

# 發明專利說明書

(本申請書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：97115082

※申請日期：97年04月24日

※IPC分類：

H01G 4/10 (2006.01)

B32B 18/00 (2006.01)

C03C 3/285 (2006.01)

C03C 4/16 (2006.01)

C04B 35/11 (2006.01)

## 一、發明名稱：

(中) 層合介電體之製造方法

(英)

## 二、申請人：(共 1 人)

1. 姓名：(中) 旭硝子股份有限公司  
 (英) ASAHI GLASS COMPANY, LIMITED

代表人：(中) 1. 石村和彥  
 (英) 1. ISHIMURA, KAZUHIKO

地址：(中) 日本國東京都千代田區有樂町一丁目一二番一號

(英) 12-1, Yurakucho 1-chome, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8405 Japan

國籍：(中英) 日本 JAPAN

## 三、發明人：(共 4 人)

1. 姓名：(中) 留野曉  
 (英) TOMENO, SATORU

國籍：(中) 日本  
 (英) JAPAN

2. 姓名：(中) 大崎康子  
 (英) OSAKI, YASUKO

國籍：(中) 日本  
 (英) JAPAN

3. 姓名：(中) 渡邊和男  
 (英) WATANABE, KAZUO

國籍：(中) 日本  
 (英) JAPAN

4. 姓名：(中) 中山勝壽  
 (英) NAKAYAMA, KATSUYOSHI

國籍：(中) 日本

(英) JAPAN

#### 四、聲明事項：

◎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. 日本 ; 2007/04/25 ; 2007-115724  有主張優先權

(英) JAPAN

#### 四、聲明事項：

◎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. 日本 ; 2007/04/25 ; 2007-115724  有主張優先權

## 九、發明說明

### 【發明所屬之技術領域】

本發明係關於藉由低溫燒成而製造適合於回路或天線的基板等之層合介電體之適合的製造方法。

### 【先前技術】

作為微波帶等之高周波區域所使用的行動電話等小型電子機器的回路或天線等之基板，使用具有層結構，且由基板表面、層間或層內以銀、銅等為主成分之導體所形成的導電部而形成的多層介電體基板（低溫同時燒成陶瓷基板）。

低溫同時燒成陶瓷基板，係將玻璃陶瓷材料與導體材料同時燒成而製造，但會有因為玻璃陶瓷材料與導體材料的燒成所產生的收縮行動不同而基板變形的問題，或者燒成所造成的收縮率大而尺寸精度惡化的問題，作為消除此等問題之方法，係採用以在玻璃陶瓷材料的燒成溫度下不會燒結的材料進行挾持限制下燒成之方法。

惟，使用在燒成溫度下不會燒結的限制用材料之方法，在燒成後必須去除限制層，作為解決如此問題之方法，提議層合收縮開始溫度不同的 2 種以上的玻璃陶瓷材料後燒成之方法（例如參考專利文獻 1）。依據如此的方法，當收縮開始溫度低的材料產生收縮時，收縮開始溫度高的材料完成限制層的作用，當收縮開始溫度高的材料產生收縮時，收縮完全結束的層成為限制層。

[專利文獻 1]特開 2003-69236 號公報

## 【發明內容】

[發明所欲解決之課題]

本發明者，專利文獻 1 的表 1 中所記載之試料 No.1 的玻璃（質量百分率表示組成爲  $\text{SiO}_2$  18%、 $\text{B}_2\text{O}_3$  18%、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  0.6%、 $\text{MgO}$  45%、 $\text{CaO}$  0.4%、 $\text{BaO}$  15%、 $\text{ZrO}_2$  0.1%、 $\text{SnO}_2$  1.9%、 $\text{P}_2\text{O}_5$  1%。莫耳 % 表示組成爲  $\text{SiO}_2$  16.6%、 $\text{B}_2\text{O}_3$  14.3%、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  0.3%、 $\text{MgO}$  61.8%、 $\text{CaO}$  0.4%、 $\text{BaO}$  5.4%、 $\text{ZrO}_2$  0.04%、 $\text{SnO}_2$  0.7%、 $\text{P}_2\text{O}_5$  0.4%），調合、混合  $\text{SiO}_2$ 、 $\text{MgO}$ 、 $\text{B}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{CaCO}_3$ 、 $\text{BaCO}_3$ 、 $\text{SnO}_2$ 、 $\text{ZrO}_2$ 、偏磷酸鎂的各粉末，直到可得到 500g 的玻璃，將其使用鉑坩堝以 1600℃ 熔融後，將熔液流出至不鏽鋼製滾筒上進行急速冷卻，觀看流出熔液後的坩堝，確認坩堝中爲透明消失的玻璃，此外，急速冷卻而得到的玻璃的一部份亦確認爲透明消失。

