

申請日期	91. 9. 4
案 號	91120160
類 別	C04B 35/468

(以上各欄由本局填註)

公告本^{A4}_{C4}

555719

發明專利說明書

一、發明 新 型 名 稱	中 文	介電陶瓷組合物
	英 文	"DIELECTRIC CERAMIC COMPOSITION"
二、發明 人 創 作	姓 名	1.伊藤 和弘 KAZUHIRO ITO 2.增村 均 HITOSHI MASUMURA
	國 籍	1-2.均日本 JAPAN
	住、居所	1.日本國神奈川縣相模原市當麻752-1-II204 752-1 II204, TAIMA, SAGAMIHARA-SHI, KANAGAWA, JAPAN 2.日本國新潟縣新潟市中島2-1-27-526 2-1-27-526, NAKAJIMA, NIIGATA-SHI, NIIGATA, JAPAN
三、申請人	姓 名 (名 稱)	荷蘭商皇家飛利浦電子股份有限公司 KONINKLIJKE PHILIPS ELECTRONICS N. V.
	國 籍	荷蘭 THE NETHERLANDS
	住、居所 (事務所)	荷蘭愛因和文市格羅尼渥街1號 GROENEWOUDSEWEG 1, 5621 BA EINDHOVEN, THE NETHERLANDS
	代 表 人 姓 名	J. L. 凡 德 渥 J. L. VAN DER VEER

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大 類：
I P C 分類：

A6

B6

本案已向：

國(地區) 申請專利，申請日期： 案號： ，☐有 ☐無主張優先權日本 2001年08月21日 2001-250312 ☐有☒無主張優先權

有關微生物已寄存於： 寄存日期： ，寄存號碼：

五、發明說明(1)

發明背景

發明範圍

本發明關於一種含有鈦酸鋇系氧化物之介電陶瓷組合物，更特別地關於一種適用於構成在微波(數個GHz)區操作之電子元件材料之介電陶瓷組合物。

相關技藝描述

介電陶瓷組合物已廣泛地用於電路板、電子元件或其類似物。近年來，由於電子設備(例如以可攜帶式電話為代表之行動通訊設備)已在全世界變得愈來愈普遍，且已增進此類設備之高效能需求，故介電陶瓷組合物之利用對於含於此類電子設備中之RF(無線電頻率)電流元件逐漸變成必須的。

適用於無線電頻率電流元件之介電陶瓷組合物是必要的，俾提供於電氣性質(例如介電性質及共振頻率之溫度依賴性(靜電電容))之優越性。更詳細地，以下電氣性質對於該介電陶瓷組合物是必要的。意即，例如在1GHz下，相對介電常數為約18至30，Q值高達約8000或更大(換言之，介電損失少)，且共振頻率之溫度依賴性滿足由EIA標準所定義之NPO特性(在-25°C至85°C之溫度範圍內(集中於約25°C)，共振頻率之變化必須在 ± 10 ppm/°C內)。此外，最近，介電陶瓷組合物在許多情形中係與金屬線路圖案一起燒結，俾製造電子元件，例如多層天線(MLA)及RF模組，且另外地，已擴大低價格電子元件之需求。為了符合此種製造趨勢及滿足此需求，甚至在用以

五、發明說明(2)

形成金屬線路圖案之低成本材料之情形中，例如銀(Ag：其熔點為約961°C)及銅(Cu：其熔點為約1083°C)，介電陶瓷組合物必須在低於此類低成本材料之溫度燒結，俾不使材料熔化。

已知具有優越性質且用於無線電頻率電流元件之介電陶瓷組合物係藉由例如BaO-MgO-Ta₂O₅-MnO₂系材料(例如Ba(Mg_{1/3}，Ta_{2/3})O₃及Ba(Mn_{1/2}，Ta_{1/2})O₃)、MgO-TiO₂-CaO系材料(例如(Mg_{0.95}，Ca_{0.05})TiO₃及藉著以鋇(Sr)取代BaTi₄O₉之部分鈦(Ti)且接著添加預定量鎂(Mg)之材料而實現。然而，所有的此等組合物具有缺點。意即，此等組合物必須在溫度等於或高於1250°C之溫度下燒結，因此不能與上述用於形成金屬線路圖案之低成本材料一起燒結。

此外，雖然已知可使用藉由添加錫(Sn)、鋯(Zr)、硼(B)、鋰(Li)等至MgO-TiO₂-CaO系所形成之材料用作供高頻率電流用之介電陶瓷組合物，該介電陶瓷組合物可在低溫(即900°C至1050°C)燒結，此組合物之電氣性質(特別是Q值)較差。再者，在一些可在低溫下燒結之組合物中已發現到問題。意即，此類組合物通常含有鉛(Pb)，因而不利地影響環境，同時使其電氣性質惡化。

