— 論 文 —

(日本化学会誌, 1988, (1), p. 25~31)

© 1988 The Chemical Society of Japan

8-キノリノールを用いた $\text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$ の合成

(1987年6月26日受理)

掛川一幸*・若林剛**・佐々木義典

有機キレート試薬の 8-キノリノール (オキシソ) を用いて $\text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$ (以下 BMT と略記する) の新しい合成方法を開発した。 Mg^{2+} と Ta^{5+} の共存する塩酸溶液をオキシソのアノニア水溶液に加えることによって沈殿を得て、これを熱分解後、等モルの炭酸バリウムと混合し、ふたたび焼成することにより BMT を合成した。キレート沈殿物を 1100°C で焼成したときにマグネシウム成分の揮発が見られたが、あらかじめ 250°C で 6 時間加熱処理したのちに 1100°C で焼成することにより、揮発の問題点を解決した。BMT を得るための従来方法である炭酸バリウム、酸化マグネシウム、酸化タンタル (V) の三者の混合物の焼成では BaTa_2O_6 が中間生成物として生じてしまい、 1300°C 1 時間程度の焼成では単一相の BMT は得られないが、オキシソを用いたこの方法では、中間生成物は見られず、上記の焼成条件で単一相の BMT を得ることができた。中間生成物の生成なしに BMT を得るためには、炭酸バリウム、酸化マグネシウム、酸化タンタルの三者の固体間反応よりも、マグネシウムとタンタルを単一の化合物 (MgTa_2O_6) にしたのちに BaCO_3 と反応させる方が好ましいことがわかった。

1 緒 言

衛星放送の普及や地上の SHF 放送の実用化への動き¹⁾によって、マイクロ波帯で使用可能な誘電体の開発が急がれている。この周波数帯用の誘導体には、高い Q をもつこと、誘電率が高いこと、温度係数が小さいことなどの性能が要求される^{2)~4)}。現在、これらの要求にあう化合物として $\text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$ ⁵⁾, $\text{Ba}(\text{Zn}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$ ⁶⁾, $(\text{Zr}, \text{Sn})\text{TiO}_4$ ⁶⁾, $\text{Ba}(\text{Mn}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$ ⁷⁾, $\text{Ba}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ ⁸⁾ などが提案されている。さらにこれらの材料に、焼結性がよいこと、再現性のあることなどの特性も要求される⁹⁾。焼結性、再現性の良好な材料を製造する方法として、一般に湿式による調

製が有効であるとされている。湿式法でもっとも容易で多く行なわれている方法は目的の化合物の構成陽イオンを含む水溶液の pH を変えて、それらを沈殿させる方法である。しかし、マイクロ波用誘電体には、 Mg , Zn , Sn のような単なる pH の調整では沈殿の得難い成分の含まれているものが多い。著者らは、分析用有機キレート試薬が多くの陽イオンを沈殿させるのに有効であることに着目して、これらをセラミックスの合成に転用することを考えた。すでに有機キレート試薬であるクベロンを用いて $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ を合成してその有効性を確認している¹⁰⁾。

セラミックス化合物を湿式で得ようとするとき、その化合物の構成陽イオンの溶液からそれらを同時に、しかも瞬時に沈殿させることが望ましい。そうでないと溶解度の低いものから順次沈殿が起り、均一なものが得られない¹¹⁾。目的の化合物に含まれる陽イオンの種類が増すにしたがってそのような条件は満足し難くなる。著者らはペロブスカイト型固溶体 ($\text{A}_1, \text{A}_2, \dots$) ($\text{B}_1, \text{B}_2, \dots$) O_3 を合成するさい、A サイトイオン、B サイトイオンの酸化物を別々に湿式で得て、両者を固体間反応させることによって均一な固溶体の得られることを見いだした (湿式-乾式組み合わせ法)^{12)~14)}。この方法によれば湿式で同時に沈殿させなければならないイオンの種類が少なく済み、多種のイオンを含む化

