

90.6.1 修正  
 補充

88.9.9 案號：88115560

H01B 3/12, H01G 4/30

(以上各欄由本局填註)

公告本

發明專利說明書

469445

一、發明名稱	中文	介電陶瓷組合物及積層陶瓷零件
	英文	DIELECTRIC CERAMIC COMPOSITION AND LAMINATED CERAMIC PARTS
二、發明人	姓名(中文)	1. 的場 弘明 2. 佐野 晴信
	姓名(英文)	1. HIROAKI MATOBA 2. HARUNOBU SANO
	國籍	1. 日本 2. 日本
	住、居所	1. 日本國京都府長岡京市天神二丁目26番10號村田製作所股份有限公司內 2. 日本國京都府長岡京市天神二丁目26番10號村田製作所股份有限公司內
三、申請人	姓名(名稱)(中文)	1. 日商村田製作所股份有限公司
	姓名(名稱)(英文)	1. MURATA MANUFACTURING CO., LTD.
	國籍	1. 日本
	住、居所(事務所)	1. 日本國京都府長岡京市天神二丁目26番10號
	代表人姓名(中文)	1. 村田 充弘
代表人姓名(英文)	1. MICHIHIRO MURATA	



本案已向

國(地區)申請專利	申請日期	案號	主張優先權
日本 JP	1998/09/11	特願平10-258052	有
日本 JP	1999/08/19	特願平11-232957	有

有關微生物已寄存於

寄存日期

寄存號碼

無



## 五、發明說明 (1)

## 發明之背景

## 1. 發明之領域

本發明係關一種溫度補償的介電陶瓷組合物與積層陶瓷零件如積層的陶瓷電容器與積層的LC濾波器，各用此一溫度補償的介電陶瓷組合物製作。

## 2. 相關技術之說明

慣例在各種電子裝置內曾用溫度補償的陶瓷電容器作廣泛利用之電子零件以達成所須調諧與振盪等。同時曾經要求製作溫度補償陶瓷電容器緊密大小，應使其介電質損失小且其介電性穩定。另一方面，由於介電陶瓷零件能滿足以上需要，曾期求其應有大相對介電常數及小介電損失（即其Q值大）而體積尺寸則須小。

因上述所須之此種介電陶瓷，曾經提議一系列的BaO-TiO<sub>2</sub>介電陶瓷組合物[H. M. O'Brayan, J. Am. Ceram. Soc. 57 (1974) 450；日本審查專利刊物58-20905]。用此等介電陶瓷組合物的積層陶瓷電容器雖已實用，但製造此項產品中涉及之燒結溫度高達1300至1400℃，其內部電極必須用能耐高溫的貴金屬如鈦(Pd)及鉑(Pt)製作。

另一方面，有些其他介電陶瓷組合物容許在其製程期間於較低溫度燒結，日本公開專利刊物8-239262號主張一種介電陶瓷組合物含BaO-TiO<sub>2</sub>-Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>作其主組份及一PbO-V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>玻璃作添加劑。相同目的之日本公開專利刊物9-71462發表另一介電陶瓷組合物含BaO-TiO<sub>2</sub>-Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>作其主組份，亦含一添加劑即有500℃以下軟化點的PbO-ZnO-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>玻璃。



## 五、發明說明 (2)

不過，如上所述，因其期使日本公開專利刊物8-239262與9-71462等號內發表之介電陶瓷組合物於製程期間能在較低溫燒結，各介電陶瓷組合物經摻合一含氧化鉛組份的玻璃形成。

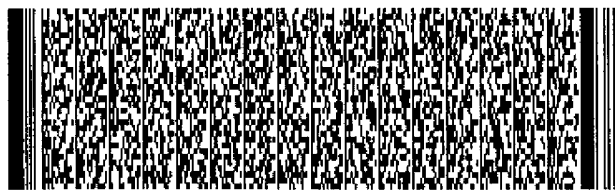
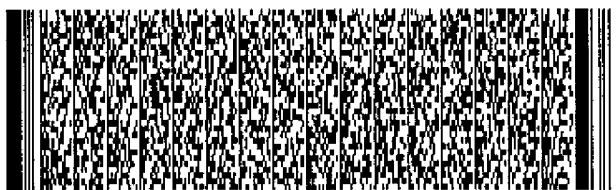
雖然為此，因氧化鉛組份於燒結處理期間有高揮發性，在玻璃製程中及陶瓷燒結製程中，氧化鉛含量將每批不同，甚至在同一批的不同部分有別。其結果曾有所得陶瓷性質不穩定之問題。

## 發明之概要

本發明之目的在提供一種改良的溫度補償介電陶瓷組合物及積層陶瓷零件如積層的陶瓷電容器與積層的LC濾波器，各用具高相對介電常數與高Q值之此項溫度補償介電陶瓷組合物製作，並容許於其製造過程期間在相對低溫時燒結，於燒結處理期間不引起陶瓷性質上任何不當變化。

為達到以上目的，本發明的介電陶瓷組合物含100份重量由 $x\text{BaO}-y\text{TiO}_2-z\text{Re}_2\text{O}_3$ 式(其中 $x+y+z=100$ ，Re為至少一種稀土元素)代表之主組份，有BaO， $\text{TiO}_2$ 與 $\text{Re}_2\text{O}_3$ 的莫耳成份比如圖1之三元組份圖所示，由A點(39.5, 59.5, 1)，B點(1, 59.5, 39.5)，C點(1, 85, 14)與D點(14, 85, 1)圍繞指出；25份重量以下的第一副組份 $\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 玻璃(但不含氧化鉛)；至少一種選自氧化鈮及氧化鎢之第二副組份，呈 $\text{V}_2\text{O}_5$ 式的氧化鈮含量為重量比10份以下， $\text{WO}_3$ 式的氧化鎢含量為重量比20份以下。

此外，本發明之另一介電陶瓷組合物含100份重量由一 $x(\text{Ba } \alpha \text{Ca } \beta \text{Sr } \gamma)\text{O}-y[(\text{TiO}_2)_{1-n}(\text{ZrO}_2)_n]-z\text{Re}_2\text{O}_3$ 式之主組份



## 五、發明說明 (3)

(其中  $x+y+z=100$ ,  $\alpha+\beta+\gamma=1$ ,  $0 \leq \beta+\gamma < 0.8$ ,  $0 \leq m < 0.15$ , 但不包括其  $\beta+\gamma=0$  及  $m=0$  之情況; Re 為至少一項稀土元素), 有一莫耳成分比  $(Ba \alpha Ca \beta Sr \gamma)$

$0, [(TiO_2)_{1-m}(ZrO_2)_m]-Re_2O_3$  之  $\{(Ba \alpha Ca \beta Sr \gamma)O, [(TiO_2)_{1-m}(ZrO_2)_m], Re_2O_3\}$  表現於圖2的三元成分圖內, 由A點(39.5, 59.5, 1), B點(1, 59.5, 39.5), C點(1, 85, 14)與D點(14, 85, 1)圍繞的區域指示; 25份重量以下一種  $B_2O_3$

- $SiO_2$  玻璃(但不含氧化鉛)之第一副組份; 一項第二副組份係至少一種選自氧化鈮與氧化鎢中的物質, 呈  $V_2O_5$  式之氧化鈮含量為重量比10份以下, 呈  $WO_3$  式之氧化鎢含量為重量比20份以下。

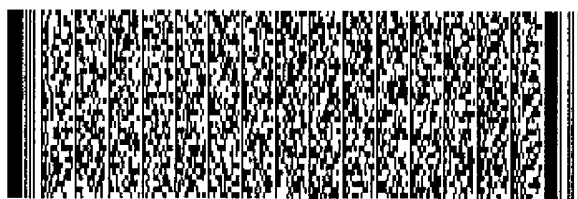
而且, 本發明介電陶瓷組合物除以上第一與第二副組份外又含第三副組份為氧化銅以  $CuO$  式相對主組份100份重量之10份以下重量添加。

加之, 本發明之介電陶瓷組合物在上述第一與第二副組份外, 或上述第一、第二及第三副組份外, 又含一第四副組份即呈  $MnO$  式的氧化錳添加相對100份重量主組份20份以下之量。

此外, 本發明的積層陶瓷零件包括許多介電陶瓷層, 介電陶瓷層間形成內部電極, 外部電極與該等內部電極電聯, 特徵在該介電陶瓷層係由上文任一節中詳述的介電陶瓷組合物製作, 內部電極等係經  $Cu$  或  $Ag$  作其主組份形成。

雖然如此, 本發明討論之稀土元素等為  $La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb$  或  $Lu$ 。

圖之簡述



## 五、發明說明 (4)

圖1係三元成分圖( $BaO$ ,  $TiO_2$ ,  $Re_2O_3$ )指示本發明組合物內所含主組份的較佳範圍。

圖2為三元成分圖 $\{(Ba \alpha Ca \beta Sr \gamma)O, [(TiO_2)_{1-m}(ZrO_2)_m], Re_2O_3\}$ 指示本發明組合物內所含主組份之較佳範圍。

圖3係一截面剖視圖示意指示根據本發明一具體例所製一積層陶瓷電容器。

圖4為一平視圖示意指示介電陶瓷層帶一內部電極，乃圖3積層陶瓷電容器的一部分。

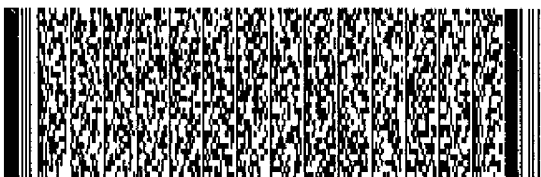
圖5係一分解透視圖示意指示形成積層結構之數陶瓷層，乃圖3積層陶瓷電容器的一部分。