當考慮到此等問題時，一種新穎的介電陶瓷組合物已構想出且揭示於日本專利特許公開申請案第2000-281442中，其中介電陶瓷組合物係藉著以鋯取代BaTi₄O₉之部分鈦(Ti)且接著添加預定量鋅(Zn)、硼、鋰、鈣(Ca)、矽(Si)、銀及銅至該經取代的BaTi₄O₉而形成。然而，如上

五、發明說明(3)

述形成之介電陶瓷組合物無法充分地滿足上述之共振頻率溫度依賴性需求。此外，由於介電陶瓷組合物含有 B_2O_3 及 Li_2CO_3 總和超過約6重量%，且 B_2O_3 增進由每一上述元素所組成之化合物的玻璃化作用(非晶體化作用)，故含於玻璃態組合物中之鋰容易地展現離子傳導性，可能地造成組合物所必須之電氣絕緣惡化。

除了上述問題外，揭示於日本專利特許公開申請案第2000-281442中之介電陶瓷組合物顯示其他的問題。意即，介電陶瓷組合物含有大量的 B_2O_3 及 Li_2CO_3 ，二者易與來自空氣之水反應，因而展現低的化學耐久性(此性質對於介電陶瓷組合物之可靠性而言是不利的)。

發明概述

於考慮含於習用技術中之上述問題時，可構想出本發明，因而本發明之第一目的為提供一種介電陶瓷組合物，其可在低溫下燒結且提供電氣性質(特別地為共振頻率之溫度依賴性)之優越性。本發明之第二目的為提供一種展現較佳化學耐久性之介電陶瓷組合物。

根據本發明之介電陶瓷組合物包含含有鋇(Ba)、鈦(Ti)及氧(O)且具有以 $BaTi_xO_{2x+1}$ ($3.5 \leq x \leq 5.0$)表示之組合式之氧化物；由至少一種鹼土金屬、矽、鋅、鋁(Al)、鈦、銅、鉍(Bi)及鉬(Mo)所組成之第一化學元素組；及由至少一種鹼金屬及硼所組成之第二化學元素組，其中於第一及第二化學元素組中之個別化學元素總和對氧化物(個別化學元素總和/氧化物)之重量比，當藉著轉化個別化學元

五、發明說明(4)

素為其氧化物決定比例時，係介於45/55及65/35間，第二化學元素組對第一化學元素組(第二化學元素組/第一化學元素組)之重量比，當藉著轉化該個別化學元素為其氧化物決定比例時，係介於0.01及0.10間。應注意"當藉著轉化個別化學元素為其氧化物決定比例時"一語代表每一化學成分之重量轉化為其氧化物之重量之情形。

上述的介電陶瓷組合物可含有鎂、鈣、鋁及鋇作為鹼土金屬。介電陶瓷組合物可含有至少鋰作為鹼金屬。

以根據本發明之介電陶瓷組合物，由於第一及第二化學元素組中之個別化學元素總和對氧化物之重量比當藉著轉化個別化學元素為其氧化物決定比例時係介於45/55及65/35間，且進一步地，第二化學元素組對第一化學元素組之重量比當藉著轉化個別化學元素為其氧化物決定比例時係介於0.01及0.10間，介電陶瓷組合物之燒結溫度可降低，且介電陶瓷組合物能具有優越的電氣性質，更特別地具有所需的相對介電常數及高Q值，同時提供優越的共振頻率溫度依賴性。組合物的化學耐久性可經改良。由於可使用純水作為溶劑(替代有機溶劑)製造組合物，用以製得本發明組合物之製造步驟可促成環境保護。

發明詳述

圖1係為顯示與本發明實例1至5有關的介電陶瓷組合物之建構以及藉由測量每一組合物特性所得到的結果之表。

圖2係為顯示與本發明實例6至10有關的介電陶瓷組合物之建構以及藉由測量每一組合物特性所得到的結果之

五、發明說明(5)