千葉大学工学部, 260 千葉市弥生町

** 現在 東京エレクトロン株式会社, 407 荏崎市藤井町北下条

- 1) 小西良弘, エレクトロニクスセラミックス, 10 [春号], 33 (1979).
- 2) S. Nomura, K. Toyama, K. Kaneta, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 21, L 624 (1982).
- 3) H. M. O'Bryan, Jr., J. Thomson, Jr., J. K. Plourde, *J. Am. Ceram. Soc.*, 57, 450 (1974).
- 4) S. Kawashima, M. Nishida, I. Ueda, H. Ouchi, S. Hayakawa, "Proceedings of the First Meeting on Ferroelectric Materials and Their Applications", Kyoto, 293 (1977).
- 5) S. Kawashima, M. Nishida, I. Ueda, H. Ouchi, *J. Am. Ceram. Soc.*, 66, 421 (1983).
- 6) K. Wakino, K. Minai, J. Tamura, *ibid.*, 67, 278 (1984).
- 7) S. Nomura, K. Kaneta, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 23, 507 (1984).
- 8) M. Onoda, J. Kuwata, K. Kaneta, K. Toyama, S. Nomura, *ibid.*, 21, 1707 (1982).
- 9) R. C. Kell, A. C. Greenham, G. C. E. Olds, *J. Am. Ceram. Soc.*, 56, 352 (1973).

10) K. Kakegawa, J. Mohri, S. Shirasaki, K. Takahashi, *ibid.*, 67, C-2 (1984).

11) 掛川一幸, 毛利純一, 今井 賢, 白崎信一, 高橋敏一郎, 日化, 1985, 692.

12) K. Kakegawa, J. Mohri, K. Takahashi, H. Yamamura, S. Shirasaki, *Solid State Commun.*, 24, 769 (1977).13) K. Kakegawa, J. Mohri, H. Ishiguro, K. Takahashi, S. Shirasaki, *Chem. Lett.*, 1982, 1655.14) K. Kakegawa, J. Mohri, *J. Am. Ceram. Soc.*, 68, C-204 (1985).

Fig. 1 Process for preparing $\text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$ by using 8-quinolinol

化合物の合成もそれだけ容易になる。

本研究では、有機キレート試薬 8-キノリノール（以下オキシンと略記する）を用い、さらに、湿式-乾式組み合わせ法を用いてマイクロ波用誘電体として有望な材料とされている $\text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$ (BMT) の合成を試みた。

2 実験方法

本研究で新しく試みた BMT の合成工程を図 1 に示す。塩化タンタル(V)（関東化学，特級）を濃塩酸に溶解し、重量法によりその濃度を決定した。この溶液を一定量とり、含まれる Ta^{5+} の 1/2 のモル数の酸化マグネシウム（小宗化学，特級）をそれに溶解した。これを、アンモニア水で pH 10~11 に調整してあるオキシン水溶液中に細いノズルを通して注入して沈殿を得た。オキシンは室温では溶解度が低いため水溶液の温度を約 60°C とした。沈殿が完了するのに必要なオキシン量についても検討した。この沈殿を洗浄後 100°C で 2 時間乾燥させた。このときの粉末状試料の色は暗黄色であった。この粉末は加熱時の重量変化や相変化の測定のための試料としても用いた。この粉末を 250°C で 6 時間熱分解した後、1100°C で 1 時間焼成して完全に酸化物の形にした。必要に応じて熱分解条件や焼成条件を変えて検討を行なった。得られた酸化物に等モルの炭酸バリウム（和光純薬，特級 99.0%）を加え、十分に混合後、焼成して BMT を得た。焼成条件についても検討を行なった。

比較のため炭酸バリウム，酸化マグネシウム，酸化タンタル(V)の三者の混合物の焼成による BMT の合成（従来方法）の検討も行なった。また酸化マグネシウム，酸化タンタル(V)の混合物を一度焼成したのち、炭酸バリウムと混合，焼成する方法についても検討した。粉末の混合はすべて、めのうの乳鉢を用いて行なった。

