

發明專利說明書200426243

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：93/04/44

※申請日期：93.2.19

※IPC 分類：

壹、發明名稱：(中文/英文)

無機粉末的表面塗佈方法及使用該方法所形成之無機粉末/A METHOD OF COATING
THE SURFACE OF AN INORGANIC POWDER AND A COATED INORGANIC POWDER
MANUFACTURED USING THE SAME

貳、申請人：(共1人)

姓名或名稱：(中文/英文)

三星電子股份有限公司/SAMSUNG ELECTRONICS CO., LTD.

代表人：(中文/英文) 尹鍾龍/YUN, JONG-YONG

住居所或營業所地址：(中文/英文) 大韓民國 京畿道 水原市 靈通區 梅
灘洞 416 番地/416, Maetan-dong, Yeongtong-gu, Suwon-si, Gyeonggi-do,
Republic of Korea

國籍：(中文/英文) 大韓民國/ Republic of Korea

參、發明人：(共3人)

姓名：(中文/英文)

1. 崔在榮/CHOI, JAE-YOUNG
2. 李鍾欣/LEE, JONG-HEUN
3. 洪性賢/HONG, SEONG-HYEON

住居所地址：(中文/英文)

1. 大韓民國 京畿道 水原市 靈通區 靈通洞 955-1 番地

鳳谷 Maeul 住公 1 團地 APT. 155 棟 802 號/155-802 Hwanggol Maeul
Jugong 1-danji Apt., 955-1 Yeongtong-dong, Yeongtong-gu,
Suwon-si, Gyeonggi-do, Republic of Korea

2. 大韓民國 京畿道 果川市 別陽洞 6 番地 住公 5 團地 APT. 501 棟
1106 號/501-1106 Jugong 5-danji Apt., 6 Byeolyang-dong,
Gwacheon-si, Gyeonggi-do, Republic of Korea

3. 大韓民國 漢城市 松坡區 可樂洞 95-1 番地 可樂錦湖 APT. 102 棟
703 號/102-703 Garak Geumho Apt., 95-1 Garak-dong, Songpa-gu,
Seoul, Republic of Korea

國 籍：(中文/英文)

1. 大韓民國/ Republic of Korea
2. 大韓民國/ Republic of Korea
3. 大韓民國/ Republic of Korea

肆、聲明事項：

☐ 本案係符合專利法第二十條第一項 ☐ 第一款但書或 ☐ 第二款但書規定之期間，其日期為： 年 月 日。

◎本案申請前已向下列國家（地區）申請專利 ☒ 主張國際優先權：

【格式請依：受理國家（地區）；申請日；申請案號數 順序註記】

1. 大韓民國/ Republic of Korea; 2003/02/19; 10-2003-0010415

2.

3.

4.

5.

☐ 主張國內優先權（專利法第二十五條之一）：

【格式請依：申請日；申請案號數 順序註記】

1.

2.

☐ 主張專利法第二十六條微生物：

☐ 國內微生物 【格式請依：寄存機構；日期；號碼 順序註記】

☐ 國外微生物 【格式請依：寄存國名；機構；日期；號碼 順序註記】

☐ 熟習該項技術者易於獲得，不須寄存。

玖、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明係關於一種無機粉末的表面塗佈方法及使用該方法所形成之無機粉末，特別是一種將一金屬氧化物均勻地沉積於一無機粉末的方法，並且該無機粉末係應用於積層型陶瓷電容器 (Multi Layer Ceramic Capacitor, MLCC) 內或是用來作為鋰電池的活性物質。

【先前技術】

積層型陶瓷電容器通常包含有兩片金屬電極 (例如鎳或銅) 以及一介於該等金屬電極之間的介電陶瓷層 (例如鈦酸鋇)。此外，由於積層型陶瓷電容器的體積小且電容量大，所以積層型陶瓷電容器係廣泛地應用於電腦、手機以及其他電子產品上。

由於銀鈮合金可以在空氣中燒結，所以銀鈮合金係已被用來作為金屬電極。不過，因為銀鈮合金電極的製造成本相當高昂，所以鎳金屬已逐漸地取代銀鈮合金，不過鎳金屬通常必須在低壓下燒結，以避免氧化。

圖一係為鈦酸鋇介電層 100 與鎳電極圖案 200 的製造示意圖。

接下來將解釋習知鎳-積層型陶瓷電容器的製造方法。如圖一所示，首先，將鈦酸鋇粉末分散系塗佈於一基板 (例如 PET) 表面，以形成一鈦酸鋇粉末介電層 (BaTiO₃ powder

dielectric layer) 100。接著，利用網印的方式，將鎳粉分散系塗佈於鈦酸鋇介電層 100 表面，以形成複數個鎳粉末電極圖案 (Ni powder electrode layer pattern) 200。重複前述步驟數次，以形成多層的鈦酸鋇粉末介電層 100 及鎳粉末電極圖案 200。最後，沿著切割線 300 將前述之多層結構切割分離，並利用燒結的方式，將鈦酸鋇粉末介電層 100 及鎳粉末電極圖案 200 燒結成鈦酸鋇介電層 (BaTiO₃ mono-layer dielectric layer) 及鎳電極圖案 (Ni mono-layer electrode layer pattern)，如此便完成鎳-積層型陶瓷電容器的製作。

由於在燒結之前，鎳粉末電極圖案 200 內具有大量的有機媒介，所以燒結前之鎳粉末電極圖案 200 的排列密度 (packing density) 較低。因此，當鈦酸鋇粉末介電層 100 及鎳粉末電極圖案 200 經過燒結之後，鎳粉末電極圖案 200 的收縮程度會大於鈦酸鋇粉末介電層 100。

此外，鎳金屬粉末的燒結溫度大約是 600°C，而鈦酸鋇粉末的燒結溫度大約是 1250~1300°C，所以鎳金屬粉末在 400~500°C 之間便會開始收縮，然而鈦酸鋇粉末則必須在 1100°C 以上才會開始收縮。因此，在鈦酸鋇粉末介電層 100 及鎳粉末電極圖案 200 的燒結過程中，當溫度到達 400~500°C 時，鎳金屬粉末已經開始在收縮，然而鈦酸鋇粉末卻沒有任何收縮的跡象。

由於鈦酸鋇粉末介電層 100 及鎳粉末電極圖案 200 的燒結溫度以及收縮率 (shrinkage rate) 均不相同，所以燒結後之鈦酸鋇粉末介電層 100 及鎳粉末電極圖案 200 之間會有很強的收縮應力 (contraction stress) 存在，該收縮應力

不僅會降低電極之間的接觸力，更會造成鈦酸鋇介電層及鎳電極圖案之間產生分層 (delamination)。

因此，目前便有一些方法被提出，以提升電極之間的接觸力或是避免鈦酸鋇介電層及鎳電極圖案的分離。例如，利用鈦酸鋇粉末來填補鎳粉之間的孔隙，以降低鎳粉末電極圖案 200 的收縮率，然而由於鈦酸鋇粉末並無法覆蓋所有的鎳粉表面，所以鎳粉末電極圖案 200 的收縮率無法被有效地降低。

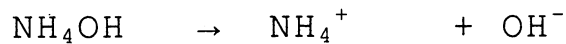
此外，另一個方法是利用表面具有金屬氧化物之鎳粉來形成鎳粉末電極圖案 200，由於表面具有金屬氧化物之鎳粉的收縮起始溫度係接近於鈦酸鋇粉末的收縮起始溫度，因而可用以降低鎳粉末電極圖案 200 收縮率。一般而言，用來覆蓋於鎳粉表面的金屬氧化物包含有氧化鎂 (MgO)、二氧化矽 (SiO_2)、二氧化鈦 (TiO_2)、鈦酸鋇以及鹼土金屬氧化物。此外，如美國專利 6268054 所揭露，噴灑式熱分解法 (spray thermal decomposition) 與溶膠凝膠法 (sol-gel coating process) 等方法均可用來將金屬氧化物塗佈於鎳粉表面。