表。

圖3係為顯示與本發明比較例1至5有關的介電陶瓷組合物之建構以及藉由測量每一組合物特性所得到的結果之表。

圖4係為顯示與本發明比較例6至8有關的介電陶瓷組合物之建構以及藉由測量每一組合物特性所得到的結果之表。

較佳具體實施例說明

本發明之較佳具體實施例說明將於以下更詳細地說明。

根據本發明具體實施例之介電陶瓷組合物(以下亦簡單地稱為組合物)係用於各種濾波器、雙工器、介電天線或利用所謂的LTCC(低溫共焙燒陶瓷)技術之各種被動元件。以此種LTCC技術,可製得具內部導體之多層基板。可以已知的方法於導體繪圖,以定義出電感器、管線、內連接線、電容器、電極及其類似物。介電陶瓷組合物係含有具有以 $\text{BaTi}_x\text{O}_{2x+1}$ ($3.5 \leq x \leq 5.0$)表示之組合式之鈦酸鋇系氧化物。為何"x"必須限制於上述範圍內之理由如下。意即,於"x"小於3.5之情形中,組合物損失順介電性質,且實質上具鐵電性質,因此,於微波區域中之Q值變得極小。在另一方面,於"x"大於5.0之情形中,組合物必須在較高溫度下燒結,因而幾乎不能在溫度低於銀熔點(例如等於或低於 930°C)燒結。應注意,"x"較佳為介於3.8及4.4間。

介電陶瓷組合物亦含有第一化學元素組,其係由至少一

五、發明說明(6)

種鹼土金屬、矽、鋅、鋁、鈦、銅、鈹及鉬所組成。作為鹼土金屬者包含例如鎂、鈣、鋇及鋇。介電陶瓷組合物尚含有第二化學元素組，其係由至少一種鹼金屬及硼所組成。作為鹼金屬者包含例如鋰及鈉。

在本發明之介電陶瓷組合物中，第一及第二化學元素組中之個別化學元素總和對氧化物(個別化學元素總和/氧化物)之重量比，當藉著轉化該個別化學元素為其氧化物決定比例時，係介於45/55及65/35間。其理由如下：於比例較最大值更大量的氧化物含於組合物之情形中，Q值變小，且組合物必須在較高溫度下燒結；且相反地，於較少量的氧化物含於組合物之情形中，相對介電常數變小。此比例較佳為介於50/50及60/40間，更佳為介於53/47及58/42間。應注意此等比例可視情況改變(取決於組合物欲使用的情況)。

在組合物中，第二化學元素組對第一化學元素組(第二化學元素組/第一化學元素組)之重量比係選用介於0.01及0.10間。理由在於，一般而言，於組合物代表高的複雜度或結晶度之情形中，Q值變得較大，且於比例在上述範圍內之情形中，組合物同時於複雜度及結晶度方面展現優越性，同時具有大Q值。此比較較佳為介於0.02及0.08間，更佳為介於0.03及0.06間。

於比例(第二化學元素組/第一化學元素組)落於上述範圍外之情形中，以下問題發生。當第二化學元素組(即鹼金屬及硼)對第一化學元素組之比例大於必要時，第一化

五、發明說明(7)

學元素組之驗證增加，因此，組合物損失其結晶度。此外，如習用技術說明之解釋，驗證的組合物容許鋰含於組合物中，俾容易地展現離子傳導性，很可能造成組合物所需之電絕緣及電耐久性惡化。在另一方面，當組合物含有極少量鹼金屬及硼時，組合物必須在較高溫度下燒結，因此，當組合物在低溫下燒結時，組合物損失其複雜度。因此，組合物具有較小的Q值及吸濕性質，故降低其電絕緣能力。再者，當組合物含有大量作為鹼金屬之鋰且以作為溶劑之水於製造組合物時處理時，鋰化合物與純水反應而產生熱量，此現象不利地影響大量生產率(關於組合物)，且使與製造組合物有關的濕混合均勻性惡化，因此，組合物不可避免地係藉著使用有機溶劑製得，造成對環境不利的影響。

在第一化學元素組中，矽係用以使組合物具有較高的Q值、較低的相對介電常數及負值共振頻率溫度依賴性(在以下，共振頻率溫度依賴性亦以 τf 表示)。再者，例如熔點非常高(約 1800°C)的 SiO_2 可於製造組合物時用作矽的起始材料，且當 SiO_2 含於組合物中較所需為多時，欲燒結組合物之溫度不利地變高。因此，為了使組合物具有所欲的電氣性質且如所欲地在相關溫度下燒結，矽對第一化學元素組中個別化學元素總和之比例，當藉著轉化個別化學元素為其氧化物決定比例時，較佳在15.0至40.0重量%之範圍內。因此，較佳使組合物於製造組合物時含有 SiO_2 ，使得 SiO_2 對第一化學元素組之起始材料總和之比例為在15.0

五、發明說明(8)