X線回折測定には理学電機製粉末 X 線回折装置を用いた。ターゲットは Cu とし、フィルターに Ni を用いた。

3 結果と考察

最初に、 Ta^{5+} 、 Mg^{2+} を完全に沈殿させるのに必要なオキシン

Fig. 2 Relation between yield of MgO and oxine/ Mg^{2+} mole ratio

○ : Calculated value,
● : Observed value

量の検討を行なった。 Ta^{5+} は、pH 10~11 でオキシン濃度がゼロでも、水酸化物として完全に沈殿することが確認されたので、 Ta^{5+} 単独の水溶液についてはそれ以上の検討は省略した。以下に Mg^{2+} を完全に沈殿させるのに必要なオキシンの量の検討結果を示す。一定量の酸化マグネシウムの塩酸溶液をオキシン溶液に滴下し沈殿を形成したのち、1100°C で 1 時間焼成し、ふたたび酸化マグネシウムの形にして、その収率を求めた。用いたオキシン量と収率との関係を図 2 に示す。1100°C，1 時間の焼成により沈殿は完全に酸化物の形になっていた。オキシンは Mg^{2+} イオンに対して 2 分子配位する¹⁵⁾ ことになっているので理想的には (オキシン)/(Mg^{2+}) = 2 のところで収率は 100% になると考えられる (白丸印)。しかし、実際に収率が一定となったのは (オキシン)/(Mg^{2+}) = 3 以上のところであった。

図 2 において十分な量のオキシンを用いて沈殿させても、収率が 100% になっていないことがわかる。このままでは最終化合物の組成を精密にコントロールすることが困難となるので非常に問題である。この原因は焼成のさい、マグネシウム-オキシンのキレートが熱分解して酸化マグネシウムになる過程で、一部が揮発してしまうためであると考えられる。キレートの揮発を防ぐためにはできるだけ低い温度で長時間熱分解する必要がある。高めの温度で熱処理すると、キレートの揮発が起こり、また、低めの温度で熱処理すればキレートの揮発はおさえられるが、熱分解完了に長時間を要するようになる。熱分解完了に必要な時間処理を行なわないと、つづく高温での焼成時に未分解のキレートが揮発するおそれが生じる。低温での熱分解ののちの高温の焼成は、残留する炭素分を除くために必要である。仮に高温での熱分解を省略したとしても、この熱分解生成物は炭酸バリウムと混合後、高温で焼成させることになるので、未分解のキレートが含まれていればそのさいに揮発するおそれがある。したがって、焼成時間を一

15) 深間内久雄，“金属キレート〔Ⅱ〕，第 7 章”，南江堂（1971）p. 162.

Fig. 3 Yield of MgO vs. decomposition temperature

Decomposition period:

○: 1 h, ◐: 2 h, ●: 4 h, ●: 6 h

Fig. 4 Yield as a function of 8-quinolinol/ MgTa_2O_6 mole ratio

定にした場合、収率が最大となる熱分解温度が存在すると予想される。キレート熱分解の温度が低過ぎると途方もない時間を要することになるので実用的ではない。熱処理温度と処理時間の兼ね合いを調べるために、マグネシウム-オキシンのキレートの熱分解が始まると思われる 300°C 前後の温度で1時間から6時間熱処理し、さらに残留炭素を除くため 1100°C で1時間焼成したのち、その重量を測定し、収率を求めた。その結果を図3に示す。予想どおり各熱処理時間に対して収率が最高となる温度が存在した。熱分解時間の短い場合には収率のピーク値でも100%に達しなかった。処理時間を長くすると収率は上昇し、また収率が最大となる温度も低温側に移動した。6時間熱処理した場合に収率がほぼ100%になる温度が存在した。この結果からキレートを 250°C で6時間熱分解を行なったのちに 1100°C で焼成すれば、原料中のマグネシウムの損失を防ぐことができることがわかる。

つぎに Mg^{2+} と Ta^{5+} の両方を含む混合溶液からそれらを完全に沈殿させるのに必要なオキシンの検出結果を図4に示す。 Mg^{2+} と Ta^{5+} のモル比はBMTの合成に必要なとされる1:2とし、その混合溶液の一定量を種々の量のオキシンの含む溶液に滴下し、得られた沈殿を 250°C で6時間熱分解したのち、 1100°C で1時間焼成して MgTa_2O_6 としてその収率を求めた。オキシンの

Fig. 5 Relation between firing temperature for Mg^{2+} , Ta^{5+} -8-quinolinol chelate and weight of fired powder (normalized to a value of 100 for starting material)