在噴灑式熱分解法中，鎳粉係先與熱分解化合物形成一溶液，然後將該溶液噴灑入一加熱管中，此時該熱分解化合物便會於該加熱管中產生分解，並於鎳粉表面形成金屬氧化物。然而，此法不僅會在鎳粉表面形成金屬氧化物，也會在鎳粉內部形成金屬氧化物，因而造成原料浪費，並提高製程成本。

另一方面，溶膠凝膠法係先將一欲鍍物質溶解於水而形成一水溶液，然後再將鎳粉加入該水溶液中，隨後經由溶膠凝膠反應，便可利用物理與化學的方式而將該欲鍍物質形成於鎳粉

表面。之後，鍍好之鎳粉會經過過濾、乾燥以及加熱等步驟，以使鎳粉表面之物質轉變成結晶態。一般而言，此法不僅可製作一結構穩定之鎳粉，更有效地大量生產。

請參考圖二，圖二係為利用溶膠凝膠法來將二氧化鈦塗佈於鎳粉表面之方法流程圖。如圖二所示，在步驟(1)中，先將鎳粉加入水中，並使鎳粉分散於水中而形成一鎳的膠態溶液(aqueous Ni powder slurry)，然後再將一四氯化鈦(TiCl_4)水溶液與一氫氧化氨(NHOH_4)水溶液加入該鎳的膠態溶液中並攪拌之，其中，四氯化鈦係會與氫氧根離子反應而產生氫氧化鈦($\text{Ti}(\text{OH})_x$)沉澱物，而氫氧根離子係經由以下的酸鹼反應所產生：



隨後，氫氧化鈦係沉積並覆蓋於鎳粉的表面(步驟(3))。之後，利用醇溶液來清洗表面具有氫氧化鈦之鎳粉(步驟(5))，以移除不純物並將氫氧化鈦的氫氧基團(hydroxy group)轉變成烷氧基團(alkoxy group)，以避免氫氧化鈦的氫氧基團在後續的乾燥過程中產生縮合反應(condensation reaction)，而導致鎳粉產生團塊化現象(agglomeration)。然後，對清洗後之鎳粉進行一乾燥製程(步驟(7))。最後，當乾燥製程進行完成之後，便進行一熱處理製程於乾燥後之鎳粉上，並且該熱處理製程係於一氧化環境(oxidative atmosphere)下，利用 $400^\circ\text{C} \sim 500^\circ\text{C}$ 之高溫來加熱乾燥後之鎳粉，在該熱處理製程中，氫氧化鈦係轉換成二氧化鈦，如此一來便可使二氧化鈦塗佈於鎳粉表面。

然而，由於習知的溶膠凝膠法係利用水作為分散介質，因而具有下列幾項缺點：

(1) 由於鎳粉表面具有氫氧化鈦，所以不同鎳顆粒表面上的氫氧化鈦便可能產生縮合反應，而產生 Ti-O-Ti 鍵結，進而使部分的鎳顆粒之間產生團塊化現象。

(2) 由於習知的溶膠凝膠法係利用水作為分散介質，水經過酸鹼反應會在短時間內產生大量的氫氧根離子，並且當四氯化鈦與大量的氫氧根離子反應之後，便會於短時間內產生大量的氫氧化鈦沉澱物，如此一來，部分的氫氧化鈦沉澱物便在水溶液中聚集成塊 (cluster) 而沒有沉積在鎳顆粒的表面上，進而使某些鎳顆粒的表面因為沒有鍍有氫氧化鈦而裸露於外。

請參考圖三，圖三係為利用圖二之方法所製成之鎳粉的 SEM 照片。如圖三所示，有一些氫氧化鈦係凝結成塊而沒有沉積於鎳粉的表面，而且部分鎳顆粒的表面因為沒有鍍有氫氧化鈦而裸露於外，此外，在使氫氧化鈦結晶成二氧化鈦結晶的熱處理過程中，氫氧化鈦的凝結塊仍然存在，而且當該熱處理進行的越久，氫氧化鈦的凝結塊的凝聚力更會隨著增加。

因此，若利用習知溶膠凝膠法所製成之鎳粉來製作積層型陶瓷電容器所需之鎳電極，將會面臨下列問題：

(1) 由於溶膠凝膠法所製成之鎳粉會有團塊化現象，團塊化之鎳粉係具有較大的表面粗糙度，因此若利用團塊化之鎳粉來製作鎳電極，將會降低鎳電極的厚度平整度，進而會增加鎳電極在積層型陶瓷電容器之燒結製程中產生斷線的情形。

(2) 由於在溶膠凝膠法中，部分鎳顆粒的表面因為沒有鍍

有氫氧化鈦而裸露於外，所以鈦酸鋇粉末與溶膠凝膠法所製成之鎳粉的收縮溫度的差距仍然很大，因而容易造成鈦酸鋇介電層及鎳電極圖案的分離。

由上可知，利用習知溶膠凝膠法所製成之鎳粉來製作鎳電極，將會降低積層型陶瓷電容器的品質並提高失效率 (failure rate)，因此，如何將金屬氧化物均勻地沉積於鎳粉表面而且不會產生團塊化現象，以提升積層型陶瓷電容器的品質，便是一相當重要之課題。相同地，對於高效能之鋰電池而言，如何將金屬氧化物均勻地沉積於鎳粉表面而且不會產生團塊化現象，也是一相當重要之課題。

【發明內容】

因此，本發明的目的之一是提供一種無機粉末的表面塗佈方法，以避免無機粉末產生團塊化現象以及避免金屬氧化物凝聚成塊。

此外，本發明的另一目的是提供一種表面具有金屬氧化物之無機粉末，其中該無機粉末表面之金屬氧化物係具有一均勻之厚度，並且該無機粉末係不會產生團塊化現象，而且該金屬氧化物亦不會凝聚成塊。

依據本發明之目的，本發明的較佳實施例係提供一種無機粉末的表面塗佈方法，該方法包含有：

提供一醇溶性金屬鹽之醇類溶液與一胺類化合物之醇類溶液；以及

將一無機粉末與水加入該醇溶性金屬鹽之醇類溶液與該

胺類化合物之醇類溶液之內並攪拌之，以將該醇溶性金屬鹽所形成之一金屬氫氧化物塗佈於該無機粉末之表面。

依據本發明之另一目的，本發明的另一實施例係提供一種表面鍍有金屬氧化物之無機粉末，並且該無機粉末內之各個顆粒均係分離而且沒有聚結成塊，此外，該金屬氧化物係均勻地鍍在該無機粉末內之各個顆粒表面。

此外，本發明之無機粉末係包含有金屬粉末、金屬氧化物或其他粉末。

由於本發明所製造之表面具有金屬氧化物的無機粉末係不會產生團塊化現象，而且金屬氧化物係均勻地沉積在無機粉末內之各個顆粒的表面，而沒有沉積在無機粉末之各個顆粒表面以外的地方，因此，利用本發明所製成之鎳粉來製作鎳電極，不僅可提升積層型陶瓷電容器的品質，更可增加積層型陶瓷電容器的良率。

【實施方式】

請參考圖四，圖四係為本發明之製造一表面具有金屬氧化物之無機粉末的方法流程圖。如圖四所示，以下將說明本發明之無機粉末的表面塗佈方法及使用該方法所形成之無機粉末。

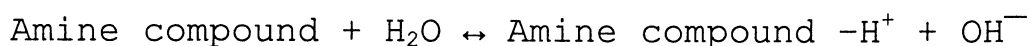
(1) 無機粉末膠態溶液(inorganic powder slurry)的準備程序(步驟1)

在習知的溶膠-凝膠塗佈方法中，水係用來作為無機粉末膠態溶液的分散介質(dispersion medium)，不過在本發明中，醇類溶液(alcohol)係用來作為無機粉末膠態溶液的分散介質。此外，本發明

所使用之無機粉末可以是粉末狀態、或是分散於醇類溶液之膠體狀態。並且，本發明所使用之無機粉末係選自於鎳、銅、鈀(Pd)與銀所組成之族群，此外，本發明所使用之無機粉末亦可以選自於二氧化鈦(TiO_2)、氧化鋯(ZrO_2)、鈦鋯氧化物(TiZrO_4)、三氧化二鋁(Al_2O_3)、二氧化矽(SiO_2)、氧化釷(Y_2O_3)、氧化鎂(MgO)、四氧化三錳(Mn_3O_4)、二氧化錳(MnO_2)、氧化鎳(NiO)、與氧化鋅(ZnO)所組成之族群。