至40.0重量%之範圍內。此外，此比例較佳在18.0至30.0重量%之範圍內。應注意較佳形成具有平均粒徑等於或小於50毫微米之 SiO_2 。理由為 SiO_2 之平均粒徑為主要影響化合物燒結程度之因素，且當直徑等於或小於50毫微米時，組合物可容易地燒結(降低組合物所欲燒結之溫度)。

鋅係用以使組合物具有較低的Q值、較高的相對介電常數及負值 τ_f 。例如， ZnO 可用作組合物中鋅的起始材料。由於 ZnO 與 SiO_2 及後述之 Al_2O_3 (用作鋁的起始材料)反應，以便在低溫下(例如約 850°C)形成液相，故於製造組合物時，藉著使組合物含有適量的 ZnO ，組合物可有利地在低溫下燒結。為了使組合物具有所欲的電氣性質且如所欲地在相關溫度下燒結，較佳使組合物含有 ZnO ，使得 ZnO 對第一化學元素組之起始材料總和之比例為在18.0至48.0重量%之範圍內，更佳地在22.0至38.0重量%之範圍內。

鋁係用以使組合物具有較高的Q值、較低的相對介電常數及負值 τ_f 。例如， Al_2O_3 可用作組合物中鋁的起始材料，且 Al_2O_3 之熔點非常高(約 2000°C)。因此，當 Al_2O_3 含於組合物中較所需為多時，組合物必須在較高溫度下燒結，造成類似於組合物中藉由使用上述 SiO_2 所觀察到之不佳的現象。為了使組合物具有所欲的電氣性質且如所欲地在相關溫度下燒結，較佳使組合物含有 Al_2O_3 ，使得 Al_2O_3 對第一化學元素組之起始材料總和之比例為在5.0至14.0重量%之範圍內，更佳地在6.0至12.0重量%之範圍內。

五、發明說明(9)

鈦係用以使組合物具有較高的Q值、較高的相對介電常數及大的正值 τ_f 。如同上述矽、鋅及鋁之情形，一般而言，用以使組合物具有較高Q值之成分係用以使組合物具有較低的相對介電常數及負值 τ_f 。因此，對於調整組合物之相對介電常數及 τ_f 而言，鈦是有效的。較佳使組合物含有鈦，使得鈦對第一化學元素組之起始材料總和之比例當藉著轉化個別化學元素為其氧化物決定比例時，為在5.0至15.0重量%之範圍內，且較佳使組合物於製造組合物時含有鈦的起始材料(例如TiO₂)，使得鈦的起始材料對第一化學元素組之起始材料總和之比例落在上述範圍內。其係因為當比例變為低於5.0重量%時，鈦調整組合物 τ_f 之能力降低，且當比例超過15.0重量%時，欲燒結組合物之溫度變高，且當比例落在上述範圍內時，組合物能具有所欲的電氣性質且在所欲的溫度下燒結。此比例更佳為在6.0至13.0重量%之範圍內。

CuO可例如用作組合物中之起始材料，且CuO係有利地能降低溫度至欲燒結組合物之極端的程度。其係因為CuO之熔點(約1148°C)較構成組合物之其他元素之起始材料為低，且此等材料之共熔點可藉由添加CuO至起始材料而降低。應注意銅係用以使組合物具有較低的Q值及大的負值 τ_f 。為了使組合物具有所欲的電氣性質且如所欲地在相關溫度下燒結，較佳使組合物在製造組合物時含有CuO，使得CuO對第一化學元素組之起始材料總和之比例為在0.2至8.0重量%之範圍內，更佳地在0.8至4.0重量

五、發明說明 (10)

%之範圍內。

鉍係用以使組合物具有較低的Q值及負值 τ_f 。 Bi_2O_3 可例如用作組合物中鉍的起始材料，且此起始材料有利地能降低溫度至欲燒結組合物之溫度，此能力係在銅之起始材料說明中解釋。 Bi_2O_3 之熔點為約 820°C 。為了使組合物具有所欲的電氣性質且如所欲地在相關溫度下燒結，較佳使組合物含有鉍，使得鉍對第一化學元素組之起始材料總和之比例，當藉著轉化個別化學元素為其氧化物決定比例時，為不超過8.0重量%，更佳為不超過6.0重量%。