は MgTa_2O_6 組成に換算して約3倍のモル数を用いれば収率が100%となることわかる。ここで要したオキシンの量は図2で収率が一定量に達するときのオキシンの量と一致していることは注目に値する。このことは用いたオキシンの Mg の沈殿にだけ使われていることを示している。したがって、タンタルは水酸化物の形で沈殿しているものと考えられる。

Mg^{2+} と Ta^{5+} の塩酸溶液をオキシンの溶液に加えて得られたキレート沈殿物をろ過、洗浄後 100°C で2時間乾燥させた試料を一定量とり、種々の温度で1時間焼成したのちの重量を測定した。図5にその結果を示す。縦軸は熱分解前の重量を100としたときの焼成後の重量で表わしている。 200°C までの変化は吸着している水分の蒸発によるものと考えられる。 250 から 600°C までの重量変化はオキシンの熱分解によるものと考えられる。 250°C 以下の焼成温度では試料は暗黄色であったが焼成温度が高くなるにつれ、こげ茶、黒、灰色へと変化した。このとき、試料の融解はまったく見られなかった。熱分解時に試料の融解が起こると偏析などにより試料の均一性が失われるおそれがあるが、この試料ではその問題はないことになる。 600 から 700°C の間の焼成では試料はやや灰色がかかっていてわずかながら炭素分が残留している様子が見える。 700 と 750°C の間に重量変化があるが、これは残留炭素の燃焼によるものと考えられる。 750°C 以上で焼成した試料は完全に白色であった。したがって 750°C 以上で1時間焼成した試料は炭酸バリウムとの調合のさい、完全な酸化物として扱えることがわかる。

マグネシウムとタンタルのキレート沈殿物を洗浄、乾燥後 250°C で6時間熱分解処理を行なったものについて、種々の温度で1時間焼成して現われる相をX線回折により調べた。図6にその結果を示す。縦軸は各相の主要なピークのバックグラウンドからの高さで示した。 700°C 以下の焼成ではピークは現われず、非晶質状態であると考えられる。焼成温度が 700°C を超えると Ta_2O_5 と MgTa_2O_6 の相が現われた。 MgO のピークは観察されなかった。 Ta_2O_5 は $750\sim 1000^\circ\text{C}$ の焼成温度範囲で現われていた。 1100°C での焼成では MgTa_2O_6 の単一相となった。

マグネシウムとタンタルのオキシンのキレート沈殿物を

Fig. 6 Phase composition vs. firing temperature for Mg^{2+} , Ta^{5+} —8-quinolinol chelate

□ : MgTa_2O_6 , ■ : Ta_2O_5

250°C で6時間熱分解後、1100°C で1時間焼成して得られた MgTa_2O_6 を用い、これと等モルの BaCO_3 とを混合し、焼成することにより BMT を合成する方法を試みた。まず、この混合物の焼成にともなう相変化を調べるため、この混合物を種々の温度で1時間焼成後、X線回折測定を行ない、現われた相のピーク高を測定した。図7にその結果を示す。原料混合物中には MgTa_2O_6 と BaCO_3 の相のみが存在した。700°C 付近から BMT が生成し始めた。高温になるにしたがい原料のピークは単調に減少し、そ

Fig. 7 Crystalline phases vs. firing temperature for a mixture of BaCO_3 and MgTa_2O_6 prepared by using 8-quinolinol

□ : MgTa_2O_6 , ● : BaCO_3 , ○ : BMT

れにともない BMT のピークが増大した。1300°C では単一相の BMT が得られた。中間生成物は生じなかった。

図8に BaCO_3 とオキシンのによる MgTa_2O_6 との混合物を1300°C で1時間焼成して得られた BMT のX線回折図形 ($\text{CuK}\alpha$) を示す。白丸印は JCPDS カード (18-176) による BMT のピーク位置である。単一相の BMT が得られていることがわかる。

Fig. 8 XRD Pattern ($\text{CuK}\alpha$) of the product obtained by firing a mixture of BaCO_3 and MgTa_2O_6 prepared by using 8-quinolinol at 1300°C for 1 h

Fig. 9 XRD Pattern ($\text{CuK}\alpha$) of the product obtained by firing a mixture of BaCO_3 , MgO , and Ta_2O_5 at 1300°C for 1 h