(2) 無機粉末的塗佈方法(步驟 3)

首先，將一無機粉末的膠態醇溶液與一醇溶性金屬鹽的醇類溶液、微量的水以及一胺類化合物的醇類溶液相混合並攪拌之。並且，前述之混合溶液內的水是來自於醇溶性金屬鹽的醇類溶液或是由外加入此混合溶液。此外，依據下述之化學反應式，醇溶性金屬鹽係可與氫氧根離子反應而沉澱為金屬氫氧化物。



因此，金屬氫氧化物便可沉積於無機粉末之表面(步驟 3)。當醇類溶液被用來作為無機粉末、金屬鹽與胺類化合物的分散介質(或溶劑)時，由於醇類溶液之氫氧根離子的生成量較少，因而可減少無機粉末在下述之乾燥製程中發生團塊化現象。其中，醇類溶液的種類並不限定，最好是具有 1 至 5 個氫氧基團之醇類化合物，並且在室溫下是液態為佳，例如，C1~C7 脂肪單醇化合物(C1~C7 aliphatic mono-ol compound)、C6~C9 芳香單醇化合物(C6~C9 aromatic mono-ol compound)、C4~C7 脂環單醇化合物(C4~C7 alicyclic mono-ol compound)、C3~C7 雜環單醇化合物(C3~C7 heterocyclic mono-ol compound)、C2~C7 脂肪雙醇化合物(C2~C7 aliphatic di-ol compound)、或 C2~C7 脂肪三醇化合物(C2~C7 aliphatic tri-ol compound)。

在本發明中，當醇類溶液的 pH 值增加，金屬氫氧化物從醇溶性金屬鹽沉澱出的速率便會降低。一般而言，沉澱反應係可分為均質成核 (homogeneous nucleation) 與非均質成核 (heterogeneous nucleation) 兩種，當醇類溶液的 pH 值快速增加，金屬氫氧化物的沉澱反應便會傾向均質成核，在此種情形下，金屬氫氧化物的成核作用通常會發生在溶液中而不是在無機粉末的表面，因此，金屬氫氧化物會在溶液中形成大顆粒，而無機粉末的表面則沒有塗佈有任何物質。

相反地，當醇類溶液的 pH 值緩慢地增加，金屬氫氧化物的沉澱反應便會傾向於非均質成核，在此種情形下，金屬氫氧化物的成核作用通常會發生在無機粉末的表面，如此一來，便可將金屬氫氧化物沉積於無機粉末的表面。同時，由於胺類化合物會與水產生酸鹼反應，並且由於該酸鹼反應係進行於醇類溶液中，所以氫氧根離子會被緩慢地釋放出來，以使溶液內的 pH 值可以緩慢地增加。如此一來，由於溶液內的 pH 值係緩慢地增加，經由非均質成核反應所生成的金屬氫氧化物大多會沉積在無機粉末的表面，如此便可將金屬氫氧化物塗佈於無機粉末的表面。

本發明所使用之胺類化合物可以是一級胺 (primary amine, RNH_2)、二級胺 (secondary amine, R_2NH)、或三級胺 (tertiary amine, R_3NH)。此外，本發明所使用之胺類化合物亦可以單胺化合物 (mono amine compound) 或雙胺化合物 (diamine compound)。另外，本發明所使用之胺類化合物也可以是脂肪胺化合物 (aliphatic amine compound) 或芳香胺化合物 (aromatic amine compound)。舉例而言，本發明之胺類化合物可以是甲基胺 (methyl amine)、二甲基胺 (di-methyl amine)、三甲基胺 (tri-methyl amine)、乙基胺 (ethyl amine)、二乙胺 (di-ethyl amine)、三乙胺 (tri-ethyl amine)、正丙胺 (n-propyl

amine)、異丙胺(iso-propyl amine)、正丁胺(n-butyl amine)、第二丁胺(sec-butyl amine)、異丁胺(iso-butylamine)、第二丁胺(tert-butylamine)、環己胺(cyclohexylamine)、苯甲胺(benzylamine)、 α -苯基乙胺(α -phenylethylamine)、 β -苯基乙胺(β -phenylethylamine)、乙二胺(ethylenediamine)、丁二胺(tetramethylenediamine)、己二胺(hexamethylenediamine)、苯胺(aniline)、甲苯胺(methylaniline)、二甲基苯胺(dimethylaniline)、二苯胺(diphenylamine)、三苯基胺(triphenylamine)、鄰-甲苯胺(o-toluidine)、間-甲苯胺(m-toluidine)、對-甲苯胺(p-toluidine)、鄰-甲氧苯胺(o-anisidine)、間-甲氧苯胺(m-anisidine)、對-甲氧苯胺(p-anisidine)、鄰-氯苯胺(o-chloroaniline)、間-氯苯胺(m-chloroaniline)、對-氯苯胺(p-chloroaniline)、鄰-溴苯胺(o-bromoaniline)、間-溴苯胺(m-bromoaniline)、對-溴苯胺(p-bromoaniline)、鄰-硝基苯胺(o-nitroaniline)、間-硝基苯胺(m-nitroaniline)、對-硝基苯胺(p-nitroaniline)、2,4,5-三硝基苯胺(2,4,5-trinitroaniline)、2,4,6-三硝基苯胺(2,4,6-trinitroaniline)、鄰-苯二胺(o-phenylenediamine)、間-苯二胺(m-phenylenediamine)、對-苯二胺(p-phenylenediamine)、聯苯胺(benzidine)、對氨基苯甲酸(p-aminobenzoic acid)、或胺基苯磺酸(sulfanilic acid)。

此外，本發明所使用之醇溶性金屬鹽包含有鈦(Ti)、鋯(Zr)、鈦(Hf)、矽(Si)、釩(V)、鉻(Cr)、錳(Mn)、鐵(Fe)、鈷(Co)、鋅(Zn)、鉛(Pb)或前述金屬之混合物的氯化物(chlorides)、硫酸鹽類(sulfates)、亞硝酸鹽(nitrates)、醋酸鹽(acetates)、或

醇鹽(alkoxides)，並且這些醇溶性金屬鹽係在溶液中轉變成金屬氫氧化物，並經由非均質成核反應而形成一塗佈層於無機粉末之各個顆粒的表面，其中金屬氫氧化物係包含有鈦(Ti)、鋯(Zr)、鈪(Hf)、矽(Si)、釩(V)、鉻(Cr)、錳(Mn)、鐵(Fe)、鈷(Co)、鋅(Zn)、鉛(Pb)或前述金屬之混合物的氫氧化物(hydroxide)。

在本發明之無機粉末的塗佈方法中，無機粉末在醇類溶液中的濃度係介於 0.1M 與 1.5M 之間，該醇溶性金屬鹽在醇類溶液中的濃度係介於 0.1M 與 1.5M 之間，該胺類化合物在醇類溶液中的濃度係介於 0.2M 與 3.0M 之間，而水在醇類溶液中的濃度係介於以 0.05M 與 0.3M 之間。

當無機粉末的濃度小於 0.1M 時，製造成本便會增加，但是當無機粉末的濃度大於 1.5M 時，無機粉末內之各個顆粒之間便會產生團塊化現象。

當該醇溶性金屬鹽的濃度小於 0.1M 時，製造成本便會增加，但是當該醇溶性金屬鹽的濃度大於 1.5M 時，無機粉末內之各個顆粒之間便會產生團塊化現象。

當該胺類化合物的濃度小於 0.2M 時，其係無法產生足夠的氫氧根離子，但是當該胺類化合物的濃度大於 3.0M 時，過剩的胺便很難被洗掉。

當水的濃度小於 0.05M 時，不僅會造成金屬氫氧化物的生成速度慢，更是會導致氫氧根離子不足之情形，但是當水的濃度大於 3.0M 時，便會發生均質成核反應而不是非均質成核反應。