## 較佳具體例之說明

起始可作說明以詳解根據本發明第一具體例所製積層陶瓷電容器之基本結構，參考附圖。圖3為一截面剖視圖示意指示本發明一積層陶瓷電容器實例。圖4係一平視圖示意指示介電陶瓷層有一內部電極，乃圖3積層陶瓷電容器的一部分。圖5為一分解透視圖示意指示用以製作圖3積層陶瓷電容器之積層陶瓷層。

根據本具體例所製圖3內表現的積層陶瓷電容器1係由許多介電陶瓷層2a, 2b連同其中形成之幾具內部電極4積層所得的平行裝置之陶瓷積層體3。陶瓷積層體3的任一端面上製有外部電極5其設置之方式在使其電聯至幾個特定內部電極。又如必要，任一外部電極5上亦製作一第一鍍層6與一第二鍍層7。

上述積層陶瓷電容器1之製法以下將按其製法程序說明。



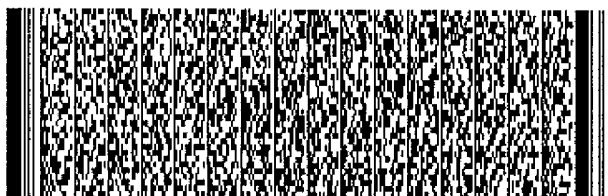
## 五、發明說明 (5)

首先，秤出幾種製作介電陶瓷層2a與2b之原料粉製備。即準備能用以製作介電陶瓷組合物的原料粉。此等原料粉包含主組份為 $BaO-TiO_2-Re_2O_3$ （但亦包括一種情況其中Ba曾經Ca或Sr置換者及一種情況其中 $TiO_2$ 已由 $ZrO_2$ 置換者），一種第一副組份係 $B_2O_3-SiO_2$ 玻璃（但不含氧化鉛），一種第二副組份係選自氧化釩與氧化鎢中的至少一項。較佳亦希望準備製作介電陶瓷組合物之原料粉，此等原料粉另含一種第三副組份即氧化銅或第四副組份即氧化錳。

其次，以上原料粉內加一種有機結合劑作成淤漿隨後製作一片遂得製作介電陶瓷層2a與2b適用的坯片。其後，如圖4所示在坯片之一面上製一含Cu或Ag作其主組份的內部電極4，後來形成介電陶瓷層2b。不過，亦容許採用某些其他方法如網板印刷、蒸汽澱積或電鍍等方法製作內部電極4。

隨後如圖5所示許多供製作介電陶瓷層2b及其上製作各有一內部電極4的坯片佈置成圖中所示狀況層積。於是，此等坯片經排列使在另二坯片間加壓後製成介電層2a其各層不帶內部電極而得一坯片積層體。然後於預定溫度燒結坯片積層體遂得圖3所示之陶瓷積層體3。

再次，在陶瓷積層體3的任一末端面上形成一外部電極5製成一種樣式使其電聯至內部電極4。此處，作為製作外部電極5之材料得用製作內部電極4用的相同材料。例如可用銀-鈦合金。另亦可用含此項合金粉作主組份與作添加劑用可係 $B_2O_3-SiO_2-BaO$ 玻璃或 $Li_2O-SiO_2-BaO$ 等之玻璃原料的混合物。此外，製作外部電極5之材料亦可適當考慮將



## 五、發明說明 (6)

在何處及如何利用此積層陶瓷電容器作選擇。而且，以一金屬粉糊塗覆燒結的陶瓷積體3繼以烘焙處理亦可作成一外部電極5。不過鑑於製作此項電極之特殊材料，亦能塗敷以上金屬粉糊於坯片積層體後燒結處理，於是可在製作陶瓷積層體3的剛好同時作成電極5。

隨後，每一外部電極5的表面藉電鍍處理以鎳或銅覆蓋而作第一鍍層6。最後在第一鍍層6上作鉍劑或錫之第二鍍層7，於是製得積層陶瓷電容器1成完全產品。不過，若得於積層陶瓷電容器的實際用途及其使用之實在位置觀察亦能以製作導電層的方法實行在每一外部電極5之表面上作鍍覆處理。

如此，本發明陶瓷組合物作積層陶瓷電容器的介電材料用得以在低於Cu或Ag熔點的溫度燒結。而且如此所得陶瓷其相對介電常數為40，在1 MHz條件下其Q值為1000以上，125 °C溫度時其電阻率為 $10^9$ 。此外作一副組份用陶瓷組合物內亦可加預定量之氧化銅或氧化錳，藉以更提高Q值。

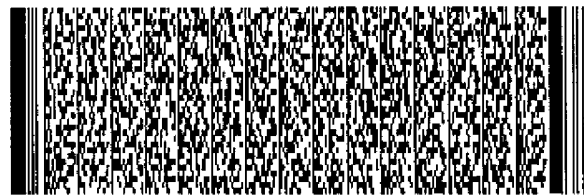
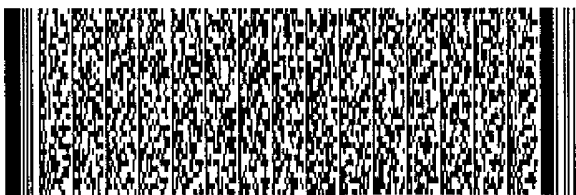
## 實例

以下根據數例較詳說明本發明。

## (實例1)

本發明一介電陶瓷組合物及用此介電陶瓷組合物製作之陶瓷電容器依以下程序製備。

起初製備始原料包括碳酸鋇( $\text{BaCO}_3$ )，碳酸鈣( $\text{CaCO}_3$ )，碳酸鋇( $\text{SrCO}_3$ )，氧化鈦( $\text{TiO}_2$ )，氧化鋯( $\text{ZrO}_2$ )，稀土氧化物( $\text{Re}_2\text{O}_3$ )，氧化釩( $\text{V}_2\text{O}_5$ )，氧化鎢( $\text{WO}_3$ )，氧化銅( $\text{CuO}$ )及碳酸錳( $\text{MnCO}_3$ )。



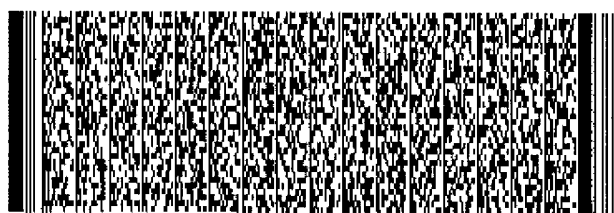
## 五、發明說明 (7)

然後，秤取上述始原料之粉狀物，其重量在獲得表1至4內所示不同組合物(但不含作第一副組份之玻璃組份)。於是將此等原料粉與乙醇移入球磨機，以濕式一齊混合16小時，繼於1040°C溫度經預燒結處理而得預燒結之粉料。不過一起作第二副組份用的 $V_2O_5$ 與 $WO_3$ 含量，作第三副組份用之 $CuO$ 含量，作第四副組份用的 $MnO$ 含量均以每百份重量之主組份的"重量份數"呈現，主組份為 $xBaO-yTiO_2-zRe_2O_3$ 或 $\{x(Ba \alpha Ca \beta Sr \gamma)O, -y[(TiO_2)_{1-m}(ZrO_2)_m]-zRe_2O_3\}$ (但亦包含一種情況其中 $\beta + \gamma = 0$ 或 $m = 0$ 者)。又表1至4中有\*號的試樣編號為本發明領域外之範圍內者，而其無\*號者則屬本發明領域範圍內者。

此外，作第一副組份的一類 $B_2O_3-Si_2O$ 玻璃粉製備有550°C軟化點，可另由41.4  $B_2O_3$ -29.5  $Li_2O$ -25.2  $SiO_2$ -3.9  $MnO$ 代表(但此等數字因子均重量%式計)。

按照表1至4內所示百分率秤取以上玻璃粉及上述預燒結粉重量。於是加聚乙烷基縮丁醛溶液，與粉一起混合得淤漿後將所得漿用刮刀法作成片而得厚50  $\mu m$ 之坯片。另一方面、玻璃含量以每百份主組份之"重量份數"代表，主組份為 $xBaO-yTiO_2-zRe_2O_3$ 或 $\{x(Ba \alpha Ca \beta Sr \gamma)O-y[(TiO_2)_{1-m}(ZrO_2)_m]-zRe_2O_3\}$ (但亦包含其中 $\beta + \gamma = 0$ 或 $m = 0$ 之情況)。

其次，將許多此項坯片層積一起，緊壓再打孔，遂得許多圓片各有14 mm直徑及0.5 mm厚。然後將所得之片於350°C溫度接受熱處理以除脫結合劑，又於表5至8內所示溫度在 $H_2-N_2-H_2O$ 氣體組成的還原氣氛中燒結，遂得圓碟狀陶瓷片。其後，如此所得碟狀陶瓷片之兩面各塗覆一種In-Ga



## 五、發明說明 (8)

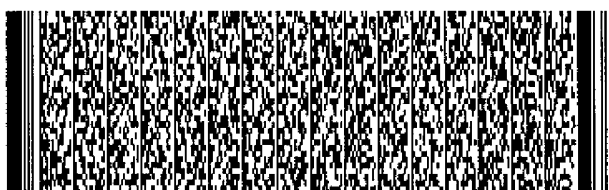
電極物質使作陶瓷電容器。

於是測量陶瓷電容器之電性質。詳言之、靜電容與 $Q$ 於1 MHz及1 V<sub>rms</sub>之條件下測量。又陶瓷電容器試樣經測得其直徑(D)與厚度(T)，按其靜電容而得相對介電常數( $\epsilon_r$ )。此外，在溫度125 °C，外施電壓250V保持1分鐘的情況下測量電阻率。以上測量結果表現於表5至8。但表5-8中有\*號之試樣編號不屬本發明領域範圍內，而其無\*號者則在本發明領域範圍內者。