由此認爲，專利文獻 1 所揭示的玻璃未必爲安定者。

本發明的目的在於提供可解決如此課題之層合介電體之製造方法。

[用以解決課題之手段]

本發明係提供層合介電體之製造方法（第 1 方法），其係使  $n$  爲 3 以上的整數之  $n$  個介電體層，以相鄰的介電體層之於 50～350℃ 的平均線膨脹係數差的絕對值成爲 15

$\times 10^{-7}/^{\circ}\text{C}$  以下的方式進行層合之層合介電體之製造方法，其特徵係將經燒成而成爲上述介電體層之  $n$  個含玻璃粉末的原料層進行層合後燒成者，

成爲第 2 至第  $(n-1)$  個介電體層之含有玻璃粉末的原料層中的至少 1 個含有玻璃粉末的原料層，含有以質量百分率表示之 50~80% 的玻璃粉末及 20~50% 的氧化鋁粉末，

該玻璃粉末，含有下述氧化物基準的莫耳%表示之 45~60% 的  $\text{SiO}_2$ 、0~10% 的  $\text{B}_2\text{O}_3$ 、2~10% 的  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、0~5% 的  $\text{CaO}$ 、10~30% 的  $\text{BaO}$ 、10~20% 的  $\text{ZnO}$ 、0~5% 的  $\text{Li}_2\text{O}+\text{Na}_2\text{O}+\text{K}_2\text{O}$ 、0~5% 的  $\text{TiO}_2+\text{ZrO}_2+\text{SnO}_2$ （以下，亦將此玻璃粉末稱爲玻璃粉末 A），

該含有玻璃粉末的原料層之相鄰的 2 個含有玻璃粉末的原料層所含有的玻璃粉末的任一者，皆含有下述氧化物基準的莫耳%表示之 45~55% 的  $\text{SiO}_2$ 、0~5% 的  $\text{B}_2\text{O}_3$ 、2~20% 的  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、20~45% 的  $\text{MgO}$ 、0~20% 的  $\text{CaO}+\text{SrO}$ 、0~10% 的  $\text{BaO}$ 、0~15% 的  $\text{ZnO}$ 、0~10% 的  $\text{TiO}_2+\text{ZrO}_2+\text{SnO}_2$ （以下亦將此玻璃粉末稱爲玻璃粉末 B），其玻璃轉移點比被挾持於上述 2 個含有玻璃粉末的原料層之含有玻璃粉末的原料層的玻璃粉末，亦即玻璃粉末 A 的玻璃轉移點高  $50^{\circ}\text{C}$  以上。

此外，本發明係提供層合介電體之製造方法（第 2 方法），其係使  $n$  爲 3 以上的整數之  $n$  個介電體層，以相鄰的介電體層之於  $50\sim 350^{\circ}\text{C}$  的平均線膨脹係數差距的絕對

值成爲  $15 \times 10^{-7} / ^\circ\text{C}$  以下的方式進行層合之層合介電體之製造方法，其特徵係將經燒成而成爲上述介電體層之  $n$  個含玻璃粉末的原料層進行層合後燒成者，

成爲第 2 至第  $(n-1)$  個介電體層之含有玻璃粉末的原料層中的至少 1 個含有玻璃粉末的原料層，其所含有的玻璃粉，含有下述氧化物基準的莫耳%表示之 45~55% 的  $\text{SiO}_2$ 、0~5% 的  $\text{B}_2\text{O}_3$ 、2~20% 的  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、20~45% 的  $\text{MgO}$ 、0~20% 的  $\text{CaO}+\text{SrO}$ 、0~10% 的  $\text{BaO}$ 、0~15% 的  $\text{ZnO}$ 、0~10% 的  $\text{TiO}_2 + \text{ZrO}_2 + \text{SnO}_2$ ，

該含有玻璃粉末的原料層之相鄰的 2 個含有玻璃粉末的原料層所含有的玻璃粉末的任一者，皆含有以質量百分率表示之 50~80% 的玻璃粉末及 20~50% 的氧化鋁粉末，