此外，上述混合溶液的攪拌時間大約是介於 12 到 72 小時之間，較佳的攪拌時間是 24 到 48 小時，假如攪拌時間低於 12 小時的話，上述反應則無法有效地進行，但是當攪拌時間大於 72 小時時，製造成本便會增加。

(3) 利用醇類溶液清洗 (步驟 5)

這個步驟係利用醇類溶液來清洗表面具有金屬氫氧化物之無機粉末，用以移除不純物，同時並將金屬氫氧化物表面之未反應的氫氧基團 (hydroxy group) 轉變成烷氧基團 (alkoxy group)，以避免氫氧基團產生縮合反應 (condensation reaction)。此外，這個步驟所使用之醇類溶液最好是具有 1 到 5 個碳原子的低級脂肪醇 (lower aliphatic alcohol)，例如：甲醇、乙醇或異丙醇等。

(4) 乾燥製程 (步驟 7)

將表面具有金屬氧化物之無機粉末放置於一烘箱中，並於 80~150°C 的溫度下烘烤 1~5 小時。此外，假如此步驟之乾燥溫度低於 80°C，溶劑係無法完全被蒸發或是需要較長的時間才可使溶劑完全地蒸發，但是若乾燥溫度高於 150°C 的話，則會浪費許多不必要的能量。

(5) 熱處理製程 (步驟 9)

最後，當乾燥製程進行完成之後，便進行一熱處理製程於表面具有金屬氫氧化物之無機粉末上，並且該熱處理製程係於一氧化環境下，利用 300°C~500°C 之高溫來加熱表面具有金屬氫氧化物之無機粉末大約 1~4 小時，以將該金屬氫氧化物轉化成一金屬氧化物，如此一來，無機粉末的表面便鍍有金屬氧化物。一般而言，該熱處理製程的溫度係視材料而定，本發明之較佳溫度是在 300°C 到 450°C 之間，最佳則是在 300°C 到 400°C 之間。但是，如果熱處理的溫度低於 300°C 的話，便不會產生金屬氧化物的結晶，如此一來，在積層型陶瓷電容

器的燒結製程中，便容易產生水分散失或是大量收縮，另一方面，如果溫度高於 500°C 的話，則會導致能量的浪費。

接下來，將詳述利用上述方法所製作之表面具有金屬氧化物之無機粉末的結構。

一種依據本發明之方法所製成之無機粉末，該無機粉末係包含有複數個顆粒，並且各該顆粒之表面均係塗佈有一具有均勻厚度之金屬氧化物，其中該等顆粒均係彼此分離而且沒有產生團塊化現象，並且各該金屬氧化物均僅形成於各該顆粒之表面，而沒有形成於相鄰之該等顆粒之間的空間。

本發明所使用之無機粉末係為金屬粉末，例如：鎳、銅、鈀 (Pd) 或銀，此外，本發明所使用之無機粉末亦可以是金屬氧化物粉末，例如：二氧化鈦 (TiO_2)、氧化鋯 (ZrO_2)、鈦鋯氧化物 (TiZrO_4)、三氧化二鋁 (Al_2O_3)、二氧化矽 (SiO_2)、氧化釔 (Y_2O_3)、氧化鎂 (MgO)、四氧化三錳 (Mn_3O_4)、二氧化錳 (MnO_2)、氧化鎳 (NiO)、氧化鋅 (ZnO)、或是上述氧化物的混合物。此外，本發明之金屬氧化物係為鈦 (Ti)、鋯 (Zr)、鈦 (Hf)、矽 (Si)、釩 (V)、鉻 (Cr)、錳 (Mn)、鐵 (Fe)、鈷 (Co)、鋅 (Zn)、鉛 (Pb) 或前述金屬之混合物的氧化物。

在本發明中，無機粉末內之各個顆粒的平均粒徑係介於 10nm 與 100 μm 之間，並且當平均粒徑小於 10nm 時，無機粉末便容易產生嚴重的團塊化現象，因此金屬氧化物便無法均勻地沉積在無機粉末的表面。此外，若平均粒徑大於 100 μm 時，則無機粉末便容易在溶液中形成沉澱物。另一方面，金屬氧化物之厚度大約是介於 0.1 與 500nm 之間，並且如果金屬氧化物之厚度小於 0.1nm 或大於 500nm 時，則金屬氧化物便不能均勻地沉積在無機粉末表面。

接下來所述之各實施例均是關於將二氧化鈦塗佈於鎳粉表面之方法。

第一實施例

將 5.41M 的四氯化鈦 (TiCl_4) 水溶液與丁醇 (butanol) 混合，以製成 108 毫升 (ml) 的 0.1M 四氯化鈦丁醇溶液。此外，將二乙胺 (diethylamine) 與丁醇混合，以製成 576.2 毫升的 0.2M 二乙胺丁醇溶液，其中二乙胺係用來作為一沉澱劑 (precipitation agent)。

將 6.857 克且平均粒徑為 350nm 的鎳粉加入 0.2M 的二乙胺丁醇溶液中並攪拌之，然後再加入 0.1M 四氯化鈦丁醇溶液並連續攪拌 24 小時，以進行沉積反應 (coating reaction)。

待沉積反應進行完之後，再利用丁醇來清洗鎳粉，然後將鎳粉放入 60°C 的烘箱中以進行乾燥約 24 小時。接著，進行一 SEM 分析，以觀察乾燥後之鎳粉的表面情形，由觀察結果可得知，每一個鎳顆粒均彼此分離而沒有團塊化現象產生，並且氫氧化鈦 (titanium hydroxide) 均係沉積在各個鎳顆粒的表面，而沒有沉積在鎳顆粒表面以外的地方。

圖五係為本發明第一實施例所製造之表面具有氫氧化鈦之鎳粉的 SEM 照片，其中氫氧化鈦在鎳粉中的重量百分比大約是 19wt%。

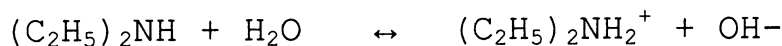
如圖五所示，每一個鎳顆粒均彼此分離而沒有團塊化現象產生，而且每一個鎳顆粒之表面均係塗佈有一具有均勻厚度之氫氧化鈦，並且氫氧化鈦係均勻地沉積在各個鎳顆粒的表面，而沒有沉積在鎳顆粒表面以外的地方。

接著，將上述之鎳粉放在空氣中並以 300°C 的溫度加熱之，以將鎳粉表面的氫氧化鈦結晶成二氧化鈦結晶。

圖六係為本發明第一實施例所製造之表面具有二氧化鈦之鎳粉的 SEM 照片。如圖六所示，每一個鎳顆粒均彼此分離而沒有團塊化現象產生，而且每一個鎳顆粒之表面均係塗佈有一具有均勻厚度之二氧化鈦，並且二氧化鈦係均勻地沉積在各個鎳顆粒的表面，而沒有沉積在鎳顆粒表面以外的地方。

第二實施例

將 6.857 克且平均粒徑為 350nm 的鎳粉加入 576.2 毫升、0.2M 的二乙胺丁醇溶液中並攪拌之，然後並加入 0.1M 四氯化鈦丁醇溶液，最後再加進 1.4 克的水。並且依據下列化學反應式，二乙胺係與水反應而產生氫氧根離子：



之後，進行前述第一實施例所述之清洗、乾燥、熱處理與 SEM 分析等步驟，並且由 SEM 分析結果可得知，每一個鎳顆粒均彼此分離而沒有團塊化現象產生，並且二氧化鈦係均勻地沉積在各個鎳顆粒的表面，而沒有沉積在鎳顆粒表面以外的地方。

第三實施例

第三實施例之步驟係與第一實施例大致相同，唯一不同之處在於二乙胺丁醇溶液的濃度係介於 0.2M 與 0.4M 之間，而四氯化鈦丁醇溶液的濃度則是介於 0.1M 與 0.2M 之間。

並且，由 SEM 分析結果可得知，每一個鎳顆粒均彼此分離而沒有團塊化現象產生，並且二氧化鈦係均勻地沉積在各個鎳顆粒的表面，而沒有沉積在鎳顆粒表面以外的地方。

第四實施例

第四實施例之步驟係與第一實施例大致相同，唯一不同之處在於二乙胺丁醇溶液的濃度係介於 0.2M 與 0.8M 之間，而四氯化鈦丁醇溶液的濃度則是介於 0.1M 與 0.4M 之間。