自表1與表5可顯知試樣編號1-13, 19, 20, 23-25, 27-29的各陶瓷含主組份 $x\text{BaO}-y\text{TiO}_2-z\text{Re}_2\text{O}_3$ ，第一副組份為 $\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 玻璃(惟不含氧化鉛)與一第二副組份係選自氧化釩及氧化鎢中之至少一種物質。由此可得40以上的相對介電常數，1,000以上之 $Q$ 值 $10^9 \Omega\text{m}$ 以上的電阻率，並可於比銅的熔點(1083 °C)較低之溫度1060 °C燒結。

又自表2與表6可顯知試樣編號31-42, 48, 49, 52-54, 56-58, 60, 61, 63, 64之陶瓷各含由 $\{x(\text{Ba } \alpha \text{ Ca } \beta \text{ Sr } \gamma)\text{O}-y[(\text{TiO}_2)_{1-m}(\text{ZrO}_2)_m]-z\text{Re}_2\text{O}_3\}$ 代表的主組份(但亦包括其中 $\beta + \gamma = 0$ 或 $m = 0$ 之情況而不包括其中 $\beta + \gamma = 0$ 及 $m = 0$ 的情況)，一第一副組份為 $\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 玻璃(但不含氧化鉛)與一第二副組份係選自氧化釩及氧化鎢中之至少一項物質。由此，可得40以上的相對介電常數，1000以上之 $Q$ 值，溫度125 °C時 $10^9 \Omega\text{m}$ 以上的電阻率，並可於比銅熔點(1083 °C)低之溫度1060 °C燒結。

此外，如表3與表7的試樣66, 67號及表4與表8之試樣83-87與93-97內，若一陶瓷含一主組份，一第一副組份與



## 五、發明說明 (9)

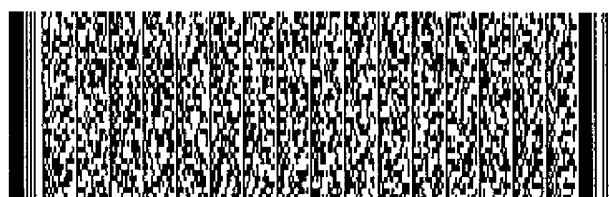
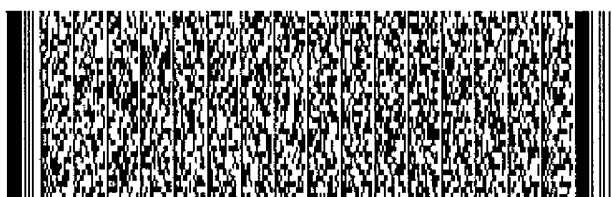
一 第二副組份，另含第三副組份為氧化銅及第四副組份係氧化錳時可容許降低燒結處理的溫度並提升Q值。又因組合物中不含易蒸發之氧化鉛組份，可能抑制陶瓷性質內不當變異，否則其變異有可能在燒結處理期間發生。

在此提出幾項原因解釋何以本發明組合物應限制於上述方式。

如表1與表5試樣14至17號所示，當主組份( $x\text{BaO}-y\text{TiO}_2-z\text{Re}_2\text{O}_3$ )在圖1三元成分圖由A點(39.5, 59.5, 1)，B點(1, 59.5, 39.5)，C點(1, 85, 14)與D點(14, 85, 1)圍繞的面積以外時，又如表2及表6試樣43-46所示，當主組份 $\{x(\text{Ba } \alpha \text{Ca } \beta \text{Sr } \gamma)\text{O}-y[(\text{TiO}_2)_{1-m}(\text{ZrO}_2)_m]-z\text{Re}_2\text{O}_3\}$ (但 $0 \leq \beta + \gamma < 0.8$ ， $0 \leq m < 0.15$ ，而不包括其中 $\beta + \gamma = 0$ 及 $m = 0$ 之情況)其BaO與 $\text{TiO}_2$ 已經Ca或Sr及 $\text{ZrO}_2$ 置換，在圖2三元成分圖由A點(39.5, 59.5, 1)，B點(1, 59.5, 39.5)，C點(1, 85, 14)及D點(14, 85, 1)圍繞之面積以外時，此等試樣的相對介電常數將小於40，其Q值將小於1000。因此，主組份較佳應有含量在圖1或圖2二者上由A, B, C, D點所圍繞的區域內。

表2與表6之試樣60與61號中若BaO為Ca或Sr置換一部分，則容許獲得效果可提升其相對介電常數。另一方面如在62號試樣內若氧化鈣與氧化鋇之總置換量即若 $\beta + \gamma$ 多於0.8，燒結性將不適當地低落而無法在低於Cu軟化點即 $1060^\circ\text{C}$ 溫度時完成燒結處理。因此， $\beta + \gamma$ 宜以小於0.8為佳。

又在63與64號試樣中若 $\text{TiO}_2$ 經 $\text{ZrO}_2$ 部分置換，則 $125^\circ\text{C}$ 溫



## 五、發明說明 (10)

度時電阻率將變大。另一方面試樣65號內若 $ZrO_2$ 取代量 $m$ 為0.15以上時，燒結性將不當降低而無法在銅軟化點即 $1060^\circ C$ 溫度以下完成燒結處理。所以 $ZrO_2$ 的置換量 $m$ 應在0.15下為宜。

再如在表1和表5的18號試樣中及表2與表6的47號試樣內若試樣不含第一副組份 $B_2O_3-SiO_2$ 玻璃，不可能於低於銅軟化點之 $1060^\circ C$ 溫度時達成燒結處理。另一方面如表5的試樣21號及表2與表6之試樣50中若 $B_2O_3-SiO_2$ 玻璃的含量超過重量比25份， $Q$ 值將小於1000， $125^\circ C$ 溫度時電阻率將低於 $10^9 \Omega m$ 。故此第一副組份 $B_2O_3-SiO_2$ 玻璃的含量較佳應在重量比25份以下。

此外，如表1與表5的試樣22號及表2與表6的試樣51號內若試樣不含氧化釩或氧化鎢之第二副組份，則無法在低於銅軟化點之溫度 $1060^\circ C$ 完成燒結處理。另一方面，如表1與表5的試樣26號及表2與表6的試樣55號，在其中 $V_2O_5$ 含量多過重量比10份之情況下及 $WO_3$ 含量多過重量比20份的情況下，如在表1與表5的試樣30號及表2與表6之試樣59號內，各案中 $Q$ 值小於1000， $125^\circ C$ 溫度時電阻率將在 $10^9 \Omega m$ 以下。為此，至少選自氧化釩與氧化鎢之一種物質的第二副組份含量較佳應如下，即 $V_2O_5$ 式之氧化釩含量應係重量比10份以下， $WO_3$ 式之氧化鎢含量應為重量比20份以下。

又如表3與表7之68號試樣及表4與表8之98號試樣內 $CuO$ 含量多於10份重量的情況下各案中 $Q$ 值小於1000， $125^\circ C$ 溫度時電阻率將低於 $10^9 \Omega m$ 以下。因此，第三副組份係氧



## 五、發明說明 (11)

化銅時其含量若以CuO式計應係10份重量以下為佳。

此外，如表4與表8試樣88號中MnO多於20份重量情況下，Q值小於1000，溫度125℃時電阻率低於 $10^9 \Omega m$ 。於是第四副組份氧化錳若以MnO式計其含量應在重量20份以下為佳。

## (實例2)

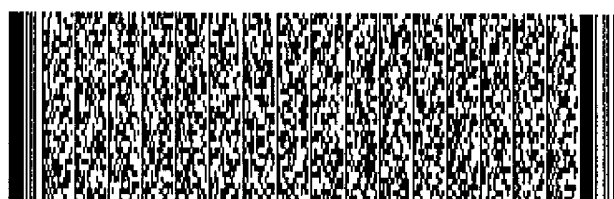
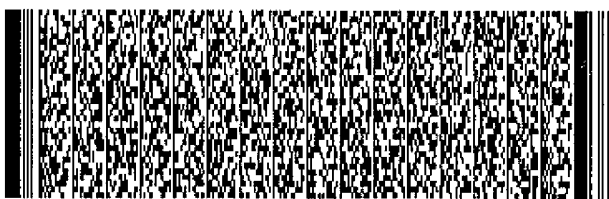
下文說明本發明根據具體例所製積層陶瓷電容器。

即準備起始原料包括碳酸鋇( $BaCO_3$ )，碳酸鈣( $CaCO_3$ )，碳酸鋇( $SrCO_3$ )，氧化鈦( $TiO_2$ )氧化鋯( $ZrO_2$ )，稀土氧化物( $Re_2O_3$ )，氧化釩( $V_2O_5$ )，氧化鎢( $WO_3$ )，氧化銅(CuO)及碳酸錳( $MnCO_3$ )。

然後秤取以上始原料粉重量俾得表9之101與103號試樣內幾種組合物(但不含 $B_2O_3-SiO_2$ 玻璃組份的第一副組份)。於是將此等原料粉與乙醇移進球磨機，濕態一起混合16小時，繼於溫度1040℃作預燒結處理而得預燒結的粉料。不過一起作第二副組份的 $V_2O_5$ 與 $WO_3$ 含量，作第三副組份之CuO含量，作第四副組份的MnO含量皆以每百份重量之主組份 $\{x(Ba \alpha Ca \beta Sr \gamma)O - y[(TiO_2)_{1-m}(ZrO_2)_m] - zRe_2O_3\}$ 中重量份數代表(亦包含其中 $\beta + \gamma = 0$ 或 $m = 0$ 之情況)。又表9內有\*號數的試樣係在本發明領域之範圍外者，而無\*號者則屬本發明領域範圍內。