該玻璃粉末，含有下述氧化物基準的莫耳%表示之 45~60% 的  $\text{SiO}_2$ 、0~10% 的  $\text{B}_2\text{O}_3$ 、2~10% 的  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、0~5% 的  $\text{CaO}$ 、10~30% 的  $\text{BaO}$ 、10~20% 的  $\text{ZnO}$ 、0~5% 的  $\text{Li}_2\text{O}+\text{Na}_2\text{O}+\text{K}_2\text{O}$ 、0~5% 的  $\text{TiO}_2+\text{ZrO}_2+\text{SnO}_2$ ，亦即玻璃粉末 A，其玻璃轉移點比被挾持於上述 2 個含有玻璃粉末的原料層之含有玻璃粉末的原料層的玻璃粉末的玻璃轉移點高  $50^\circ\text{C}$  以上。

此外，第 1、第 2 方法，係提供其玻璃粉末 B 的  $\text{TiO}_2 + \text{ZrO}_2 + \text{SnO}_2$  爲 0~5 莫耳%者。

相對於第 1 方法中以與含有玻璃粉末 A 之含有玻璃粉末的原料層相鄰的 2 個含有玻璃粉末的原料層爲含有玻璃粉末 B 者，第 2 方法中以與第 1 方法中含 1 玻璃粉末 B 之

含有玻璃粉末的原料層（以下，亦稱為原料層 B）相鄰的 2 個含有玻璃粉末的原料層作為第 1 方法中含有玻璃粉末 A 之含有玻璃粉末的原料層（以下，亦稱為原料層 A）者。

所以，以下說明關於第 1 方法，關於第 2 方法的說明與關於第 1 方法的說明相同。

[發明之效果]

依據本發明，可以小的收縮率製造多層介電體基板，可提高其尺寸精度。

依據本發明的較佳形態，於多層介電體基板的介電體的 9GHz 所謂的高周波中可減小介電損失正切。

[實施發明之最佳形態]

本發明中含有玻璃粉末的原料層（以下，亦僅稱為原料層），為玻璃粉末分散於其中者，通常是此玻璃粉末與陶瓷粉末混合的玻璃陶瓷組成物分散於其中，再者，作為陶瓷粉末，以熔點為 1000℃ 以上的陶瓷粉末或軟化點（Ts）為 1000℃ 以上的玻璃粉末較典型。

本發明的製造方法中，通常使用綠紙法（green sheet method），以下說明關於使用綠紙法的情況，本發明並不限定於此，再者，此情況係原料層為重疊 1 片或多數片的相同的綠紙者。

分散有玻璃陶瓷組成物的綠紙，例如依下述作法製

作，亦即，使原料層的構成成分之玻璃陶瓷組成物，添加聚乙烯丁縮醛、丙烯酸樹脂等之樹脂，與甲苯、二甲苯、丁醇等之溶劑，與必要時的鄰苯二甲酸二丁酯、鄰苯二甲酸二辛酯、三乙二醇、聚乙二醇等之可塑劑或分散劑後混合，成為淤漿。接著，於聚對苯二甲酸乙二醇酯（PET）等的薄膜上藉由刮刀法等，使上述淤漿成形為薄片狀，乾燥此成形為薄片狀者而去除溶劑，成為綠紙。

使用綠紙法時，原料層係由樹脂、分散於其中的玻璃粉末、陶瓷粉末等所成。

重疊多數片的相同綠紙作為原料層，將如此作法所得到的  $n$  個（ $n \geq 3$ ）的原料層進行重疊後燒成而作為層合介電體時，通常，對將上述經重疊的原料層以  $80 \sim 120^\circ\text{C}$  加熱後加壓者（層狀被燒成體）進行燒成。

燒成係通常以  $800 \sim 900^\circ\text{C}$ ，典型而言係以  $850 \sim 880^\circ\text{C}$  保持  $5 \sim 120$  分鐘而進行。

此外，綠紙上必要時使用銀膏藉由網版印刷預先形成配線導體等。

藉由本發明的製造方法所製造的層合介電體的各介電體層（以下，亦僅稱為介電體層）的  $9\text{GHz}$  處的相對介電常數（以下，將此相對介電常數稱為  $\epsilon$ ），典型而言為  $5 \sim 10$ ，更典型而言為  $6 \sim 9$ ，再者， $\epsilon$  係於室溫，典型而言為於  $20 \sim 25^\circ\text{C}$  的相對介電常數。