○ : Peak of BMT, △ : Peak of BaTa_2O_6

Fig. 10 XRD Pattern ($\text{CuK}\alpha$) of the product obtained by firing a equimolar mixture of BaCO_3 and Ta_2O_5 at 1300°C for 1 h

Fig. 11 Crystalline phases vs. firing temperature for a mixture of BaCO_3 , MgO and Ta_2O_5

●: BaCO_3 , ▲: MgO , ■: Ta_2O_5 , △: BaTa_2O_6 , ○: BMT

Fig. 12 Phase composition vs. firing temperature for a mixture of MgO and Ta_2O_5

▲: MgO , ■: Ta_2O_5 , □: MgTa_2O_6

比較のため、従来方法である BaCO_3 , MgO , Ta_2O_5 の三者の混合物の焼成による BMT の生成についても検討した。図 9 に 1300°C 1 時間焼成後の粉末 X 線回折図形を示す。オキシンの用いた方法では、この焼成条件で単一相の BMT が得られているのに対し、この試料は単一相とはなっていない。図中白丸印は BMT のピークであるが三角印は副生成物である。このピークに対応する化合物は JCPDS カード中に見あたらないが、 BaCO_3 と Ta_2O_5 粉末を 1:1 で混合して 1300°C 1 時間焼成して得られた粉末のピークに一致している。その X 線回折図形を図 10 に示す。 BaCO_3 と Ta_2O_5 の混合割合を変えた場合、このほかのピークが出現し、ここに現われているピーク高さの比は変化しないことから、図 10 は単一相のピークであると考えられる。ここでは原料の Ba と Ta の比からこの相が BaTa_2O_6 の相であるとしておく。なお、JCPDS カード中の BaTa_2O_6 のデータ (17-793, 20-146, 20-147, 20-821) は図 10 の X 線回折図形に一致しない。

炭酸バリウム、酸化マグネシウム、酸化タンタルの三者の混合物の焼成温度と生じる相との関係を図 11 に示す。焼成時間は 1 時間とした。BMT の生成し始める温度はオキシンの用いた方法の場合 (図 7) とさほど変わらないが、 BaTa_2O_6 が中間生成物として生じている。オキシンの用いた方法で単一相の BMT の得られた 1300°C 1 時間の焼成でもかなりの量の BaTa_2O_6 が残っ

ていることがわかる。

オキシンの用いた方法ではマグネシウムとタンタルのキレート沈殿物を酸化物の形にするためにそれらをあらかじめ焼成していることに注目すると、乾式法においても MgO と Ta_2O_5 の混合物をあらかじめ焼成した場合についても検討比較してみる必要がある。そこでまず MgO と Ta_2O_5 の混合物を種々の温度で 1 時間焼成したときの相の変化について調べた。図 12 にその結果を示す。これまでの図と同様、相の量は X 線回折ピークの高さで示してある。 700°C 近くから MgO と Ta_2O_5 が反応して MgTa_2O_6 が生成し始めた。 MgO のピークは最初から小さく 900°C で見えなくなった。しかし、 Ta_2O_5 はキレートの熱分解の場合 (図 6) と異なり 1100°C でも残留している。つぎにこの 1100°C で 1 時間焼成して得られた MgTa_2O_6 と Ta_2O_5 の相が混在する粉末と BaCO_3 との反応を検討した。図 13 にその結果を示す。 MgO と Ta_2O_5 をあらかじめ焼成しなかった場合 (単純な乾式法, 図 11) に比較して中間生成物 BaTa_2O_6 の量は少なくなっていることがわかる。しかし、オキシンの用いた場合ほどは改良されてはいない。

これら三つの結果をまとめるとつぎのようになる。(1) オキシンの用いた場合には BaCO_3 と MgTa_2O_6 との反応となり、中間生成物となる BaTa_2O_6 は生じなかった。(2) MgO と Ta_2O_5 をあらかじめ焼成したものと BaCO_3 との反応では原料の

Fig. 13 Phase composition vs. firing temperature for a mixture of BaCO_3 and a product obtained by firing a mixture of MgO and Ta_2O_5 at 1100°C for 1 h