又作第一副組份用製備一種 $B_2O_3-SiO_2$ 玻璃粉，即製備軟化點600℃的玻璃粉可用 $60BaO-15B_2O_3-5Li_2O-20SiO_2$ 代表(此等數字因子皆為重量%式)。

於是—起混合以上100份重量之預燒結粉及10份重量的



## 五、發明說明 (12)

上述玻璃粉與一聚乙烯縮丁醛溶液加入其中得一淤漿。後來用刮刀法將所得淤漿作成片狀而得坯片。

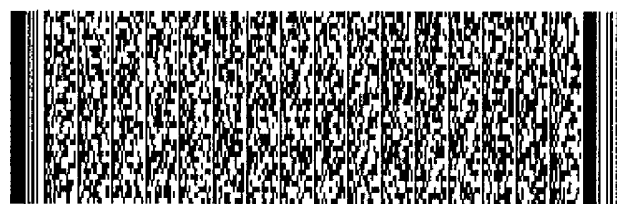
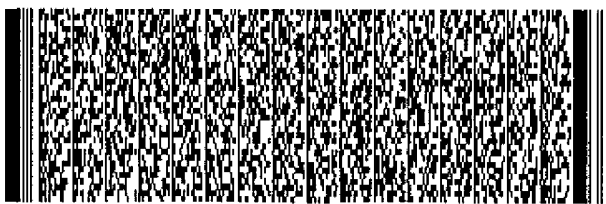
次之，在坯片上印刷含Cu作其主組份的導電糊使形成作內部電極之導電糊層。然後，其上每一已作成導電糊層的許多此種坯片一起以一種方式層疊使導電糊層在如此製作之積層物體的各末端面上交替暴露。又積層體之每末端面上導電糊層暴露者以含銅作其主組份的導電糊塗覆而得再處理之積層體。此外，如此所得的積層體於350°C溫度在N<sub>2</sub>氣氛中加熱而接受一預定熱處理以脫除前加之黏合劑。最後將已處理的積層體放進H<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O氣組成之還原氛圍中於1000°C溫度保持2小時進行預定燒結處理，遂得所求的積層陶瓷電容器。

如此所得積層陶瓷電容器有寬度1.6 mm長度3.2 mm及厚度1.2 mm。插入內部電極中間之各介電陶瓷層有6 μm厚度，有效介電陶瓷層總數合計150層。

此外，用介電物質製備幾種其他積層陶瓷電容器作對照例，成分在表9之102, 104號試樣中顯示。

即製備始原料包括碳酸鋇(BaCO<sub>3</sub>)，碳酸鈣(CaCO<sub>3</sub>)，碳酸鋇(SrCO<sub>3</sub>)，氧化鈦(TiO<sub>2</sub>)，氧化鋯(ZrO<sub>2</sub>)，稀土氧化物(Re<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)，氧化釩(V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>)，氧化鎢(WO<sub>3</sub>)，氧化銅(CuO)碳酸錳(MnCO<sub>3</sub>)，氧化硼(B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)與氧化矽(SiO<sub>2</sub>)。

隨後，秤取以上始原料粉重量俾得如表9之102與104號試樣內某些成分(但不含B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>與SiO<sub>2</sub>)。於是將此等原料粉與乙醇移入球磨機，濕式混合一起，繼於1040°C溫度作預燒結處理而得預燒結粉料。不過一起作第二副組份用的V



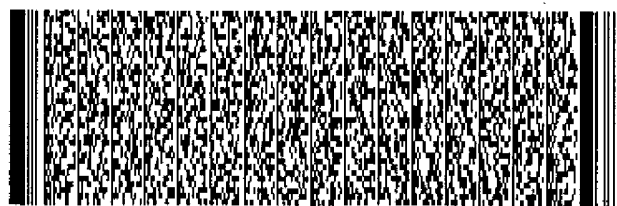
## 五、發明說明 (13)

$2O_5$  與  $WO_3$  含量，作第三副組份之  $CuO$  含量，作第四副組份的  $MnO$  含量均以每百份重量之主組份之重量份數比代表，主組份為  $\{x(Ba \alpha Ca \beta Sr \gamma)O - y[(TiO_2)_{1-m}(ZrO_2)_m] - zRe_2O_3\}$  (但亦包含其中  $\beta + \gamma = 0$  或  $m = 0$  情況)。

隨後，100份重量的上述預燒結粉，5份重量之氧化硼 ( $B_2O_3$ ) 及5份重量的氧化矽 ( $SiO_2$ ) 與加入之聚乙烯縮可醛溶液一起混和俾得一淤漿。如此所得淤漿於是用刮刀法製成片狀而得坯片。然後以前述101與103號試樣之相同方式製造積層陶瓷電容器。

其次，在以上製程中已得的表9內101至104號試樣之積層陶瓷電容器上進行防濕負載測試。詳言之，將電容器放在有2大氣壓力，100%相對濕度及121°C溫度的氛圍內。於是施加16V之直流電壓於電容器經連續250小時。測試期間當電容器的絕緣電阻變為  $1 \times 10^6 \Omega$  以下時測得有故障(缺點)。試驗結果表現於表10。不過，表10中有\*號的試樣係在本發明領域範圍外，而無\*號者則在本發明領域範圍內。

由表9與表10之101與103號試樣可顯知本發明含B組份與Si組份作玻璃組份的積層陶瓷電容器並不產生任何缺點，否則會在上述防濕負載測試期間發生，足證其有優越防濕性。對照下在102與104號試樣中發現不在本發明領域內之電容器含氧化硼 ( $B_2O_3$ ) 作組份及氧化矽 ( $SiO_2$ ) 作矽組份但不含玻璃組份者，於上述防濕負載測試期間曾產生幾種缺陷，因而並無優秀防濕性。此一事實證明  $B_2O_3-SiO_2$  玻璃之存在能提供改善防濕性之效用。



## 五、發明說明 (14)

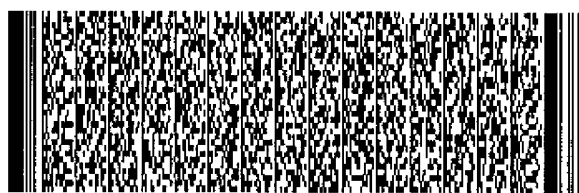
如上說明在前述具體例內碳酸鋇( $\text{BaCO}_3$ )，碳酸鈣( $\text{CaCO}_3$ )，碳酸鋇( $\text{SrCO}_3$ )，氧化鈦( $\text{TiO}_2$ )氧化鋯( $\text{ZrO}_2$ )，稀土氧化物( $\text{Re}_2\text{O}_3$ )，氧化釩( $\text{V}_2\text{O}_5$ )，氧化鎢( $\text{WO}_3$ )，氧化銅( $\text{CuO}$ )碳酸錳( $\text{MnCO}_3$ )僅一次在獨一作業中一齊混和後作預燒結處理。但亦可先混合碳酸鋇( $\text{BaCO}_3$ )，碳酸鈣( $\text{CaCO}_3$ )，碳酸鋇( $\text{SrCO}_3$ )，氧化鈦( $\text{TiO}_2$ )氧化鋯( $\text{ZrO}_2$ )及稀土氧化物( $\text{Re}_2\text{O}_3$ )於一起後繼經預燒結處理而得預燒結材料。隨後加氧化釩( $\text{V}_2\text{O}_5$ )，氧化鎢( $\text{WO}_3$ )，氧化銅( $\text{CuO}$ )及碳酸錳( $\text{MnCO}_3$ )於預燒結材料而得相同效果。

又，上述始材料包括碳酸鋇( $\text{BaCO}_3$ )，碳酸鈣( $\text{CaCO}_3$ )，碳酸鋇( $\text{SrCO}_3$ )，氧化鈦( $\text{TiO}_2$ )氧化鋯( $\text{ZrO}_2$ )，稀土氧化物( $\text{Re}_2\text{O}_3$ )，氧化釩( $\text{V}_2\text{O}_5$ )，氧化鎢( $\text{WO}_3$ )，氧化銅( $\text{CuO}$ )及碳酸錳( $\text{MnCO}_3$ )，但本發明應不限於此等化合物。事實上亦可用其他化合物包括 $\text{BaTiO}_3$ ， $\text{BaZrO}_3$ ， $\text{CaTiO}_3$ ， $\text{CaZrO}_3$ ， $\text{SrTiO}_3$ ， $\text{SrZrO}_3$ ， $\text{Re}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ (Re用以代表稀土元素)，或者容許利用一碳酸鹽，草酸鹽，氫氧化物及烷醇鹽等，而得相似效用性質。

而且，作為玻璃組份前已說明係 $\text{B}_2\text{O}_3$ - $\text{Li}_2\text{O}$ - $\text{SiO}_2$ - $\text{MnO}$ 玻璃粉，但玻璃組份應未必限於此一特殊物質。事實上亦可用含B組份與Si組份一齊作其主組份的玻璃，祇要是不含氧化鉛玻璃之 $\text{B}_2\text{O}_3$ - $\text{SiO}_2$ 系即可。