鉬係用以使組合物具有較高的Q值、較高的相對介電常數及正值 τ_f 。如前述，幾乎不能發現能夠製造同時具有較高的Q值及正值 τ_f 之組合物的元素，因此鉬為具體實施例中非常有效的元素。 MoO_3 可例如用作鉬的起始材料，且此起始材料亦具有低熔點(約 800°C)，使組合物在充分低溫下燒結。為了使組合物具有所欲的電氣性質且如所欲地在相關溫度下燒結，較佳使組合物在製造組合物時含有鉬的起始材料，使得鉬的起始材料對第一化學元素組之起始材料總和之比例為在3.0至18.0重量%之範圍內，更佳地在5.0至14.0重量%之範圍內。

鎂(作為鹼土金屬之一)可有利地含於組合物中，因為其可製造具有較高Q值之組合物。 MgO 可例如用作鎂的起始材料。 MgO 係在極高溫(約 2800°C)下，因此當組合物含有大量 MgO 時，組合物不利地必須在較高溫度下燒結。較佳使組合物含有鎂，使得鎂對第一化學元素組之起

五、發明說明 (11)

始材料總和之比例，當藉著轉化個別化學元素為其氧化物決定比例時，為0.2至4.5重量%之範圍內，更佳地在0.5至4.0重量%之範圍內。應注意 MgCO_3 例如可另外地用作鎂的起始材料。

如前述，根據具體實施例之介電陶瓷組合物含有鋇、鋇、鈣等作為異於鎂外之鹼土金屬。此等元素可有利地含於組合物中，因為加熱此等材料之起始材料與第一化學元素組其他元素之起始材料之操作使得降低溫度至欲燒結組合物之溫度成為可能。 BaCO_3 、 SrCO_3 及 CaCO_3 可例如分別地用作鋇、鋇及鈣的起始材料。

由於 BaCO_3 (更詳細地)係於低溫下與第一化學元素組之其他起始材料(例如 Al_2O_3)反應，因此 BaCO_3 有效地充當燒結劑以促進組合物在低溫下燒結。然而， BaCO_3 本身具有較高熔點(約 1920°C)。於鈦酸鋇系之氧化物合作下，鋇係用以使組合物具有負值 τ_f 。為了使組合物具有所欲的電氣性質且如所欲地在相關溫度下燒結，較佳使組合物在製造組合物時含有 BaCO_3 ，使得 BaCO_3 對第一化學元素組之起始材料總和之比例為在7.5至14.0重量%之範圍內，更佳地在8.0至13.0重量%之範圍內。例如， BaO 可另外地用作鋇的起始材料。

SrCO_3 及 CaCO_3 (更詳細地)係於高溫下與鹼金屬化合物反應以形成液相，因而充當燒結劑以促進材料在液相移動。為了使組合物具有所欲的電氣性質且如所欲地在相關溫度下燒結，較佳使組合物在製造組合物時含有 SrCO_3 ，

五、發明說明 (12)

使得 SrCO_3 對第一化學元素組之起始材料總和之比例為在 3.0 至 9.0 重量%之範圍內，更佳地在 4.0 至 8.0 重量%之範圍內。關於 CaCO_3 ，較佳使組合物在製造組合物時含有 CaCO_3 ，使得 CaCO_3 對第一化學元素組之起始材料總和之比例為在 0.1 至 3.0 重量%之範圍內，更佳地在 0.1 至 2.0 重量%之範圍內。鋇及鈣之起始材料不分別地限於 SrCO_3 及 CaCO_3 ，且可另外地分別為 SrO 及 CaO 。

關於第二化學元素組，當鹼金屬與第一化學元素組(特別地為矽、鹼土金屬與硼)一起燒結時，鹼金屬較佳用作燒結劑，使得通常組成在較低溫下燒結。此類鹼金屬之起始材料包含鋰化合物(例如 Li_2CO_3 及 Li_2O)及鈉化合物(例如 Na_2CO_3 及 Na_2O)，且於組合物中較佳使用至少鋰化合物(自此等材料)。如前述，於組合物中含鋰及鈉超過所需者不利地用以製造具較低 Q 值之組合物，且進一步地具惡化的電氣及化學耐久性。較佳使鋰對第二化學元素組之個別化學元素總和之比例，當藉著轉化個別化學元素為其氧化物決定比例時，為 8.0 至 25.0 重量%之範圍內。較佳使鈉對第二化學元素組之個別化學元素總和之比例，當藉著轉化個別化學元素為其氧化物決定比例時，為 0 至 15.0 重量%之範圍內。

硼有利地能降低溫度至欲燒結組合物之溫度。更詳細地，例如 B_2O_3 係用作硼的起始材料，且當 B_2O_3 與第一化學元素組之起始材料一起(特別地與矽及鹼土金屬之起始材料)燒結時， B_2O_3 用作燒結劑，使得通常組成在較低溫