並且，由 SEM 分析結果可得知，每一個鎳顆粒均彼此分離而沒有團塊化現象產生，並且二氧化鈦係均勻地沉積在各個鎳顆粒的表面，而沒有沉積在鎳顆粒表面以外的地方。

第五實施例

第五實施例之步驟係與第一實施例大致相同，唯一不同之處在於第五實施例係利用環己胺(cyclohexylamine)當作沉澱劑，而不是利用二乙胺當作沉澱劑。

並且，由 SEM 分析結果可得知，每一個鎳顆粒均彼此分離而沒有團塊化現象產生，並且二氧化鈦係均勻地沉積在各個鎳顆粒的表面，而沒有沉積在鎳顆粒表面以外的地方。

第六實施例

第六實施例之步驟係與第一實施例大致相同，唯一不同之處在於第六實施例係利用丙胺(propylamine)當作沉澱劑，而不是利用二乙胺當作沉澱劑。

並且，由 SEM 分析結果可得知，每一個鎳顆粒均彼此分離而沒有

團塊化現象產生，並且二氧化鈦係均勻地沉積在各個鎳顆粒的表面，而沒有沉積在鎳顆粒表面以外的地方。

第七實施例

第七實施例之步驟係與第一實施例大致相同，唯一不同之處在於第七實施例係利用丁胺(butylamine)當作沉澱劑，而不是利用二乙胺當作沉澱劑。

並且，由 SEM 分析結果可得知，每一個鎳顆粒均彼此分離而沒有團塊化現象產生，並且二氧化鈦係均勻地沉積在各個鎳顆粒的表面，而沒有沉積在鎳顆粒表面以外的地方。

第八實施例

第八實施例之步驟係與第一實施例大致相同，唯一不同之處在於第八實施例係利用丙醇(propanol)當作分散介質(或溶劑)，而不是利用丁醇當作分散介質(或溶劑)。

並且，由 SEM 分析結果可得知，每一個鎳顆粒均彼此分離而沒有團塊化現象產生，並且二氧化鈦係均勻地沉積在各個鎳顆粒的表面，而沒有沉積在鎳顆粒表面以外的地方。

第九實施例

第九實施例之步驟係與第一實施例大致相同，唯一不同之處在於第九實施例係利用乙醇(ethanol)當作分散介質(或溶劑)，而不是利用丁醇當作分散介質(或溶劑)。

並且，由 SEM 分析結果可得知，每一個鎳顆粒均彼此分離而沒有團塊化現象產生，並且二氧化鈦係均勻地沉積在各個鎳顆粒的表面，

而沒有沉積在鎳顆粒表面以外的地方。

第十實施例

第十實施例之步驟係與第一實施例大致相同，唯一不同之處在於第十實施例係利用甲醇(methanol)當作分散介質(或溶劑)，而不是利用丁醇當作分散介質(或溶劑)。

並且，由 SEM 分析結果可得知，每一個鎳顆粒均彼此分離而沒有團塊化現象產生，並且二氧化鈦係均勻地沉積在各個鎳顆粒的表面，而沒有沉積在鎳顆粒表面以外的地方。

第一實施例之對照組(Comparative Example 1)

將 5.41M 的四氯化鈦 TiCl_4 水溶液稀釋成 108 毫升、0.1M 的四氯化鈦水溶液，並利用重量百分比為 29wt% 之氨水來作為一沉澱劑。

將 6.857 克且平均粒徑為 350nm 的鎳粉加入 576.2 毫升的水中並攪拌之，然後再利用一滴定器(burette)來將 108 毫升、0.1M 四氯化鈦水溶液加入前述之鎳粉水溶液，為使溶液的 pH 值維持在 10 左右，當四氯化鈦水溶液被加入鎳粉水溶液時，通常會再利用一滴定器來將 29wt% 之氨水加入鎳粉水溶液中。

然後，連續攪拌上述混合液約 1 小時，以將氫氧化鈦沉積於鎳的表面上，隨後再利用乙醇來清洗鎳粉，並將鎳粉放入 60°C 的烘箱中以進行乾燥約 24 小時。

接著，進行一 SEM 分析，以觀察乾燥後之鎳粉的表面情形，由觀察結果可得知，鎳粉內的各個鎳顆粒係產生嚴重的團塊化現象，而且氫氧化鈦不僅沉積在各個鎳顆粒的表面，同時也沉積在鎳顆粒表面以

外的地方。

接著，將上述之鎳粉放在空氣中並以 300°C 的溫度加熱之，以將鎳粉表面的氫氧化鈦結晶成二氧化鈦結晶。此外，請參考圖三，圖三係為依據第一實施例之對照組所製造之表面具有氫氧化鈦之鎳粉的 SEM 照片。如圖三所示，有一些氫氧化鈦係凝結成塊而沒有沉積於鎳粉的表面，而且部分鎳顆粒的表面因為沒有鍍有氫氧化鈦而裸露於外，此外，在使氫氧化鈦結晶成二氧化鈦結晶的熱處理過程中，氫氧化鈦的凝結塊仍然存在，而且當該熱處理進行的越久，氫氧化鈦的凝結塊的凝聚力更會隨著增加。

以上所述僅為本發明之較佳實施例，凡依本發明申請專利範圍所做之均等變化與修飾，皆應屬本發明專利之涵蓋範圍。

【圖式簡單說明】

圖式之簡單說明

圖一係為鈦酸鋇介電層 100 與鎳電極圖案 200 的製造示意圖。

圖二係為利用溶膠凝膠法來將二氧化鈦塗佈於鎳粉表面之方法流程圖。

圖三係為利用圖二之方法所製成之鎳粉的 SEM 照片。

圖四係為本發明之製造一具有金屬氧化物之無機粉末的方法流程圖。

圖五係為本發明第一實施例所製造之表面具有氫氧化鈦之鎳粉的 SEM 照片。

圖六係為本發明第一實施例所製造之表面具有二氧化鈦之鎳粉的 SEM 照片。

圖式之符號說明

1、3、5、7、9			步驟
100	鈦酸鋇粉末介電層	200	鎳粉末電極圖案
300	切割線		

伍、中文發明摘要：

本發明係提供一種無機粉末的表面塗佈方法，該方法係先提供一醇溶性金屬鹽之醇類溶液與一胺類化合物之醇類溶液，然後，將一無機粉末與水加入該醇溶性金屬鹽之醇類溶液與該胺類化合物之醇類溶液之內並攪拌之，以將該醇溶性金屬鹽所形成之一金屬氫氧化物塗佈於該無機粉末之表面，此外，由於本發明所製造之無機粉末係不會產生塊狀化現象，而且金屬氧化物均係均勻地沉積在各個無機粉末的表面，因此，利用本發明所製成之鎳粉來製作鎳電極，不僅可提升積層型陶瓷電容器的品質，更可增加積層型陶瓷電容器的良率。

陸、英文發明摘要：

The present invention provides a method of coating the surface of an inorganic powder comprising; (a) providing an alcohol solution of an alcohol-soluble metal salt and an alcohol

solution of an amine compound; and (b) mixing and stirring the two alcohol solutions with an inorganic powder and water, thereby coating the surface of the inorganic powder with a metal hydroxide produced from the alcohol-soluble metal salt. The inorganic powders coated with metal oxide manufactured according to the present invention exist independently without substantial agglomeration, and the metal oxide coating is deposited substantially only on the surface of the inorganic powder with uniform thickness without substantial clustering among the inorganic powders. Consequently, when a Ni electrode layer is prepared using the titanium oxide coated Ni powders manufactured according to the present invention, not only quality but also yield of MLCC can be improved.