此外，若用上述電容器製作積層LC濾波器及類似應用，亦可獲得如前文具體例中所得的幾種優秀效果。

由上說明顯然可知用根據本發明所製介電陶瓷組合物得以於 $1060^\circ\text{C}$ 以下溫度進行燒結處理，獲得40以上的相對介



## 五、發明說明 (15)

電常數與1000以上之Q值，且具有高電阻率。加之，因無氧化鉛組份之揮發作用，確定產生有較均一性的介電陶瓷組合物。

因此，若用此項介電陶瓷組合物形成介電陶瓷層製造積層陶瓷電容器及積層LC濾波器及類似應用，得以利用某些較便宜電極材料如Cu與Ag，逐可能減低成本以製造積層陶瓷零件。



## 五、發明說明 (16)

[表1]

試樣 編號	$x\text{BaO}-y\text{TiO}_2-z\text{Re}_2\text{O}_3$				第一副組份	第二副組份	
	X	Y	Z	RE種類與莫耳比	$\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 玻璃	$\text{V}_2\text{O}_5$	$\text{WO}_3$
	(mol%)				重量份數		
1	6	68	26	Nd=100	10	1	0
2	6	68	26	Nd=100	10	0	1
3	6	68	26	Nd=100	10	0.5	0.5
4	6	68	26	Er/Pr=95/5	12	0.8	0
5	6	68	26	Er/Nd/Pr=90/5/5	12	0.8	0
6	6	68	26	Er/Nd/Pr=80/10/10	12	0.8	0
7	6	68	26	Er/Nd/Pr=70/15/15	12	0.8	0
8	6	68	26	Er/Nd/Pr=60/20/20	12	0.8	0
9	6	68	26	Er/La=95/5	18	0	1.5
10	6	68	26	Er/Nd/La=90/5/5	18	0	1.5
11	6	68	26	Er/Nd/La=80/10/10	18	0	1.5
12	6	68	26	Er/Nd/La=70/15/15	18	0	1.5
13	6	68	26	Er/Nd/La=60/20/20	18	0	1.5
*14	22	58	20	Nd/Sm/Ce=90/7/3	7	0.5	0.5
*15	0.5	73.5	26	Nd/Sm/Ce=90/7/3	7	0.5	0.5
*16	4	88	8	Nd/Sm/Ce=90/7/3	7	0.5	0.5
*17	29.5	70	0.5	Nd/Sm/Ce=90/7/3	7	0.5	0.5
*18	6	68	26	Nd/Sm/Ce=90/7/3	0	0.5	0.5
19	6	68	26	Nd/Sm/Ce=90/7/3	7	0.5	0.5
20	6	68	26	Nd/Sm/Ce=90/7/3	25	0.5	0.5
*21	6	68	26	Nd/Sm/Ce=90/7/3	30	0.5	0.5
*22	6	68	26	Nd/Sm/Ce=90/7/3	7	0	0
23	6	68	26	Nd/Sm/Ce=90/7/3	7	3	0
24	6	68	26	Nd/Sm/Ce=90/7/3	7	5	0
25	6	68	26	Nd/Sm/Ce=90/7/3	7	10	0
*26	6	68	26	Nd/Sm/Ce=90/7/3	7	15	0
27	6	68	26	Nd/Sm/Ce=90/7/3	7	0	5
28	6	68	26	Nd/Sm/Ce=90/7/3	7	0	10
29	6	68	26	Nd/Sm/Ce=90/7/3	7	0	20
*30	6	68	26	Nd/Sm/Ce=90/7/3	7	0	25



五、發明說明 (17)

試樣編號	x (Ba <sub>n</sub> Ca <sub>n</sub> Sr <sub>n</sub> ) <sub>1-x</sub> ·O-y [(TiO <sub>2</sub> ) <sub>1-m</sub> (ZrO <sub>2</sub> ) <sub>m</sub> ]-zRe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>				Y (mol%)	m	Z (mol%)	RE種類與莫耳比	第一組成份		第二組成份	
	X (mol%)	α	β	γ					B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SiO <sub>2</sub> 玻璃	重量份數	V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	WO <sub>3</sub>
31	14	0.7	0.1	0.2	72	0.03	14	Sm/Dy/Er=60/30/10	10	2	0	
32	14	1	0	0	72	0.04	14	Er/Nd/Sm=70/20/10	15	0	3	
33	6	1	0	0	80	0.02	14	Er/Pr=95/5	15	0.5	0	
34	6	1	0	0	80	0.02	14	Er/Sm/Pr=90/5/5	15	0.5	0	
35	6	1	0	0	80	0.02	14	Er/Sm/Pr=80/10/10	15	0.5	0	
36	6	1	0	0	80	0.02	14	Er/Sm/Pr=70/15/15	15	0.5	0	
37	6	1	0	0	80	0.02	14	Er/Sm/Pr=60/20/20	15	0.5	0	
38	6	1	0	0	80	0.02	14	Er/La=95/5	20	0	1	
39	6	1	0	0	80	0.02	14	Er/Sm/La=90/5/5	20	0	1	
40	6	1	0	0	80	0.02	14	Er/Sm/La=80/10/10	20	0	1	
41	6	1	0	0	80	0.02	14	Er/Sm/La=70/15/15	20	0	1	
42	6	1	0	0	80	0.02	14	Er/Sm/La=60/20/20	20	0	1	
*43	22	0.8	0.1	0.1	58	0.03	20	Nd/La=95/5	7	1	0.5	
*44	0.5	0.8	0.1	0.1	73.5	0.03	26	Nd/La=95/5	7	1	0.5	
*45	4	0.8	0.1	0.1	88	0.03	8	Nd/La=95/5	7	1	0.5	
*46	29.5	0.8	0.1	0.1	70	0.03	0.5	Nd/La=95/5	7	1	0.5	
*47	6	0.8	0.1	0.1	68	0.03	26	Nd/La=95/5	0	0.5	0.5	
48	6	0.8	0.1	0.1	68	0.03	26	Nd/La=95/5	7	0.5	0.5	
49	6	0.8	0.1	0.1	68	0.03	26	Nd/La=95/5	25	0.5	0.5	
*50	6	0.8	0.1	0.1	68	0.03	26	Nd/La=95/5	30	0.5	0.5	
*51	6	0.8	0.1	0.1	68	0.03	26	Nd/La=95/5	7	0	0	
52	6	0.8	0.1	0.1	68	0.03	26	Nd/La=95/5	7	3	0	
53	6	0.8	0.1	0.1	68	0.03	26	Nd/La=95/5	7	5	0	
54	6	0.8	0.1	0.1	68	0.03	26	Nd/La=95/5	7	10	0	
*55	6	0.8	0.1	0.1	68	0.03	26	Nd/La=95/5	7	15	0	
56	6	0.8	0.1	0.1	68	0.03	26	Nd/La=95/5	7	0	5	
57	6	0.8	0.1	0.1	68	0.03	26	Nd/La=95/5	7	0	10	
58	6	0.8	0.1	0.1	68	0.03	26	Nd/La=95/5	7	0	20	
*59	6	0.8	0.1	0.1	68	0.03	26	Nd/La=95/5	7	0	25	
60	6	1	0	0	68	0.03	26	Nd/La=95/5	7	0.5	0.5	
61	6	0.4	0.3	0.3	68	0.03	26	Nd/La=95/5	7	0.5	0.5	
*62	6	0.2	0.4	0.4	68	0.03	26	Nd/La=95/5	7	0.5	0.5	
63	6	0.8	0.1	0.1	68	0	26	Nd/La=95/5	7	0.5	0.5	
64	6	0.8	0.1	0.1	68	0.10	26	Nd/La=95/5	7	0.5	0.5	
*65	6	0.8	0.1	0.1	68	0.15	26	Nd/La=95/5	7	0.5	0.5	



五、發明說明 (18)

試樣編號	x (Ba <sub>a</sub> Ca <sub>g</sub> Si <sub>y</sub> ) <sub>0-y</sub> [(Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ) <sub>1-m</sub> (ZrO <sub>2</sub> ) <sub>m</sub> ]-zRe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>				Y (mol%)	m	Z (mol%)	RE種類與莫耳比	第一副組份 B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SiO <sub>2</sub> 玻璃	第二副組份 V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	第三副組份 WO <sub>3</sub>	第四副組份 CuO
	X (mol%)	α	β	γ								
66	6	1	0	0	68	0	26	Nd/Sm/Ce=90/7/3	7	0.5	0.5	3
67	6	1	0	0	68	0	26	Nd/Sm/Ce=90/7/3	7	0.5	0.5	10
*68	6	1	0	0	68	0	26	Nd/Sm/Ce=90/7/3	7	0.5	0.5	15
69	14	1	0	0	72	0.04	14	Er/Nd/Sm=70/20/10	15	0	3	1

[表3]



五、發明說明 (19)

[表4]