五、發明說明(13)

下燒結。然而，當含有大量硼起始材料之起始材料燒結時，藉由硼與矽及鹼土金屬之化學反應形成之化合物(硼矽酸鹽玻璃)產生發泡物，同時在組合物中形成一些密閉的孔隙，並且用以製造具較低Q值以及惡化的電氣及化學耐久性之組合物。因此，於組合物中含有硼的起始材料超過所需者是不佳的。較佳使硼對第二化學元素組之個別化學元素總和之比例，當藉著轉化個別化學元素為其氧化物決定比例時，為60.0至92.0重量%之範圍內。

本發明之實例將可參照以下附圖而更詳細地說明。

(實例1-10)

首先，同時製備及秤取 BaCO_3 及 TiO_2 之粉末，以致於這些氧化物之莫耳比例變為 $\text{BaCO}_3:\text{TiO}_2=1:4$ 。接著添加水(作為溶劑)至氧化物(於氧化鋯珠輔助下，在球研磨機中濕混合3小時，接著乾燥)。接著，在 1100°C 下預燒結因之所得的混合物2小時，藉著使用純水(作為溶劑)及氧化鋯珠濕磨，且接著充分地乾燥。因此，得到含鈦之化合物。

亦製備及秤取作為第一化學元素組起始材料 SiO_2 、 ZnO 、 Al_2O_3 、 TiO_2 、 CuO 、 Bi_2O_3 、 MoO_3 、 MgO 、 BaCO_3 、 SrCO_3 及 CaCO_3 之全部粉末，以致於如所欲地選取這些氧化物之莫耳比例。除了預燒結溫度為 820°C 外，接著以與 BaCO_3 及 TiO_2 相同的方法預燒結氧化物。進一步地製備及秤取作為第二化學元素組起始材料 B_2O_3 、 Li_2CO_3 及 Na_2CO_3 之全部粉末，以致於如所欲地選取這些氧化物之莫耳比例。於秤取第一及第二化學元素組起始材料過程，在

五、發明說明 (14)

實例 1 至 10 中，如圖 1 及 2 所示地改變第二化學元素組起始材料對第一化學元素組起始材料之重量比。

之後，秤取含鈦化合物、第一化學元素組起始材料(預燒結)及第二化學元素組起始材料，添加水(作為溶劑)至氧化物，並且於氧化鋯珠輔助下濕混合，接著充分地乾燥。於上述秤取過程，如圖 1 及 2 所示地改變 BaTi_4O_9 對第一及第二化學元素組起始材料之重量比。應注意此比例係為藉著轉化個別化學元素為其氧化物而計算之比例。

接著，將作為黏合劑之聚乙烷基醇(PVA)添加至因之所得之混合物，俾進行造粒。使顆粒化的混合物填充至模具中，接著，藉著使用壓磨機受到 3 噸/平方公分模壓，藉此得到具直徑 12.0 毫米及厚度 12.0 毫米之圓柱形樣品。接著使因之所得之樣品在空氣中燒結，俾製得介電陶瓷組合物。在實例 1 至 10，如圖 1 及 2 所示地改變燒結溫度及燒結時間。

當比較例 1 至 8 相對於實例 1 至 10，使用與進行製備實例 1 至 10 相同之步驟(除了 BaTi_4O_9 、第一化學元素組及第二化學元素組間之重量比外)製備及燒結，並且改變燒結溫度，全部顯示於圖 3 及 4 中。因此，比較例 1 至 7 未燒結。順便一提，比較例 1 至 3 表示第二化學元素組對第一化學元素組(第二化學元素組/第一化學元素組)之重量比小於 0.01 或大於 0.10。比較例 4 至 8 表示第一及第二化學元素組中之個別化學元素總和對氧化物(第一化學元素組加上第二化學元素組/氧化物)之重量比小於 45/55 或大於

五、發明說明 (15)

65/35。

關於經由上述實例1至10及比較例2至6及8之製法所製之每一介電陶瓷組合物，使用TEM共振技術在微波區域得到相對介電常數。此外，藉由包覆介電陶瓷組合物於孔穴中及測量共振峰頻率(以TEM模式)，在1 GHz得到Q值。再者，在1 GHz之共振頻率溫度依賴性係使用條線共振器而得到。所得到的測量值顯示於圖1至4。溫度依賴性係在-25°C至+85°C測得，並且以相對於+25°C之值的變化率(ppm/°C)表示。

