.19	0.39		100	42.4	51000 4.0
*24	0.005	0.030	0.035		95	39.2	42000 21.2
*25	0.04	0.41	0.45		85	38.7	40000 -2.5
*26	0.30	0.80	0.90		98	31.9	46000 29.5
27	0.10	0	0.10		99	44.1	45000 1.1
*28	0.02	0.13	0.15		99	44.0	45000 -3.5
29	0	0.20	0.20		96	37.1	45000 -10.8
30	0	0.14	0.14		97	38.5	46000 6.1
31	0	0.42	0.42		90	31.8	53000 -26.8
32	0	0.05	0.05		99	38.2	58000 3.5
33	0	0.003	0.003		96	34.0	60000 -21.5
34	0	0.005	0.005		91	45.9	48000 29.9
35	0	0.05	0.05		98	38.1	56000 -3.1
36	0	0.06	0.06		99	33.2	43000 -6.8
37	0	0.09	0.09		97	37.9	55000 22.3
38	0	0.48	0.48		100	45.2	57000 18.1
39	0.0020	1.14	1.1420		95	44.0	48000 12.9
40	0	0.18	0.18		100	36.2	47000 -19.6
41	0	0.05	0.05		99	39.5	68000 2.2
42	0.17	0.27	0.44		90	31.0	40000 -16.8
43	0.010	0	0.010		100	42.0	45000 29.9
44	0.006	0	0.006		100	35.1	48000 19.1
45	0.006	0	0.006		97	32.8	58000 4.2
46	0.009	0	0.009		96	32.0	49000 2.7
47	0.50	0	0.50		98	31.0	78000 -25.1
48	0.14	0.11	0.25		100	32.0	40000 12.8
*49	0	0	0		79	35.6	18000 35.6
*50	0	0	0		75	40.2	9000 -39.7
*51	0	0	0		77	29.7	12000 -34.1
*52	0	0	0		76	36.9	14000 -41.9
*53	0	0	0		78	33.0	15000 44.5
*54	0	0	0		79	31.0	16000 -38.2
*55	0	0	0		76	33.5	17000 40.9
*56	0	0	0		75	38.5	13000 6.6

*を付けた試料番号は本発明の請求範囲外のものである。

甲1の【0026】【表1】

試料 No.	Nd ₂ O ₃ a	Al ₂ O ₃ b	CaO c	TiO ₂ d	比誘電率 ϵ_r	Q 値	共振周波数の温度係数 τf (ppm/°C)	
							-40~+25°C	+25~+85°C
1	0.0800	0.1700	0.3750	0.3750	41	23000	+ 27	+ 28
2	0.1240	0.1300	0.3730	0.3730	35	54000	- 28	- 27
3	0.0790	0.0800	0.4700	0.3710	41	44000	+ 19	+ 20
4	0.1250	0.1250	0.3330	0.4170	39	32000	- 16	- 15
5	0.1250	0.1250	0.4170	0.3330	34	58000	- 29	- 28
6	0.1400	0.1250	0.4350	0.3000	31	25000	- 25	- 24
7	0.1061	0.1061	0.3939	0.3939	39	47000	- 17	- 18
8	0.0881	0.0881	0.4119	0.4119	43	47000	- 1	0
9	0.0560	0.0804	0.4800	0.3836	43	32000	+ 29	+ 30
10	0.0941	0.0929	0.4587	0.3543	38	46000	- 1	0
11	0.2140	0.0660	0.2880	0.4320	32	38000	- 31	- 30
12	0.1700	0.0560	0.3870	0.3870	40	21000	+ 9	+ 10
13	0.1320	0.2140	0.3270	0.3270	30	20000	- 18	- 16
14	0.1071	0.2009	0.2860	0.4060	34	20000	- 26	- 25
15	0.0790	0.0790	0.5000	0.3420	38	49000	+ 29	+ 30
16	0.1400	0.1750	0.4350	0.2500	33	29000	- 29	- 28
17	0.1250	0.1250	0.3000	0.4500	42	34000	- 11	- 10
*18	0.2357	0.1111	0.3266	0.3266	24	15000	- 56	- 55
*19	0.0500	0.0920	0.4290	0.4290	58	25000	+108	+109
*20	0.1067	0.2267	0.3333	0.3333	32	15000	- 11	- 10
*21	0.0920	0.0500	0.4290	0.4290	51	3000	+ 46	+ 47
*22	0.1228	0.1228	0.5088	0.2456	30	53000	- 53	- 52
*23	0.1460	0.1304	0.2700	0.4536	42	1200	- 11	- 10
*24	0.0790	0.0790	0.3710	0.4710	59	250	測 定 不 能	
*25	0.2000	0.2000	0.3700	0.2300	23	56000	- 81	- 80
26	0.0780	0.0780	0.4220	0.4220	47	48000	+ 19	+ 20
27	0.1166	0.1166	0.4268	0.3400	35	55000	- 21	- 20
28	0.1098	0.1098	0.3902	0.3902	38	49000	- 21	- 20
29	0.0790	0.0800	0.4700	0.3710	41	44000	+ 19	+ 20
30	0.0881	0.0881	0.4119	0.4119	43	47000	- 1	0
31	0.1072	0.1075	0.4376	0.3477	37	53000	- 11	- 10
32	0.0884	0.0892	0.4592	0.3632	40	47000	+ 9	+ 10