試樣編號	x (Ba <sub>0</sub> Ca <sub>0</sub> Sr <sub>2</sub> ) <sub>0-y</sub> [(1-y)O <sub>2</sub> ] <sub>1-m</sub> (ZrO <sub>2</sub> ) <sub>n</sub> -zReO <sub>3</sub>					RE種類與莫耳比	重量份數					
	X (mol%)	α	β	γ	Y (mol%)		m	z	第一副組份 B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SiO <sub>2</sub> 玻璃	第二副組份 V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	第一副組份 WO <sub>3</sub>	第一副組份 CuO
70	39.5	0.6	0.2	0.2	59.5	0.01	1	10	1	0.5	1	1
71	1	0.6	0.2	0.2	59.5	0.01	39.5	10	1	0.5	1	1
72	1	0.6	0.2	0.2	85	0.01	14	10	1	0.5	1	1
73	14	0.6	0.2	0.2	85	0.01	1	10	1	0.5	1	1
74	30	0.6	0.2	0.2	64	0.01	6	10	1	0.5	1	1
75	12	0.6	0.2	0.2	64	0.01	24	10	1	0.5	1	1
76	6	0.6	0.2	0.2	68	0.01	26	10	1	0.5	1	1
77	6	0.6	0.2	0.2	80	0.01	14	10	1	0.5	1	1
78	18	0.6	0.2	0.2	76	0.01	6	10	1	0.5	1	1
79	14	0.6	0.2	0.2	72	0.01	14	10	1	0.5	1	1
80	12	1	0	0	64	0.01	24	8	1	0	0.5	0.5
81	12	1	0	0	64	0.01	24	8	0	1	0.5	0.5
82	12	1	0	0	64	0.01	24	8	0.5	0.5	0.5	0.5
83	14	1	0	0	72	0.04	14	15	0	3	1	1
84	14	1	0	0	72	0.04	14	15	0	3	1	5
85	14	1	0	0	72	0.04	14	15	0	3	1	10
86	14	1	0	0	72	0.04	14	15	0	3	1	15
87	14	1	0	0	72	0.04	14	15	0	3	1	20
*88	14	1	0	0	72	0.04	14	15	0	3	1	25
89	6	1	0	0	68	0	26	10	1	0	1	3
90	6	1	0	0	80	0.05	14	10	2	2	5	10
91	6	1	0	0	80	0.05	14	15	2	2	10	15
92	6	1	0	0	80	0.05	14	25	3	3	10	20
93	14	0.7	0.1	0.2	72	0.03	14	10	2	0	0	1
94	14	0.7	0.1	0.2	72	0.03	14	10	2	0	1	1
95	14	0.7	0.1	0.2	72	0.03	14	10	2	0	3	1
96	14	0.7	0.1	0.2	72	0.03	14	10	2	0	5	1
97	14	0.7	0.1	0.2	72	0.03	14	10	2	0	10	1
*98	14	0.7	0.1	0.2	72	0.03	14	10	2	0	15	1



## 五、發明說明 (20)

[表5]

試樣 編號	燒結 溫度 (°C)	相對介 電常數 1MHz	Q 1MHz	電阻率P 125°C ( $\Omega\text{m}$ )
1	1050	47	1700	$3.7 \times 10^9$
2	1050	46	1600	$3.1 \times 10^9$
3	1050	47	1800	$3.6 \times 10^9$
4	990	49	2800	$2.4 \times 10^{10}$
5	990	52	2600	$2.0 \times 10^{10}$
6	1000	55	2500	$9.6 \times 10^9$
7	1000	58	2500	$8.6 \times 10^9$
8	1020	61	2300	$5.4 \times 10^9$
9	980	48	2600	$9.8 \times 10^9$
10	980	51	2700	$8.6 \times 10^9$
11	990	53	2400	$7.4 \times 10^9$
12	990	55	2300	$5.7 \times 10^9$
13	1000	57	2100	$4.1 \times 10^9$
*14	1040	117	200	$4.8 \times 10^7$
*15	1040	33	1800	$1.8 \times 10^9$
*16	1040	34	800	$6.4 \times 10^8$
*17	1040	64	300	$1.9 \times 10^8$
*18	1060	不燒結		
19	1040	50	2300	$5.4 \times 10^9$
20	1000	47	1500	$1.2 \times 10^9$
*21	960	46	400	$7.6 \times 10^7$
*22	1060	不燒結		
23	1040	47	2000	$9.3 \times 10^9$
24	1030	46	1800	$9.1 \times 10^9$
25	1010	45	1500	$7.7 \times 10^9$
*26	1010	44	300	$9.7 \times 10^7$
27	1040	48	1900	$8.4 \times 10^9$
28	1030	47	1700	$7.7 \times 10^9$
29	990	46	1500	$6.1 \times 10^9$
*30	990	45	400	$2.4 \times 10^8$



## 五、發明說明 (21)

[表6]

試樣 編號	燒結 溫度 (°C)	相對介 電常數 1MHz	Q 1MHz	電阻率P 125°C (Ω m)
31	1050	65	1900	$4.4 \times 10^9$
32	1050	62	1700	$2.7 \times 10^9$
33	990	47	3200	$1.2 \times 10^{10}$
34	990	49	3000	$9.4 \times 10^9$
35	1000	53	2900	$8.4 \times 10^9$
36	1000	55	2900	$6.9 \times 10^9$
37	1020	57	2700	$5.1 \times 10^9$
38	980	48	3000	$9.9 \times 10^9$
39	980	49	3100	$8.7 \times 10^9$
40	990	53	2800	$6.6 \times 10^9$
41	990	55	2700	$5.2 \times 10^9$
42	1000	59	2500	$3.7 \times 10^9$
*43	1050	123	100	$5.4 \times 10^7$
*44	1050	36	2000	$3.8 \times 10^9$
*45	1050	39	800	$8.6 \times 10^8$
*46	1050	74	500	$2.6 \times 10^8$
*47	1060	不燒結		
48	1050	50	2400	$7.9 \times 10^9$
49	1010	46	1800	$4.3 \times 10^9$
*50	970	46	500	$8.1 \times 10^7$
*51	1060	不燒結		
52	1040	48	2100	$9.7 \times 10^9$
53	1030	47	1900	$9.8 \times 10^9$
54	1020	46	1800	$9.8 \times 10^9$
*55	1020	44	400	$2.0 \times 10^8$
56	1040	48	1800	$8.7 \times 10^9$
57	1030	49	2100	$9.2 \times 10^9$
58	1000	47	1600	$8.8 \times 10^9$
*59	1000	43	600	$3.1 \times 10^8$
60	1040	48	2300	$8.6 \times 10^9$
61	1060	53	1800	$5.4 \times 10^9$
*62	1060	不燒結		
63	1030	48	1800	$6.7 \times 10^9$
64	1050	48	1800	$8.8 \times 10^9$
*65	1060	不燒結		



## 五、發明說明 (22)

[表7]

試樣 編號	燒結 溫度 (°C)	相對介 電常數 1MHz	Q 1MHz	電阻率P 125°C ( $\Omega\text{m}$ )
66	1020	51	2300	$6.6 \times 10^9$
67	1000	53	1800	$2.7 \times 10^9$
*68	970	50	600	$2.1 \times 10^6$
69	1040	62	2300	$3.5 \times 10^9$



## 五、發明說明 (23)

[表8]

試樣 編號	燒結 溫度 (°C)	相對介 電常數 1MHz	Q 1MHz	電阻率P 125°C (Ω·m)
70	1030	42	1500	$3.9 \times 10^9$
71	1030	44	1400	$4.8 \times 10^9$
72	1030	42	1500	$5.5 \times 10^9$
73	1030	60	2000	$7.6 \times 10^{10}$
74	1030	63	1500	$9.6 \times 10^9$
75	1030	61	1400	$2.6 \times 10^9$
76	1030	49	2000	$5.7 \times 10^9$
77	1030	47	3000	$1.2 \times 10^{10}$
78	1030	63	2200	$7.7 \times 10^9$
79	1030	70	2200	$5.4 \times 10^9$
80	1050	60	1200	$2.5 \times 10^9$
81	1050	61	1300	$2.8 \times 10^9$
82	1050	62	1300	$2.6 \times 10^9$
83	1030	63	2500	$6.9 \times 10^9$
84	990	64	2600	$7.1 \times 10^9$
85	980	64	2700	$7.4 \times 10^9$
86	950	65	2800	$8.9 \times 10^9$
87	930	64	2800	$8.8 \times 10^9$
*88	930	61	400	$7.4 \times 10^8$
89	1030	49	2000	$6.1 \times 10^9$
90	950	46	2000	$8.1 \times 10^9$
91	930	45	2500	$7.6 \times 10^9$
92	900	43	2500	$6.5 \times 10^9$
93	1040	65	2400	$7.3 \times 10^9$
94	1030	64	2800	$9.4 \times 10^9$
95	1020	63	2700	$3.1 \times 10^{10}$
96	1000	64	2800	$5.4 \times 10^{10}$
97	980	65	2900	$1.8 \times 10^{10}$
*98	970	61	500	$1.6 \times 10^8$



五、發明說明 (24)

試樣編號	$x(\text{Ba}_x\text{Ca}_y\text{Sr}_z)\text{O}_{-y}$				$[(\text{WO}_2)_y]_{-m}$			$(\text{ZrO}_2)_n$		RE種類 與莫耳比	第一副組份 90%-sto, 玻璃	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>	第二副組份		第三副組份 CaO	第四副組份 MnO
	x (mol%)	α	β	γ	y (mol%)	m	z (mol%)	n	V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>					WO <sub>3</sub>	重量份數		
101	14	1	0	0	72	0	14	ND/Sm=85/15	10	0	0	0.5	0.5	0.5	1	0.1	
*102	14	1	0	0	72	0	14	Nd/Sm=85/15	0	0	5	0.5	0.5	0.5	1	0.1	
103	6	0.9	0.05	0.05	68	0.01	26	Er/Nd/Pr=70/25/5	10	0	0	0.5	0.5	0.5	1	2	
*104	6	0.9	0.05	0.05	68	0.01	26	Er/Nd/Pr=70/25/5	0	0	5	0.5	0.5	0.5	1	2	

[表9]



## 五、發明說明 (25)

[表10]

試樣編號	繞結溫度 (°C)	防潮負荷試驗 缺點/試驗時間(片)
101	1000	0/72
*102	1000	3/72
103	1000	0/72
*104	1000	4/72