於本發明，層合介電體中相鄰的介電體層間的  $\epsilon$  之差距（絕對值）低於  $3$  為典型的情況。

前述介電體層的 9GHz 處之介電損失正切（以下，此介電損失正切亦稱爲  $\tan\delta$ ），較佳爲 0.0050 以下，更佳爲 0.0030 以下，特別佳爲 0.0025 以下。

再者，本發明所謂的「9GHz 處之相對介電常數」之意，係指於  $(9\pm 1.5)$  GHz 處之相對介電常數，關於  $\tan\delta$  亦相同。

原料層 A 所含有的玻璃粉末 A 的玻璃轉移點（ $T_g$ ），因爲比與此原料層 A 相鄰的原料層 B 所含有的玻璃粉末 B 的  $T_g$  低  $50^\circ\text{C}$  以上，故此等同時被燒成，則藉由含有  $T_g$  低的玻璃粉末 A 之原料層 A 以更低溫產生收縮而變緻密後，含有  $T_g$  高的玻璃粉末 B 之原料層 B 產生收縮而變緻密，使其互相地受到限制，平面方向的收縮小，而能夠以高尺寸精度製造層合介電體基板。

相鄰的原料層中所含有的玻璃粉末的  $T_g$  的差距（絕對值）低於  $50^\circ\text{C}$ ，因爲含有  $T_g$  低的玻璃粉末之原料層的收縮結束前，含有  $T_g$  高的玻璃粉末之原料層的收縮開始，而使限制變不足，尺寸精度降低。前述  $T_g$  的差距較佳爲  $70^\circ\text{C}$  以上，此外，前述  $T_g$  的差距典型而言爲  $120^\circ\text{C}$  以下， $T_g$  的差距過大時，會有含有  $T_g$  低的玻璃粉末之原料層過剩地被燒成，或者含有  $T_g$  高的玻璃粉末之原料層變得燒成不足而無法得到所望的特性的疑慮。

欲使尺寸精度更高時，以含有  $T_g$  低的玻璃粉末之原料層產生收縮，但含有  $T_g$  高的玻璃粉末之原料層未產生收縮之溫度進行保持，然後，以含有  $T_g$  高的玻璃粉末之

原料層產生收縮的溫度進行保持後燒成較佳。例如會有於 740~780°C 保持 30~120 分鐘後，於 850~880°C 保持後燒成較佳的情況場合。

本發明中，因為使層合介電體中相鄰的介電體層間之於 50~350°C 的平均線膨脹係數 ( $\alpha$ ) 的差距 (絕對值) 成爲  $15 \times 10^{-7}/^{\circ}\text{C}$  以下，故減少了層合介電體中產生龜裂的疑慮，前述  $\alpha$  的差距較佳爲  $10 \times 10^{-7}/^{\circ}\text{C}$  以下，典型而言爲  $5 \times 10^{-7}/^{\circ}\text{C}$  以下。

再者，燒成原料層 B 後所得到的介電體層的  $\alpha$ ，典型而言爲  $70 \times 10^{-7} \sim 90 \times 10^{-7}/^{\circ}\text{C}$ ，更典型而言爲  $75 \times 10^{-7} \sim 85 \times 10^{-7}/^{\circ}\text{C}$ 。

本發明中，層合介電體中之各層的厚度，典型而言爲 0.1~0.8mm，n 爲奇數時，以中央的層爲中心，位於上下對稱的位置之層彼此的厚度相等較佳。例如 7 層時第 1 層與第 7 層、第 2 層與第 6 層、第 3 層與第 5 層的厚度相等較佳，若不如此，則會有層合介電體易變形的疑慮。

接著，說明關於本發明的層合介電體之製造方法中所使用的含有玻璃粉末的原料層，再者，以下在未特別規定下，玻璃的組成爲以莫耳 % 表示者，僅以 % 標示。

首先，說明關於原料層 A 所含有的玻璃粉末 A。

玻璃粉末 A 的 50% 粒徑 ( $D_{50}$ ) 爲 0.5~10 $\mu\text{m}$  較佳，低於 0.5 $\mu\text{m}$ ，例如會有使玻璃粉末均勻地分散於綠紙中這一點變困難的疑慮，更佳爲 1 $\mu\text{m}$  以上，超過 10 $\mu\text{m}$  則不易得到緻密的燒成體，更佳爲 4 $\mu\text{m}$  以下。