*印は、本発明の請求範囲外の試料を示す。

甲1の【0029】【表2】

試料 No.	希土類元素 (Ln)	比誘電率 ϵ_r	Q 値	共振周波数の温度係数 τf (ppm/°C)		備 考
				-40~+25°C	+25~+85°C	
33	Y	43	36000	+ 3	+ 5	表1の試料 No. 8 a : 0.0881 b : 0.0881 c : 0.4119 d : 0.4119
34	0.1Y・0.9Nd	42	40000	+ 1	+ 3	
35	La	44	39000	- 20	- 18	
36	0.1La・0.9Nd	43	36000	- 3	- 3	
37	Ce	44	36000	- 10	- 11	
38	0.1Ce・0.9Nd	43	30000	- 4	- 3	
39	Pr	42	30000	+ 5	+ 4	
40	0.1Pr・0.9Nd	43	35000	- 1	- 2	
41	0.5Pr・0.5Nd	43	38000	+ 3	+ 3	
42	Sm	41	35000	- 4	- 6	
43	0.1Sm・0.9Nd	41	33000	- 6	- 6	
44	0.5Sm・0.5Nd	42	39000	- 3	- 3	
45	Eu	43	33000	- 1	- 2	
46	0.1Eu・0.9Nd	43	37000	- 1	- 1	
47	Gd	41	34000	+ 1	+ 2	
48	0.1Gd・0.9Nd	42	32000	0	+ 1	
49	Dy	41	40000	+ 9	+ 2	
50	0.1Dy・0.9Nd	43	42000	- 1	- 4	
51	0.5Dy・0.5Nd	43	44000	+ 3	+ 1	
52	Er	40	29000	+ 4	+ 3	
53	0.1Er・0.9Nd	42	36000	+ 1	+ 2	
54	Yb	39	26000	+ 6	+ 7	表1の試料 No. 7 a : 0.1061 b : 0.1061 c : 0.3939 d : 0.3939
55	0.1Yb・0.9Nd	42	30900	+ 2	+ 3	
56	Pr	39	40000	- 10	- 11	
57	0.5Pr・0.5Nd	39	38000	- 14	- 15	
58	Sm	38	42000	- 25	- 26	
59	0.5Sm・0.5Nd	38	42000	- 21	- 22	
60	Dy	38	38000	- 9	- 12	表1の試料 No. 10 a : 0.0941 b : 0.0941 c : 0.4587 d : 0.3543
61	0.5Dy・0.5Nd	38	40000	- 13	- 15	
62	Pr	38	37000	+ 4	+ 3	
63	0.5Pr・0.5Nd	38	33000	+ 3	+ 2	
64	Sm	37	43000	- 5	- 7	
65	0.5Sm・0.5Nd	38	44000	- 3	- 3	
66	Dy	36	35000	+ 5	+ 1	
67	0.5Dy・0.5Nd	37	38000	+ 3	+ 1	