拾、申請專利範圍：

1. 一種無機粉末的表面塗佈方法，該方法包含有：
 - (a) 提供一醇溶性金屬鹽之醇類溶液與一胺類化合物之醇類溶液；以及
 - (b) 將一無機粉末與水加入該醇溶性金屬鹽之醇類溶液與該胺類化合物之醇類溶液之內並攪拌之，以將該醇溶性金屬鹽所形成之一金屬氫氧化物 (metal hydroxide) 塗佈於該無機粉末之表面。
2. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中該方法另包含有：
 - 進行一乾燥製程，以乾燥該無機粉末；以及
 - 進行一熱處理製程，以於一氧化環境 (oxidative atmosphere) 下，利用 300°C~500°C 之高溫加熱該無機粉末，以將該金屬氫氧化物轉換成一金屬氧化物。
3. 如申請專利範圍第 2 項之方法，其中於該乾燥製程與該熱處理製程進行之前，該方法另包含有一清洗製程，以利用一低級脂肪醇 (lower aliphatic alcohol) 來清洗表面具有該金屬氫氧化物之該無機粉末，並且該低級脂肪醇係具有 1 到 4 個碳原子。
4. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中步驟 (b) 之攪拌時間大約是 12~72 小時，並且該無機粉末的濃度係介於 0.1M 與 1.5M 之間，該醇溶性金屬鹽的濃度係介於 0.1M 與 1.5M 之間，該胺類化合物的濃度係介於 0.2M 與 3.0M 之間，而水的濃度係介於 0.05M 與 0.3M 之間。
5. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中於步驟 (b) 中，該無

機粉末可以是粉末狀或是分散於醇類溶液 (alcohol) 之內。

6. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中該醇類溶液係為一種具有 1 到 5 個氫氧 (OH) 基團之醇類化合物，並且該醇類溶液在室溫下係為液態。

7. 如申請專利範圍第 6 項之方法，其中該醇類溶液係為 C1~C7 脂肪單醇化合物 (C1~C7 aliphatic mono-ol compound)、C6~C9 芳香單醇化合物 (C6~C9 aromatic mono-ol compound)、C4~C7 脂環單醇化合物 (C4~C7 alicyclic mono-ol compound)、C3~C7 雜環單醇化合物 (C3~C7 heterocyclic mono-ol compound)、C2~C7 脂肪雙醇化合物 (C2~C7 aliphatic di-ol compound)、或 C2~C7 脂肪三醇化合物 (C2~C7 aliphatic tri-ol compound)。

8. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中該無機粉末係選自於鎳、銅、鈀 (Pd) 與銀所組成之一族群。

9. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中該無機粉末係選自於二氧化鈦 (TiO_2)、氧化鋯 (ZrO_2)、鈦鋯氧化物 (TiZrO_4)、三氧化二鋁 (Al_2O_3)、二氧化矽 (SiO_2)、氧化釷 (Y_2O_3)、氧化鎂 (MgO)、四氧化三錳 (Mn_3O_4)、二氧化錳 (MnO_2)、氧化鎳 (NiO)、與氧化鋅 (ZnO) 所組成之一族群。

10. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中該胺類化合物係選自於甲基胺 (methyl amine)、二甲基胺 (di-methyl amine)、三甲基胺 (tri-methyl amine)、乙基胺 (ethyl amine)、二乙胺 (di-ethyl amine)、三乙胺 (tri-ethyl amine)、正丙胺 (n-propyl amine)、異丙胺 (iso-propyl amine)、正

丁胺 (n-butyl amine)、第二丁胺 (sec-butyl amine)、異丁胺 (iso-butylamine)、第三丁胺 (tert-butylamine)、環己胺 (cyclohexylamine)、苯甲胺 (benzylamine)、 α -苯基乙胺 (α -phenylethylamine)、 β -苯基乙胺 (β -phenylethylamine)、乙二胺 (ethylenediamine)、四二胺 (tetramethylenediamine)、己二胺 (hexamethylenediamine)、苯胺 (aniline)、甲苯胺 (methylaniline)、二甲基苯胺 (dimethylaniline)、二苯胺 (diphenylamine)、三苯基胺 (triphenylamine)、鄰-甲苯胺 (o-toluidine)、間-甲苯胺 (m-toluidine)、對-甲苯胺 (p-toluidine)、鄰-甲氧苯胺 (o-anisidine)、間-甲氧苯胺 (m-anisidine)、對-甲氧苯胺 (p-anisidine)、鄰-氯苯胺 (o-chloroaniline)、間-氯苯胺 (m-chloroaniline)、對-氯苯胺 (p-chloroaniline)、鄰-溴苯胺 (o-bromoaniline)、間-溴苯胺 (m-bromoaniline)、對-溴苯胺 (p-bromoaniline)、鄰-硝基苯胺 (o-nitroaniline)、間-硝基苯胺 (m-nitroaniline)、對-硝基苯胺 (p-nitroaniline)、2,4,5-三硝基苯胺 (2,4,5-trinitroaniline)、2,4,6-三硝基苯胺 (2,4,6-trinitroaniline)、鄰-苯二胺 (o-phenylenediamine)、間-苯二胺 (m-phenylenediamine)、對-苯二胺 (p-phenylenediamine)、聯苯胺 (benzidine)、對氨基苯甲酸 (p-aminobenzoic acid)、與胺基苯磺酸 (sulfanilic acid) 所組成之一族群。

11. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中該醇溶性金屬鹽係包含有鈦 (Ti)、鋯 (Zr)、鈪 (Hf)、矽 (Si)、釩 (V)、鉻 (Cr)、錳 (Mn)、鐵 (Fe)、鈷 (Co)、鋅 (Zn)、鉛 (Pb) 或前述金屬之混

合物的氯化物 (chlorides)、硫酸鹽類 (sulfates)、亞硝酸鹽 (nitrates)、醋酸鹽 (acetates)、或醇鹽 (alkoxides)。

12. 如申請專利範圍第 2 項之方法，其中該金屬氫氧化物係包含有鈦 (Ti)、鋯 (Zr)、鈦 (Hf)、矽 (Si)、釩 (V)、鉻 (Cr)、錳 (Mn)、鐵 (Fe)、鈷 (Co)、鋅 (Zn)、鉛 (Pb) 或前述金屬之混合物的氫氧化物 (hydroxide)。

13. 一種表面塗佈有一金屬氧化物之無機粉末，並且該無機粉末係依據申請專利範圍第 1 項至第 12 項所述之方法製作而成。

14. 一種無機粉末，該無機粉末係包含有複數個顆粒，並且各該顆粒之表面均係塗佈有一具有均勻厚度之金屬氧化物，其中該等顆粒均係彼此分離而且沒有產生團塊化現象，並且各該金屬氧化物均僅形成於各該顆粒之表面，而沒有形成於相鄰之該等顆粒之間的空間。

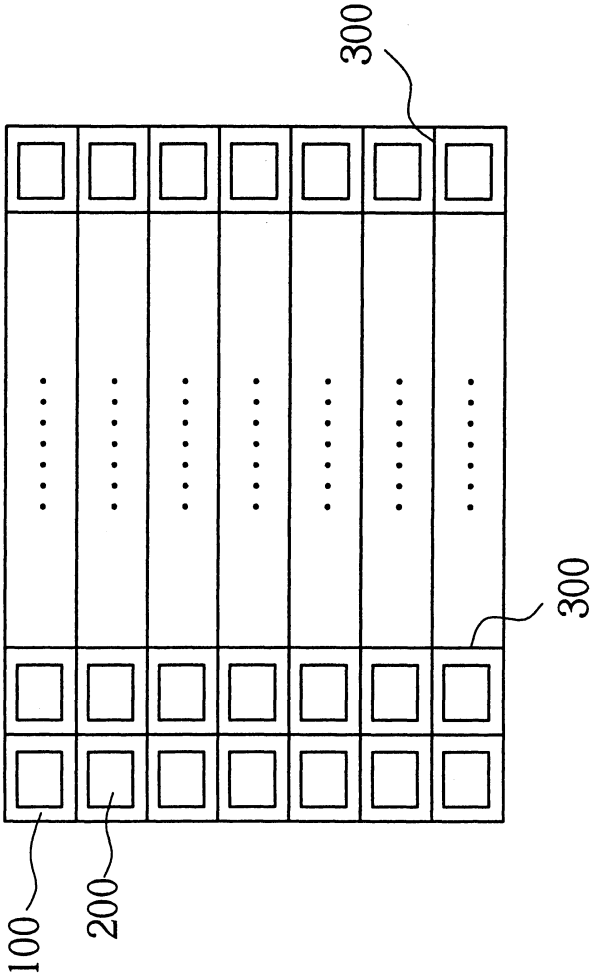
15. 如申請專利範圍第 14 項之無機粉末，其中該無機粉末係選自於鎳、銅、鈀 (Pd) 與銀所組成之一族群。