玻璃粉末 A 的  $T_g$  為  $550 \sim 700^\circ\text{C}$  較佳，低於  $550^\circ\text{C}$ ，則很難去除綠紙中的有機物黏合劑（樹脂），更佳為  $600^\circ\text{C}$  以上，超過  $700^\circ\text{C}$ ，則會有燒成時的收縮開始溫度變高，層合介電體的尺寸精度降低的疑慮。

玻璃粉末 A，典型而言為以  $850 \sim 900^\circ\text{C}$  進行燒成時結晶析出者較佳，若非結晶析出者，會有燒成體（介電體層）的機械的強度變低，或層合介電體的尺寸精度降低的疑慮。

此外，以 DTA 所測量的結晶化波峰溫度（ $T_c$ ）為  $950^\circ\text{C}$  以下較佳，超過  $950^\circ\text{C}$  則會有層合介電體的尺寸精度降低的疑慮。

玻璃粉末 A 係燒成其時  $\text{BaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  結晶析出者較佳，若為如此者，則可降低燒成體的  $\tan\delta$ 。

此外，欲提高機械的強度時，除了前述結晶以外，鈣長石結晶亦析出者較佳。

關於玻璃粉末 A 的組成說明如下，再者，本明細書中玻璃粉末的組成的「%」，在未特別的說明下，意謂「莫耳%」。

$\text{SiO}_2$  係玻璃的網狀形成劑（Network Former），為必須者，低於 45% 則化學的持久性變不足，此外會有燒成體的  $\tan\delta$  變大的疑慮，較佳為 50% 以上，超過 60% 則會有  $T_g$  或  $T_c$  變太高的疑慮，較佳為 58% 以下。

$\text{B}_2\text{O}_3$  雖非為必須者，但為了使玻璃安定化等，可含有 10% 為止，超過 10% 則會有燒成體的  $\tan\delta$  變大，或化學的

持久性降低的疑慮，較佳為 8%以下，含有  $B_2O_3$  時，較佳為 2%以上。

$Al_2O_3$  係提高玻璃的安定性或化學的持久性之成分，為必須者，低於 2%則玻璃變不安定，較佳為 3%以上，超過 10%則  $T_s$  或  $T_g$  變得太高，或玻璃變不安定，較佳為 8%以下，更佳為 7%以下。

$CaO$  雖非為必須者，但為了使玻璃安定化、使燒成體的  $\tan\delta$  降低等，可含有 5%為止，此外， $CaO$  為鈣長石的構成成分，欲使此結晶析出時，此含量較佳為 1%以上。

$BaO$  係  $BaAl_2Si_2O_8$  結晶的構成成分，為必須者，低於 10%則前述結晶變得不易析出，典型而言為 14%以上，欲使  $\alpha$  變大時，17%以上較佳，超過 30%則會有玻璃變不安定的疑慮，較佳為 25%以下。

$ZnO$  係使  $T_s$  或  $T_g$  降低的成分，為必須者，低於 10%則  $T_s$  或  $T_g$  變高，典型而言為 14%以上，超過 20%則會有玻璃的化學的持久性，特別是耐酸性降低的疑慮，較佳為 18%以下。

雖然  $Li_2O$ 、 $Na_2O$  及  $K_2O$  任一者皆非為必須者，但為了使  $T_s$  或  $T_g$  降低、提高燒成體的結晶化率等，合計而言可含有 5%為止，超過 5%則會有  $\tan\delta$  變大、或電絕緣性降低的疑慮，較佳為 3%以下，含有此等成分時，含量的合計為 0.5%以上較佳。

雖然  $TiO_2$ 、 $ZrO_2$  及  $SnO_2$  任一者皆非為必須者，但為了提高玻璃的化學的持久性、促進燒成時的結晶化等，合

計而言可含有 5% 為止，含有此等成分時，含量的合計為 0.5% 以上較佳。

玻璃粉末 A 係本質上由上述成分所形成，但在無損於本發明的目的的範圍，可含有其他的成分，含有如此的成分時，此等成分的含量的合計為 10% 以下較佳。

此外，不含鉛氧化物。

關於構成原料層 A 的玻璃陶瓷組成物（以下，稱為玻璃陶瓷組成物 A）的組成，使用質量百分率表示說明如下。

玻璃粉末 A 係提高燒成體的緻密性之成分，低於 50% 則緻密性變不足，較佳為 55% 以上，超過 80% 超則機械的強度不足，或層合體的收縮率變大，較佳為 75% 以下。