如圖1至4所示，全部實例每一係以三種電氣性質表示優越性，即Q值為9000至22000，相對介電常數為18至28且 τ_f 為-10至8 ppm/°C。相反地，每一比較例不滿足代表所欲三種電氣性質數值之至少之一，此係在"先前技藝"章節解釋。此外，變得明顯的是，全部實例係在不高於920°C之溫度下燒結，並且可與銀、銅等一起燒結。意即，可下結論為，根據本發明之介電陶瓷組合物可在低溫下燒結，且具有優越的電氣性質。

雖然未詳細地說明，甚至於鈦酸鋇系之氧化物不具化學計量組合物但具有以 $\text{BaTi}_x\text{O}_{2x+1}$ ($3.5 \leq x \leq 5.0$)表示之組合式之情形中，根據本發明之所製得的組合物提供與實例說明中解釋者相同的效果。甚至於任何形式的異於上述化合物或碳酸酯之化合物用作第一及第二化學元素組起始材料(關於第一及第二化學元素組中每一元素)之情形中，根據本發明製得且使用此類其他化合物之組合物提供與實例說

五、發明說明 (16)

明中解釋者相同的效果。此外，經證實當作為矽起始材料之 SiO_2 的平均粒度不長於50毫米時，組合物代表達到較大程度之優越的電氣性質。

雖然本發明已藉由具體實施例及其實例說明，但應瞭解本發明不受限於此等具體實施例及實例，且可相異地施以修飾，而不脫離本發明目的之精神及範圍。例如，雖然在上述實例中全部第一化學元素組起始材料係經混合及預燒結，但出自全部第一化學元素組起始材料之鈹化合物及鉬化合物不必預燒結，因此本發明之介電陶瓷組合物亦可藉由使此等混合物與例如第二化學元素組起始材料混合而製造組合物。

四、中文發明摘要(發明之名稱：介電陶瓷組合物)

本發明之目的為提供一種介電陶瓷組合物，俾能使其焙燒溫度降低及具有極佳的電氣性質，特別地為共振頻率之溫度依賴性。根據本發明之介電陶瓷組合物含有具有以 $\text{BaTi}_x\text{O}_{2x+1}$ ($3.5 \leq x \leq 5.0$) 表示之組合式之鈦酸鋇系氧化物；由至少一種鹼土金屬、矽、鋅、鋁、鈦、銅、鉍及鉬所組成之第一化學元素組；及由至少一種鹼金屬及硼所組成之第二化學元素組。於第一及第二化學元素組中之每一化學元素總和對氧化物(每一化學元素總和/氧化物)之重量比，當藉著轉化該每一化學元素為其氧化物決定比例時，係介於45/55及65/35間。第二化學元素組對第一化學元素組(第二化學元素組/第一化學元素組)之重量比，當藉著轉化該個別化學元素為其氧化物決定比例時，係介於0.01及0.10間。

英文發明摘要(發明之名稱："DIELECTRIC CERAMIC COMPOSITION")

It is an object of the invention to provide a dielectric ceramic composition which enables its firing temperature to be lowered and which has an excellent electrical properties, particularly temperature dependence of resonance frequencies. A dielectric ceramic composition according to the invention comprises an oxide of a barium titanate family having a composition formula represented as $\text{BaTi}_x\text{O}_{2x+1}$ ($3.5 \leq x \leq 5.0$); a first chemical element group consisting of at least one kind of alkaline-earth metals, silicon, zinc, aluminium, titanium, copper, bismuth and molybdenum; and a second chemical element group consisting of at least one kind of alkali metals and boron. A weight ratio of a total of each chemical element in the first and second chemical element groups to the oxide (the total of each chemical element / the oxide) is between 45/55 and 65/35 inclusive when the ratio is determined by converting said each chemical element to its oxide. A weight ratio of the second chemical element group to the first chemical element group (the second chemical element group / the first chemical element group) is between 0.01 and 0.10 inclusive when the ratio is determined by converting said each chemical element to its oxide.