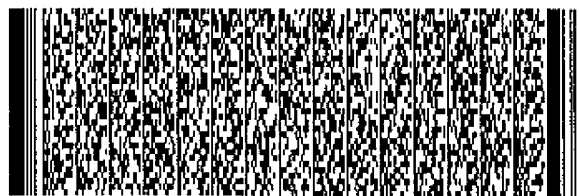
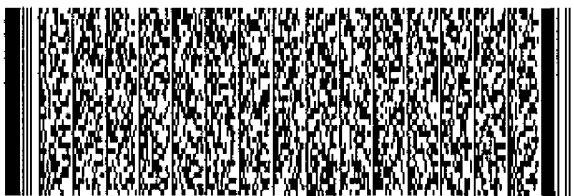


## 四、中文發明摘要 (發明之名稱：介電陶瓷組合物及積層陶瓷零件)

本發明之一目的在提供一種改良的溫度補償介電陶瓷組合物及積層陶瓷零件如積層的陶瓷電容器與積層的LC濾波器，各用具高相對介電常數與高Q值之此項溫度補償介電陶瓷組合物製作，並容許於其製造過程期間在相對低溫時燒結，於燒結處理期間不引起陶瓷性質上任何不合要求的變化。此組合物含100分重量之主組份，其莫耳成分比(BaO, TiO<sub>2</sub>, Re<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)顯示在三元成分圖內，由A點(39.5, 59.5, 1)，B點(1, 59.5, 39.5)，C點(1, 85, 14)與D點(14, 85, 1)圍繞指出；25份重量以下的B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>玻璃(但不含氧化鉛)；至少一項物質選自氧化釩(以V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>式計V氧化物含量為重量比10份以下)及氧化鎢(以WO<sub>3</sub>式計W氧化物含量為重量比20份以下)。較佳組合物另含任意重量比10%以

## 英文發明摘要 (發明之名稱：DIELECTRIC CERAMIC COMPOSITION AND LAMINATED CERAMIC PARTS)

It is an object of the present invention to provide an improved temperature compensating dielectric ceramic composition, and laminated ceramic parts such as a laminated ceramic condenser and a laminated LC filter, each of which is formed by using such a temperature compensating dielectric ceramic composition having a high relative dielectric constant and a high Q value, and allowed to be sintered at a relatively low temperature during their manufacturing processes,

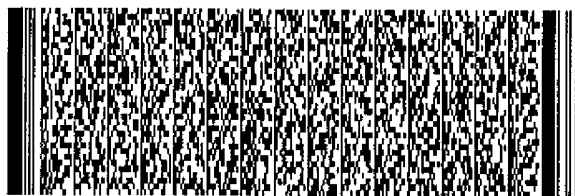


四、中文發明摘要 (發明之名稱：介電陶瓷組合物及積層陶瓷零件)

下的CuO或重量比20份以下之MnO。

英文發明摘要 (發明之名稱：DIELECTRIC CERAMIC COMPOSITION AND LAMINATED CERAMIC PARTS)

without causing any undesired variations in ceramic properties during a sintering treatment. The composition comprises 100 parts by weight of a main component having a mole composition ratio (BaO, TiO<sub>2</sub>, Re<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) shown in a ternary composition diagram, indicated by an area surrounded by point A (39.5, 59.5, 1), point B (1, 59.5, 39.5), point C (1, 85, 14) and point D (14, 85, 1); 25 parts by weight or less of a B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> glass (but not containing Pb oxide); at least one substance -



四、中文發明摘要 (發明之名稱：介電陶瓷組合物及積層陶瓷零件)

英文發明摘要 (發明之名稱：DIELECTRIC CERAMIC COMPOSITION AND LAMINATED CERAMIC PARTS)

selected from V oxide (the content of V oxide in the form of  $V_2O_5$  is 10 parts by weight or less) and W oxide (the content of W oxide in the form of  $WO_3$  is 20 parts by weight or less). Preferably, the composition further contains either 10 parts by weight or less of  $CuO$ , or 20 parts by weight or less of  $MnO$ .



1. 一種介電陶瓷組合物，含：

100份重量由 $x\text{BaO}-y\text{TiO}_2-z\text{Re}_2\text{O}_3$ 式代表之主組份(其中 $x+y+z=100$ ，Re係至少一種稀土元素)，有圖1三元組份圖所表現的BaO， $\text{TiO}_2$ ， $\text{Re}_2\text{O}_3$ 之莫耳成分比(BaO， $\text{TiO}_2$ ， $\text{Re}_2\text{O}_3$ )，由A點(39.5, 59.5, 1)，B點(1, 59.5, 39.5)，C點(1, 85, 14)與D點(14, 85, 1)圍繞之區域指出；

25份重量以下之第一副組份乃 $\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 玻璃(但不含氧化鉛)；

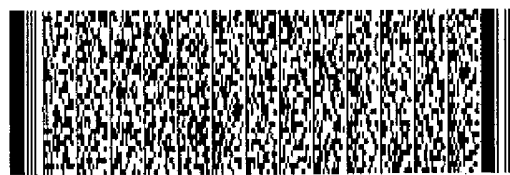
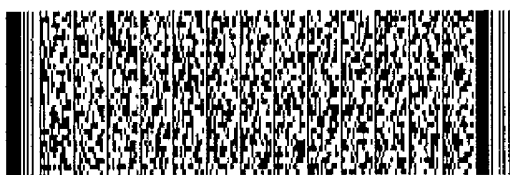
第二副組份係選自氧化鈮與氧化鎢中的至少一種物質，呈 $\text{V}_2\text{O}_5$ 式之氧化鈮含量為10份重量以下，呈 $\text{WO}_3$ 式的氧化鎢含量為20份重量以下。

2. 一種介電陶瓷組合物，含：

100份重量由 $x(\text{Ba } \alpha \text{ Ca } \beta \text{ Sr } \gamma)-y[\text{TiO}_2]_{1-n}(\text{ZrO}_2)_m]-z\text{Re}_2\text{O}_3$ 代表之主組份(其中 $x+y+z=100$ ， $\alpha+\beta+\gamma=1$ ， $0\leq\beta+\gamma<0.8$ ， $0\leq m<0.15$ ，但不包括其中 $\beta+\gamma=0$ 及 $m=0$ 之情況；Re係至少一種稀土元素)，有圖2三元組份圖所示的 $(\text{Ba } \alpha \text{ Ca } \beta \text{ Sr } \gamma)\text{O}$ ， $[(\text{TiO}_2)_{1-n}(\text{ZrO}_2)_m]$ ， $\text{Re}_2\text{O}_3$ 之莫耳成分比 $\{(\text{Ba } \alpha \text{ Ca } \beta \text{ Sr } \gamma)\text{O}$ ， $[(\text{TiO}_2)_{1-n}(\text{ZrO}_2)_m]$ ， $\text{Re}_2\text{O}_3\}$ ，由A點(39.5, 59.5, 1)，B點(1, 59.5, 39.5)，C點(1, 85, 14)與D點(14, 85, 1)圍繞之區域指出；

25份重量以下的第一副組份係 $\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 玻璃(但不含氧化鉛)；

第二副組份係選自氧化鈮與氧化鎢中的至少一種物質，呈 $\text{V}_2\text{O}_5$ 式之氧化鈮含量為10份重量以下，呈 $\text{WO}_3$ 式的氧



## 六、申請專利範圍

化鎢含量為20份重量以下。

3. 根據專利範圍第1或2項之介電陶瓷組合物，其中該組合物又含一第三副組份係以相對100份重量主組份10份重量以下以CuO式添加之氧化銅。

4. 根據專利範圍第1至2項中任一項之介電陶瓷組合物，其中該組合物又含一第四副組份係氧化錳以相對100份重量主組份20份重量以下量之MnO式添加。

5. 一種積層陶瓷零件，包括許多介電陶瓷層，介電陶瓷層中間所製的內部電極，與該等內部電極電聯之外部電極等，特徵在該等介電陶瓷層係以根據專利範圍第1至4項中任一項內列舉的介電陶瓷組合物製作，該等內部電極係用Cu或Ag作其主組份製作。