氧化鋁粉末係提高燒成體的強度、或保持燒成體的形狀之成分，低於 20% 則燒成體的強度降低、或層合體的收縮率變大，超過 50% 超則燒成體的緻密性變不足，較佳為 45% 以下。

玻璃陶瓷組成物 A 係本質上由上述成分所形成，但在無損於本發明的目的的範圍，有可含有其他的成分，例如氧化鋁粉末以外的陶瓷粉末的情況，再者，含有如此成分時，此等含量的合計較佳為 10% 以下，更佳為 5% 以下。

作為添加於玻璃陶瓷組成物 A 的陶瓷粉末，由模來石、鎂橄欖石、頑輝石、氧化鎂、鈣長石及堇青石所成的群所選出的 1 種以上的陶瓷的粉末較典型。

欲使燒成體的  $\alpha$  變大時，含有鎂橄欖石、頑輝石或氧

化鎂粉末較佳，含有鎂橄欖石粉末時，其含量典型而言為 1~10%。

此外，與銀導體同時燒成時，欲抑制著色產生等的情況下，含有氧化鈣粉末較佳，其含量典型而言為 0.1~5%。

陶瓷粉末的  $D_{50}$  為 1~10 $\mu\text{m}$  較佳，低於 1 $\mu\text{m}$ ，例如會有使陶瓷粉末均勻地分散於綠紙中這一點變困難的疑慮，更佳為 1.5 $\mu\text{m}$  以上，超過 10 $\mu\text{m}$  則不易得到緻密的燒成體，更佳為 5 $\mu\text{m}$  以下、典型而言為 3 $\mu\text{m}$  以下。

接著，說明關於原料層 B 所含有的玻璃粉末 B。

玻璃粉末 B 的  $D_{50}$  為 0.5~10 $\mu\text{m}$  較佳，低於 0.5 $\mu\text{m}$ ，例如會有使陶瓷粉末均勻地分散於綠紙中這一點變困難的疑慮，更佳為 1 $\mu\text{m}$  以上，特別佳為 1.5 $\mu\text{m}$  以上，超過 10 $\mu\text{m}$  超則不易得到緻密的燒成體，更佳為 7 $\mu\text{m}$  以下，特別佳為 5 $\mu\text{m}$  以下，典型而言為 3 $\mu\text{m}$  以下。

玻璃粉末 B 的  $T_g$ ，典型而言為 650~780 $^{\circ}\text{C}$ 。

玻璃粉末 B 的  $T_g$ ，比與此原料層 B 相鄰的原料層 A 所含有的玻璃粉末 A 的  $T_g$  高 50 $^{\circ}\text{C}$  以上，高 70 $^{\circ}\text{C}$  以上較佳。

玻璃粉末 B 的  $T_s$  為 910 $^{\circ}\text{C}$  以下較佳， $T_s$  超過 910 $^{\circ}\text{C}$  則以 900 $^{\circ}\text{C}$  以下的溫度燒成時，會有無法得到緻密的燒成體的疑慮，此外， $T_s$  係典型而言為 800 $^{\circ}\text{C}$  以上。

玻璃粉末 B，典型而言以 850~900 $^{\circ}\text{C}$  燒成時結晶析出者較佳，若非為結晶析出者，則會有燒成體（介電體層）

的機械的強度變低的疑慮。

此外，玻璃粉末 B 的  $T_c$  為  $850^\circ\text{C}$  以下較佳，超過  $850^\circ\text{C}$  則會有層合介電體的尺寸精度降低的疑慮。

欲小於燒成體的  $\tan\delta$  時，玻璃粉末 B 係燒成其時析出由鎂橄欖石、頑輝石、透輝石及鈣長石所成的群所選出的 1 種以上的結晶者較佳，析出鎂橄欖石結晶者更佳。

關於玻璃粉末 B 的組成說明如下。

$\text{SiO}_2$  係玻璃的網狀形成劑 (Network Former)，為必須者，低於 45% 則不易得到安定的玻璃、或層合體的收縮率變大而尺寸精度降低下，較佳為 48% 以上，超過 55% 則會有  $T_s$  或  $T_g$  變得過高的疑慮，較佳為 52% 以下。

$\text{B}_2\text{O}_3$  雖非為必須者，但為了使玻璃安定化等，可含有 5% 為止，超過 5% 則燒成體的  $\tan\delta$  將會變大、或化學的持久性降低的疑慮。