公告

六、申請專利範圍

1. 一種介電陶瓷組合物，其係包含：

氧化物，係含有鋇(Ba)、鈦(Ti)及氧(O)且具有以 $\text{BaTi}_x\text{O}_{2x+1}$ ($3.5 \leq x \leq 5.0$)表示之組合式；

第一化學元素組，係選自由至少一種鹼土金屬、矽(Si)、鋅(Zn)、鋁(Al)、鈦、銅(Cu)、鉍(Bi)及鉬(Mo)所組成之群；及

第二化學元素組，係選自由至少一種鹼金屬及硼(B)所組成之群，

其中，該第一及第二化學元素組中之個別化學元素總和對該氧化物(個別化學元素總和/氧化物)之重量比，當藉著轉化該個別化學元素為其氧化物決定比例時，係介於45/55及65/35間，該第二化學元素組對該第一化學元素組(第二化學元素組/第一化學元素組)之重量比，當藉著轉化該個別化學元素為其氧化物決定比例時，係介於0.01及0.10間。

2. 如申請專利範圍第1項之介電陶瓷組合物，其中該第一化學元素組包含鎂(Mg)、鈣(Ca)、鐳(Sr)及鋇(Ba)作為該鹼土金屬，且該第二化學元素組含有至少鋰(Li)作為該鹼金屬。
3. 一種電元件，其係含有一種介電組合物及至少一個電極，其特徵在於如申請專利範圍第1或2項之介電陶瓷組合物係存在於該介電組合物中。
4. 如申請專利範圍第3項之電元件，其特徵在於該電元件係為天線。

六、申請專利範圍

5. 如申請專利範圍第3項之電元件，其特徵在於該電元件係為設有內部導體之低溫共燒燒陶瓷(LTCC)。

公佈

	第一化學元素組 (重量%)		第二化學元素組 (重量%)		BaTi ₄ O ₉ (重量%)	第二化學元素組		焙燒條件		Q (1 GHz)	相對介電常數 (1 GHz)	τf (1 GHz) (ppm/°C)
	第一及第二化學元素組之總和 (重量%)					第一化學元素組	溫度 (°C)	時間 (小時)				
實例1	63.3	0.7			36.0	0.011	900	2	20000	24	-5	
	64.0											
	61.7	2.3			36.0	0.037	880	2	17000	21	-2	
實例2	64.0											
	58.3	5.7			36.0	0.098	850	2	13000	18	8	
	64.0											
實例3	56.5	2.0			41.5	0.035	890	4	22000	21	-1	
	58.5											
	55.4	0.6			44.0	0.011	910	2	16000	24	-9	
實例5	56.0											

圖 1

	第一化學元素組 (重量%)		第二化學元素組 (重量%)		BaTi ₄ O ₉ (重量%)	第二化學元素組		焙燒條件		Q (1 GHz)	相對介電常數 (1 GHz)	τ_f (1 GHz) (ppm/°C)
	第一及第二化學元素組之總和 (重量%)					第一化學元素組	溫度 (°C)	時間 (小時)				
實例6	54.0		2.0		44.0	0.037	890	2	14000	22	-6	
	56.0											
實例7	51.0		5.0		44.0	0.098	870	2	10000	20	5	
	56.0											
實例8	47.5		0.5		52.0	0.011	920	2	15000	28	-10	
	48.0											
實例9	46.3		1.7		52.0	0.037	910	2	12000	26	-7	
	48.0											
實例10	43.7		4.3		52.0	0.098	900	2	9000	23	0	
	48.0											

圖 2

	第一化學元素組 (重量%)		第二化學元素組 (重量%)		BaTi ₄ O ₉ (重量%)	第二化學元素組		焙燒條件		Q (1 GHz)	相對介電常數 (1 GHz)	τ f (1 GHz) (ppm/°C)		
	第一及第二化學元素組之總和 (重量%)					第一化學元素組	第二化學元素組	溫度 (°C)	時間 (小時)					
比較例1	55.6		0.4		44.0	0.007	930	>10	未燒結					
	56.0													
比較例2	50.0		6.0		44.0	0.012	860	2	6000				18	23
	56.0													
比較例3	46.0		10.0		44.0	0.217	830	2	1000				14	50
	56.0													
比較例4	71.0		1.0		28.0	0.014	890	2	7000				13	40
	72.0													
比較例5	62.0		5.0		33.0	0.081	850	2	5000				11	70
	67.0													

圖 3

	第一化學元素組 (重量%)		第二化學元素組 (重量%)	BaTi ₄ O ₉ (重量%)	第二化學元素組		焙燒條件		Q (1 GHz)	相對介電常數 (1 GHz)	τ _f (1 GHz) (ppm/°C)
	第一及第二化學元素組之總和 (重量%)				第一化學元素組	溫度 (°C)	時間 (小時)				
比較例6	41.0	2.0		57.0	0.049	910	3	2500	28	-38	
	43.0										
比較例7	29.5	0.5		70.0	0.017	930	>10	未燒結			
	30.0										
	31.0	3.0									
比較例8	34.0			66.0	0.097	920	2	2000	33	-44	

圖 4