● : BaCO_3 , ■ : Ta_2O_5 , □ : MgTa_2O_6 , △ : BaTa_2O_6 , ○ : BMT

Fig. 14 Crystalline phases vs. firing temperature for a mixture of BaCO_3 and a product obtained by firing a Mg^{2+} , Ta^{5+} -8-quinolinol chelate at 800°C for 1 h

● : BaCO_3 , ■ : Ta_2O_5 , □ : MgTa_2O_6 , △ : BaTa_2O_6 , ○ : BMT

相は BaCO_3 , MgTa_2O_6 , Ta_2O_5 であって中間生成物 (BaTa_2O_6) が若干生成していた。(3) 単純な乾式法では原料中の相は BaCO_3 , MgO , Ta_2O_5 であり中間生成物はずっとも多く生成した。これらを総合して考えると、オキシンをを用いた方法で中間生成物が生じなかったのはマグネシウムとタンタルが完全に MgTa_2O_6 の形になっていたためであると推測される。

ところで、オキシンをを用いた場合でも沈殿物の熱分解後の焼成温度が低ければ、その粉末は MgTa_2O_6 と Ta_2O_5 の混在であった(図 6)。上の推測が正しいのならば、これを用いた場合には中間生成物が生じてしまう可能性がある。図 14 に、マグネシウムとタンタルのキレート沈殿物を 250°C で 6 時間熱分解後 800°C で 1 時間予備焼成したものと BaCO_3 との混合物の焼成温度と存在する相との関係を示す。焼成前の混合物は BaCO_3 , MgTa_2O_6 , Ta_2O_5 の相からなっている。この系においても BaTa_2O_6 が副生していることがわかる。以上のことから原料中のマグネシウムと

タンタルは別々の酸化物として用いるよりも、 MgTa_2O_6 の形の化合物にして用いた方が中間生成物の生成をおさえることができ、低い温度で単一相の BMT が得られることがわかる。

4 結 論

MgTa_2O_6 をオキシンをを用いて調製し、これと炭酸バリウムとの固体間反応で BMT を合成する方法を開発した。通常行なわれている炭酸バリウム、酸化マグネシウム、酸化タンタル(V)の三者の反応では BaTa_2O_6 が中間生成物として生じてしまい、単一相の BMT が 1100°C 以下の反応温度で得難いのに対して、新しい方法では、中間生成物の生成なしに目的の BMT を得ることができた。中間生成物の生成を防ぐためには、原料中のマグネシウムとタンタルが一つの相すなわち MgTa_2O_6 となっていることが望ましいことがわかった。

Synthesis of $\text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$ by Using 8-Quinolinol

Kazuyuki KAKEGAWA*, Tsuyoshi WAKABAYASHI** and Yoshinori SASAKI

Faculty of Engineering, Chiba University; Yayoi-cho,
Chiba-shi 260 Japan

** Present address: Tokyo Electron Ltd.; Kitagejoh Fujii-machi,
Nirasaki-shi 407 Japan

A new method (chelate method) was developed to synthesize a ceramic material, $\text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$ (BMT), by use of an organic chelating reagent, 8-quinolinol. A solution containing magnesium and tantalum ions was added to an aqueous ammonia solution of 8-quinolinol to make a precipitate of chelate. This precipitate was thermally decomposed and mixed with an equimolar amount of barium carbonate. The mixture was fired at elevated temperatures, resulting in BMT. Evaporation of the Mg-8-quinolinol chelate took place when the precipitate of chelate was simply fired at 1100°C . This evaporation problem was solved by heat pretreatment at 250°C for 6 hours prior to the firing at 1100°C . When the solid state reaction took

place among three elementary components: barium carbonate, magnesium oxide and tantalum oxide, an intermediate product, BaTa_2O_6 , was formed during the firing process. Single phase BMT was not obtained even when the mixture involving the above three components was fired at 1300°C for 1 h. By the chelate method, on the contrary, single phase BMT was formed directly without any intermediates at the same firing conditions. The formation of a single compound, viz. MgTa_2O_6 , containing both magnesium and tantalum is preferable before the reaction with barium carbonate in order to produce BMT without formation of any intermediates.