$\text{Al}_2\text{O}_3$  係提高玻璃的安定性或化學的持久性的成分，為必須者，低於 2% 則玻璃變不安定，較佳為 5% 以上，更佳為 6% 以上，超過 20% 則  $T_s$  或  $T_g$  變得過高，較佳為 10% 以下，更佳為 8.5% 以下。

$\text{SiO}_2$  及  $\text{Al}_2\text{O}_3$  的含量的合計為 66% 以上較佳，超過 66% 則會有  $T_s$  變高而以  $900^\circ\text{C}$  以下燒成時不易得到緻密的燒成體的疑慮。

$\text{MgO}$  係具有安定化玻璃、或促進從玻璃的結晶析出之效果，為必須者，低於 20% 則前述效果變不足，較佳為 25% 以上，超過 45% 則玻璃變不安定，較佳為 40% 以下，

更佳為 38% 以下。

CaO 雖非為必須者，但為了使玻璃安定化、使燒成體的  $\tan\delta$  降低等，可含有 20% 為止，此外，CaO 為透輝石、鈣長石的構成成分，欲析出此等結晶時，其含量較佳為 5% 以上，更佳為 7% 以上，欲使鈣長石析出時，含有 14% 以上的 CaO 為特別佳，CaO 超過 20% 則會有玻璃變不安定的疑慮，較佳為 18% 以下，不想析出鈣長石時，CaO 為 12% 以下較佳。

SrO 雖非為必須者，但為了使玻璃安定化、使燒成體的  $\tan\delta$  降低等，可被含有。含有 SrO 時，其含量典型而言為 10% 以下。

含有 CaO 或 SrO 時，此等的含量的合計為 20% 以下。

BaO 雖非為必須者，但為了使玻璃安定化等，可含有 10% 為止，超過 10% 則會有燒成體的  $\tan\delta$  變大的疑慮。

ZnO 雖非為必須者，但為了使  $T_s$  或  $T_g$  降低等，可含有 15% 為止，超過 15% 則玻璃的化學的持久性、特別是耐酸性降低，較佳為 10% 以下，更佳為 8% 以下，含有 ZnO 時其含量較佳為 2% 以上。

TiO<sub>2</sub>、ZrO<sub>2</sub> 及 SnO<sub>2</sub> 任一者皆非為必須者，為了提高玻璃的化學的持久性、提高燒成體的結晶化率等，以合計而言可含有 10% 為止，此等成分的合計超過 10% 則會有  $T_s$  變得太高、或燒成體的緻密性降低的疑慮，典型而言為 5% 以下。

SiO<sub>2</sub> 為 40~55%、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 為 5~10%、MgO 為 28~

40%、CaO 爲 0~18%、SnO<sub>2</sub> 爲 0~5%較佳。

此玻璃粉末本質上由上述成分所形成，但在無損於本發明的目的的範圍，可含有其他的成分，例如以使玻璃熔融溫度降低等之目的而言，可含有 P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 等，以著色玻璃、提高結晶化率等之目的而言，可含有 CuO、CoO、CeO<sub>2</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、WO<sub>3</sub> 等。

含有如此的其他成分時，其含量以合計而言爲 10%以下較佳，再者，不含有鉛氧化物。

原料層 B，除了玻璃粉末 B 以外，含有陶瓷粉末之玻璃陶瓷組成物較佳。

關於如此的玻璃陶瓷組成物的較佳形態（以下，將此形態者稱爲玻璃陶瓷組成物 B），使用質量百分率表示說明如下。

玻璃陶瓷組成物 B 係本質上由 30~90%的玻璃粉末 B 及 10~70%的陶瓷粉末所形成。

玻璃粉末 B 係提高燒成體的緻密性之成分，低於 30%則緻密性變不足，較佳爲 40%以上，更佳爲 50%以上，典型而言爲 60%以上，超過 90%則燒成體的強度降低，故較佳爲 85%以下，更佳爲 80%以下。

陶瓷粉末係提高燒成體的強度、或調整燒成體的  $\alpha$  之成分，低於 10%則燒成體的強度降低，典型而言爲 15%以上，超過 70%則燒成體的緻密性變不足，典型而言爲 45%以下。