圖式

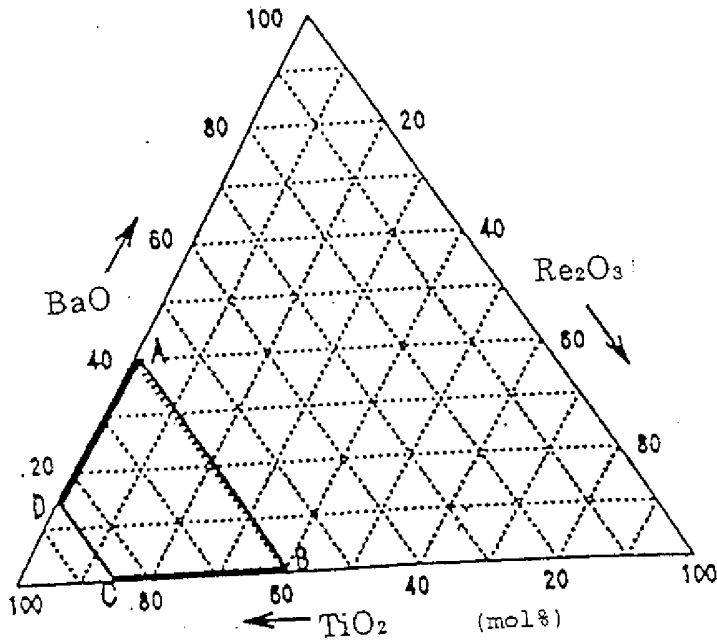


圖 1

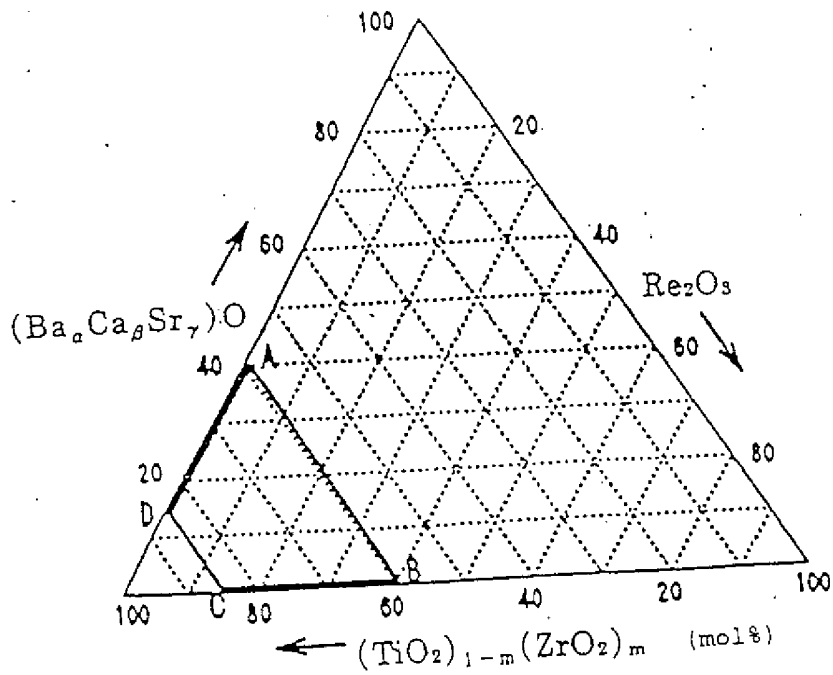


圖 2

圖式

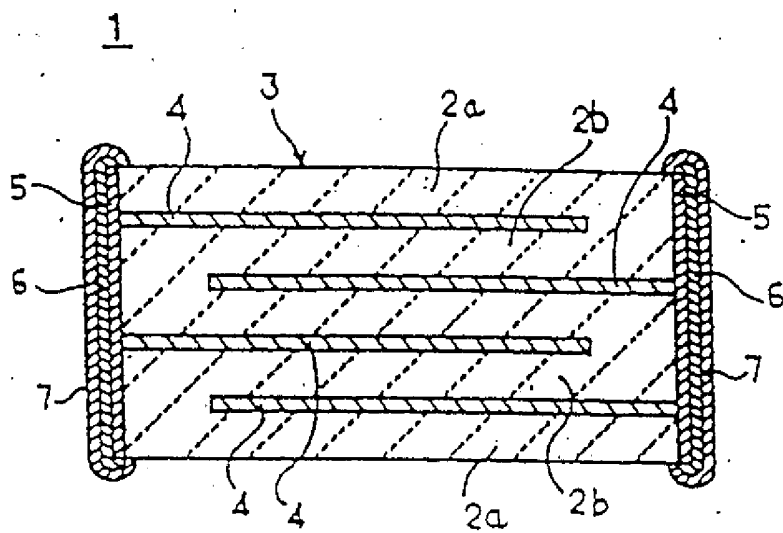


圖3

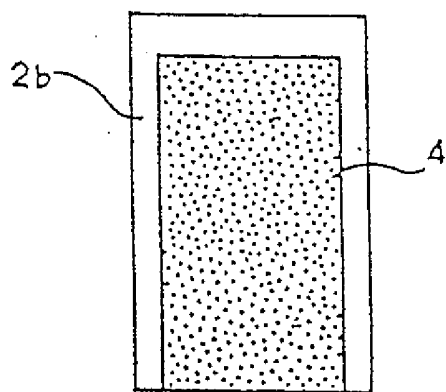


圖4

圖式

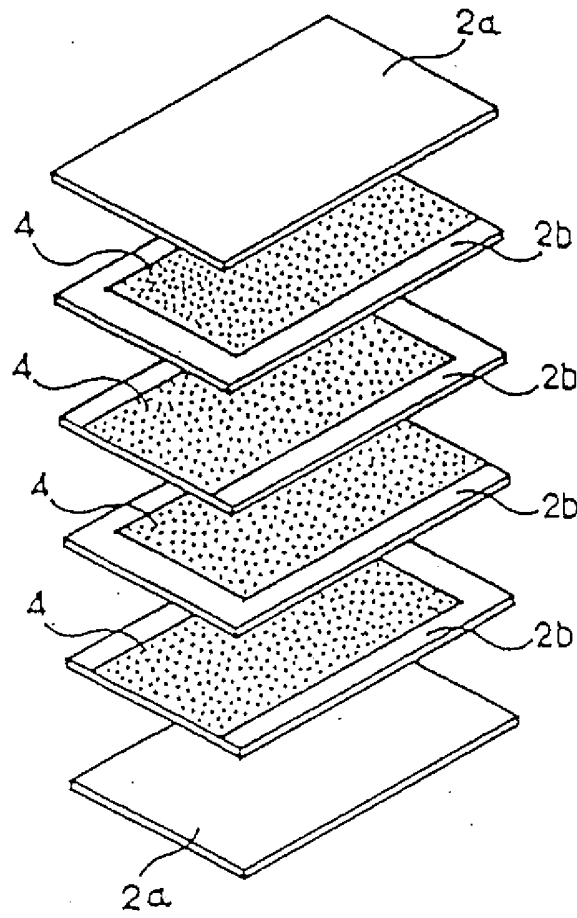


圖5

90.6.1 修正  
 補充

88.9.9 案號：88115560

H01B 3/12, H01G 4/30

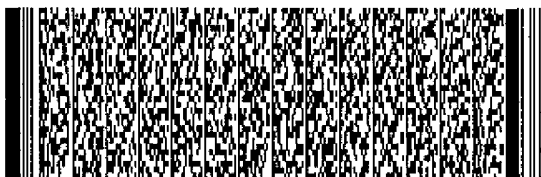
(以上各欄由本局填註)

公告本

發明專利說明書

469445

一、發明名稱	中文	介電陶瓷組合物及積層陶瓷零件
	英文	DIELECTRIC CERAMIC COMPOSITION AND LAMINATED CERAMIC PARTS
二、發明人	姓名(中文)	1. 的場 弘明 2. 佐野 晴信
	姓名(英文)	1. HIROAKI MATOBA 2. HARUNOBU SANO
	國籍	1. 日本 2. 日本
	住、居所	1. 日本國京都府長岡京市天神二丁目26番10號村田製作所股份有限公司內 2. 日本國京都府長岡京市天神二丁目26番10號村田製作所股份有限公司內
三、申請人	姓名(名稱)(中文)	1. 日商村田製作所股份有限公司
	姓名(名稱)(英文)	1. MURATA MANUFACTURING CO., LTD.
	國籍	1. 日本
	住、居所(事務所)	1. 日本國京都府長岡京市天神二丁目26番10號
	代表人姓名(中文)	1. 村田 充弘
代表人姓名(英文)	1. MICHHIRO MURATA	



1. 一種介電陶瓷組合物，含：

100份重量由 $x\text{BaO}-y\text{TiO}_2-z\text{Re}_2\text{O}_3$ 式代表之主組份(其中 $x+y+z=100$ ，Re係至少一種稀土元素)，有圖1三元組份圖所表現的BaO， $\text{TiO}_2$ ， $\text{Re}_2\text{O}_3$ 之莫耳成分比(BaO， $\text{TiO}_2$ ， $\text{Re}_2\text{O}_3$ )，由A點(39.5, 59.5, 1)，B點(1, 59.5, 39.5)，C點(1, 85, 14)與D點(14, 85, 1)圍繞之區域指出；

25份重量以下之第一副組份乃 $\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 玻璃(但不含氧化鉛)；

第二副組份係選自氧化釩與氧化鎢中的至少一種物質，呈 $\text{V}_2\text{O}_5$ 式之氧化釩含量為10份重量以下，呈 $\text{WO}_3$ 式的氧化鎢含量為20份重量以下。

2. 一種介電陶瓷組合物，含：

100份重量由 $x(\text{Ba } \alpha \text{ Ca } \beta \text{ Sr } \gamma)-y[\text{TiO}_2]_{1-n}(\text{ZrO}_2)_m]-z\text{Re}_2\text{O}_3$ 代表之主組份(其中 $x+y+z=100$ ， $\alpha+\beta+\gamma=1$ ， $0\leq\beta+\gamma<0.8$ ， $0\leq m<0.15$ ，但不包括其中 $\beta+\gamma=0$ 及 $m=0$ 之情況；Re係至少一種稀土元素)，有圖2三元組份圖所示的 $(\text{Ba } \alpha \text{ Ca } \beta \text{ Sr } \gamma)\text{O}$ ， $[(\text{TiO}_2)_{1-n}(\text{ZrO}_2)_m]$ ， $\text{Re}_2\text{O}_3$ 之莫耳成分比 $\{(\text{Ba } \alpha \text{ Ca } \beta \text{ Sr } \gamma)\text{O}$ ， $[(\text{TiO}_2)_{1-n}(\text{ZrO}_2)_m]$ ， $\text{Re}_2\text{O}_3\}$ ，由A點(39.5, 59.5, 1)，B點(1, 59.5, 39.5)，C點(1, 85, 14)與D點(14, 85, 1)圍繞之區域指出；

25份重量以下的第一副組份係 $\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 玻璃(但不含氧化鉛)；

第二副組份係選自氧化釩與氧化鎢中的至少一種物質，呈 $\text{V}_2\text{O}_5$ 式之氧化釩含量為10份重量以下，呈 $\text{WO}_3$ 式的氧