16. 如申請專利範圍第 14 項之無機粉末，其中該無機粉末係選自於二氧化鈦 (TiO_2)、氧化鋯 (ZrO_2)、鈦鋯氧化物 (TiZrO_4)、三氧化二鋁 (Al_2O_3)、二氧化矽 (SiO_2)、氧化釔 (Y_2O_3)、氧化鎂 (MgO)、四氧化三錳 (Mn_3O_4)、二氧化錳 (MnO_2)、氧化鎳 (NiO)、與氧化鋅 (ZnO) 所組成之一族群。

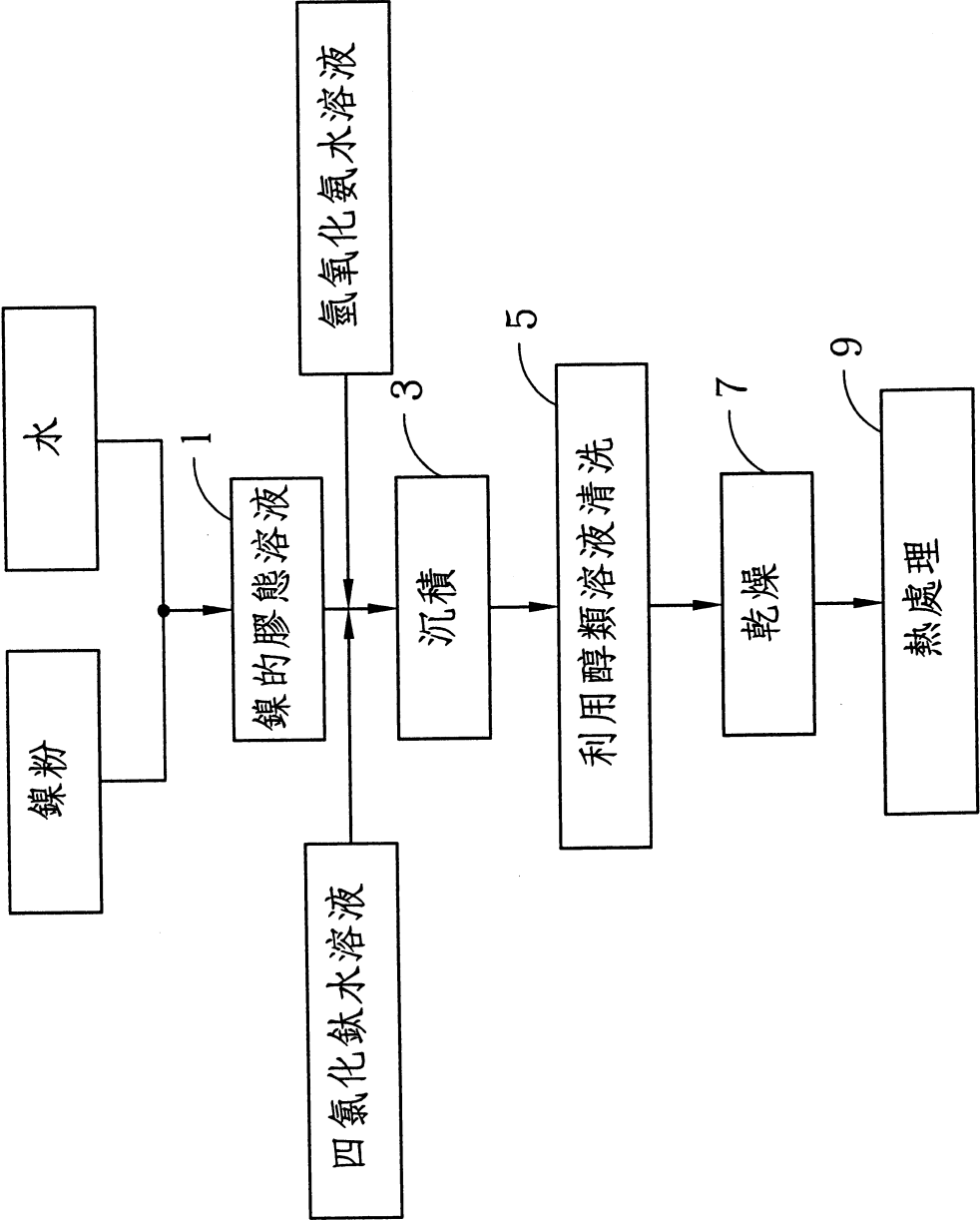
17. 如申請專利範圍第 14 項之無機粉末，其中該金屬氧化物係為二氧化鈦 (TiO_2)、氧化鎂 (MgO)、二氧化矽 (SiO_2)、鈦酸鋇 (BaTiO_3)、或稀土金屬氧化物 (rare-earth metal

oxide)。

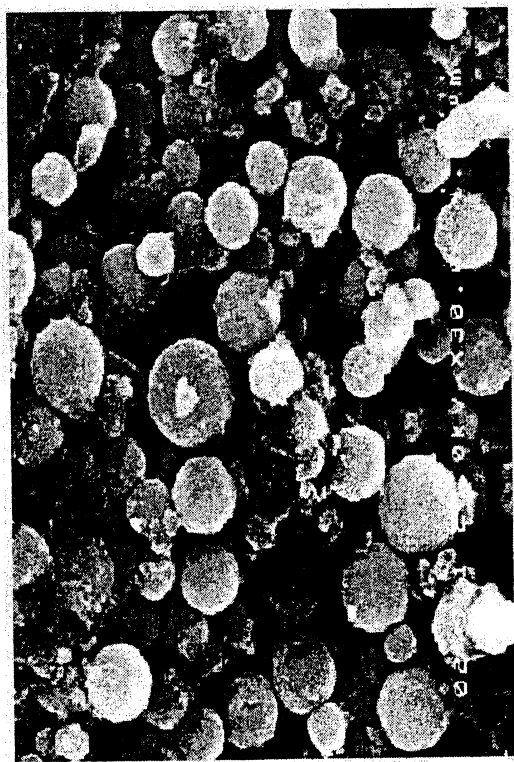
18. 如申請專利範圍第 14 項之無機粉末，其中該無機粉末之各該顆粒之平均粒徑係介於 10nm 與 100 μ m 之間，而該金屬氧化物之厚度係介於 0.1 與 500nm 之間。



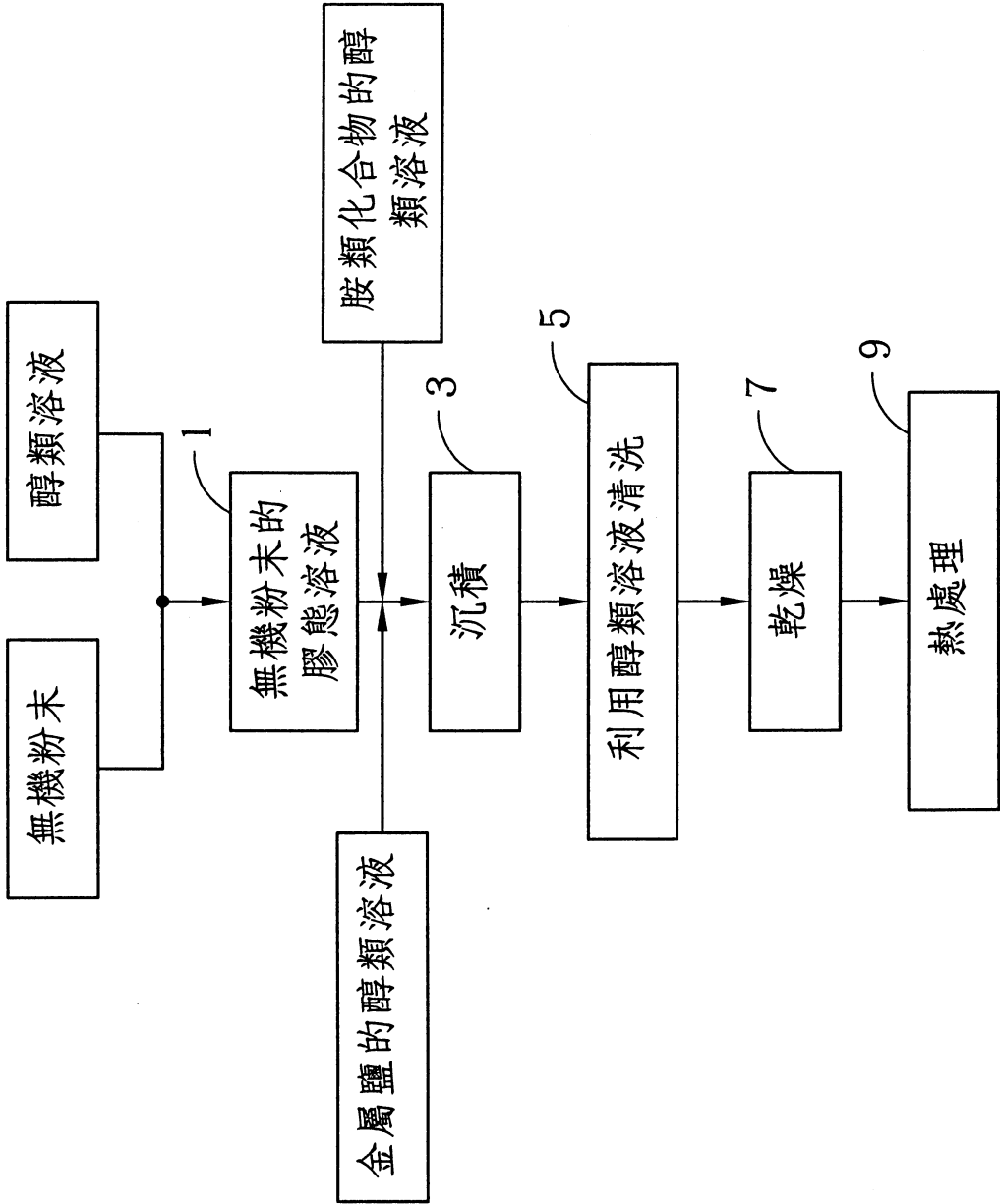
圖一



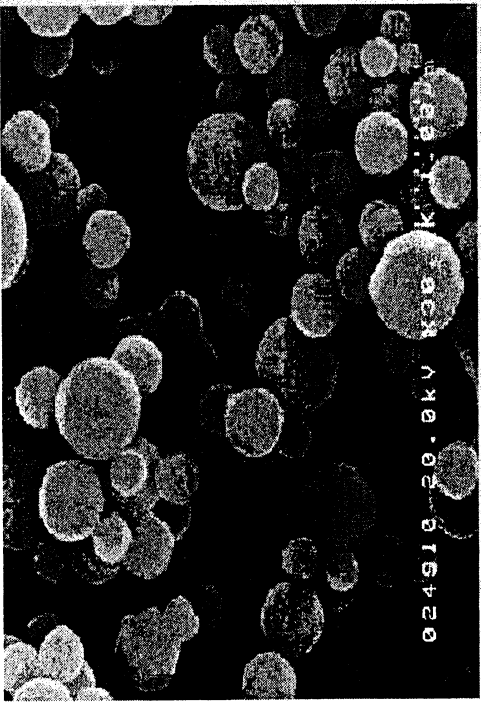
圖二



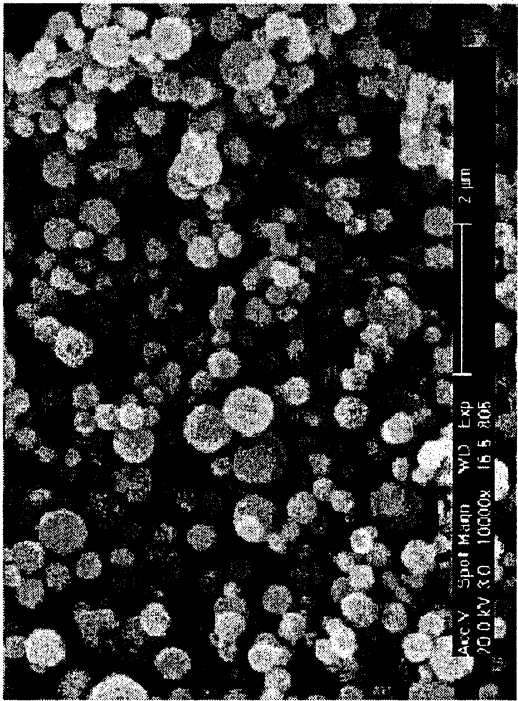
三
圖



圖四



圖五



圖六

柒、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第（ 四 ）圖。

(二)本代表圖之元件代表符號簡單說明：

1、3、5、7、9

步驟

捌、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

無

93.4.5
發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：93104144

※申請日期：93.2.19

※IPC 分類：C23C18/00

壹、發明名稱：(中文/英文)

無機粉末的表面塗佈方法及使用該方法所形成之無機粉末/A METHOD OF COATING
THE SURFACE OF AN INORGANIC POWDER AND A COATED INORGANIC POWDER
MANUFACTURED USING THE SAME

貳、申請人：(共1人)

姓名或名稱：(中文/英文)

三星電子股份有限公司/SAMSUNG ELECTRONICS CO., LTD.

代表人：(中文/英文) 尹鍾龍/YUN, JONG-YONG

住居所或營業所地址：(中文/英文) 大韓民國 京畿道 水原市 靈通區 梅
灘洞 416 番地/416, Maetan-dong, Yeongtong-gu, Suwon-si, Gyeonggi-do,
Republic of Korea

國籍：(中文/英文) 大韓民國/ Republic of Korea

參、發明人：(共3人)

姓名：(中文/英文)

1. 崔在榮/CHOI, JAE-YOUNG
2. 李鍾欣/LEE, JONG-HEUN
3. 洪性賢/HONG, SEONG-HYEON

住居所地址：(中文/英文)

1. 大韓民國 京畿道 水原市 靈通區 靈通洞 955-1 番地

凰谷 Maeul 住公 1 團地 APT.155 棟 802 號/155-802 Hwanggol Maeul
Jugong 1-danji Apt., 955-1 Yeongtong-dong, Yeongtong-gu,
Suwon-si, Gyeonggi-do, Republic of Korea

2. 大韓民國 京畿道 果川市 別陽洞 6 番地 住公 5 團地 APT.501 棟
1106 號/501-1106 Jugong 5-danji Apt., 6 Byeolyang-dong,
Gwacheon-si, Gyeonggi-do, Republic of Korea

3. 大韓民國 漢城市 松坡區 可樂洞 95-1 番地 可樂錦湖 APT.102 棟
703 號/102-703 Garak Geumho Apt., 95-1 Garak-dong, Songpa-gu,
Seoul, Republic of Korea

國 籍：(中文/英文)

1. 大韓民國/ Republic of Korea
2. 大韓民國/ Republic of Korea
3. 大韓民國/ Republic of Korea

肆、聲明事項：

☐ 本案係符合專利法第二十條第一項 ☐ 第一款但書或 ☐ 第二款但書規定之期間，其日期為： 年 月 日。

◎本案申請前已向下列國家（地區）申請專利 ☒ 主張國際優先權：

【格式請依：受理國家（地區）；申請日；申請案號數 順序註記】

1. 大韓民國/ Republic of Korea; 2003/02/19; 10-2003-0010415

2.

3.

4.

5.

☐ 主張國內優先權(專利法第二十五條之一)：

【格式請依：申請日；申請案號數 順序註記】

1.

2.

☐ 主張專利法第二十六條微生物：

☐ 國內微生物 【格式請依：寄存機構；日期；號碼 順序註記】

☐ 國外微生物 【格式請依：寄存國名；機構；日期；號碼 順序註記】

☐ 熟習該項技術者易於獲得，不須寄存。