陶瓷粉末係典型而言爲由氧化鋁、模來石、堇青石、

鎂橄欖石及鉬長石所成的群所選出的 1 種以上的陶瓷的粉末。

欲更提高燒成體的強度等時，含有氧化鋁粉末較佳。

與銀導體同時燒成時，欲抑制著色產生等時，陶瓷粉末含有氧化鈾粉末者較佳，其含量典型而言為 0.1 ~ 10%。

陶瓷粉末的  $D_{50}$  為 1 ~ 12  $\mu\text{m}$  較佳，低於 1  $\mu\text{m}$ ，例如會有使陶瓷粉末均勻地分散於綠紙中這一點變困難的疑慮，更佳為 1.5  $\mu\text{m}$  以上，超過 12  $\mu\text{m}$  則不易得到緻密的燒成體，更佳為 5  $\mu\text{m}$  以下，典型而言為 3.5  $\mu\text{m}$  以下。

玻璃陶瓷組成物 B 係例如以 850 ~ 900  $^{\circ}\text{C}$  進行燒成時結晶析出者，但此結晶通常由玻璃粉末 B 析出。

再者，玻璃粉末 A、B 及玻璃陶瓷組成物 A、B，係在使燒成原料層後所得到的各介電體的相鄰的者的  $\alpha$  的差距的絕對值為  $15 \times 10^{-7} / ^{\circ}\text{C}$  以下狀態下進行選擇。

## 【實施方式】

### [實施例]

調合、混合原料，使其成為表 1、2 之  $\text{SiO}_2$  至  $\text{ZrO}_2$  為止的欄位上以莫耳 % 表示表示的組成，將此經混合的原料放進鉑坩堝後以 1500 ~ 1600  $^{\circ}\text{C}$  進行 60 分鐘熔融後，流出熔融玻璃進行冷卻的結果，確認所得到的玻璃未有透明消失。

將所得到的玻璃於氧化鋁製球磨機中以乙醇作為溶劑

進行 20~60 小時粉碎後，得到玻璃粉末 G1~G12，G1~G4 為玻璃粉末 B，G5~G9 為玻璃粉末 A。

使用島津製作所社製雷射繞射式粒度分布計 SALD2100 測量各玻璃粉末的  $D_{50}$  (單位： $\mu\text{m}$ )，使用 Rigaku 公司製熱分析裝置 TG-DTA 以昇溫速度  $10^\circ\text{C}/\text{分鐘}$  的條件至  $1000^\circ\text{C}$  為止測量  $T_g$  (單位： $^\circ\text{C}$ )、 $T_s$  (單位： $^\circ\text{C}$ )、結晶化波峰溫度  $T_c$  (單位： $^\circ\text{C}$ )。

此外，將各玻璃粉末於  $900^\circ\text{C}$  保持 2 小時 (燒成) 後，對於所得到的燒成體藉由 X 射線繞射法調查是否有結晶析出的結果，G1~G4 的燒成體析出  $\text{MgSiO}_3$  結晶，G5~G9 的燒成體析出  $\text{BaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  結晶、 $\text{BaZn}_2\text{Si}_2\text{O}_7$  結晶等，G10 的燒成體析出  $\text{BaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  結晶、 $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  結晶、 $\text{SiO}_2$  結晶等，G11 的燒成體析出  $\text{Ba}_5\text{Si}_8\text{O}_{21}$  結晶與  $\text{Ba}_5\text{Al}_2\text{O}_{11}$  結晶，G12 的燒成體析出  $\text{BaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$  結晶與  $\text{Ba}_2\text{Ti}_9\text{O}_{20}$  結晶。

[表 1]

	G 1	G 2	G 3	G 4	G 5	G 6
$\text{SiO}_2$	50.0	50.0	50.0	55.0	56.4	50.2
$\text{Al}_2\text{O}_3$	7.5	7.5	5.0	5.0	4.9	4.3
$\text{MgO}$	35.0	32.5	45.0	30.0	0	0
$\text{CaO}$	0	0	0	0	1.5	1.6
$\text{BaO}$	0	0	0	0	17.8	24.3
$\text{ZnO}$	7.5	10.0	0	10.0	16.8	16.4
$\text{SnO}_2$	0	0	0	0	0.3	0.3
$\text{Li}_2\text{O}$	0	0	0	0	1.3	1.5
$\text{ZrO}_2$	0	0	0	0	1.0	1.4
$D_{50}$	3.9	3.6	4.3	3.7	2.3	2.3
$T_g$	751	730	753	739	655	655
$T_c$	943	944	930	932	885	910

[表 2]

	G 7	G 8	G 9	G 10	G 11	G 12
SiO <sub>2</sub>	50.4	54.4	57.1	48.6	60.2	40.0
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	7.0	6.7	4.9	12.3	3.8	5.0
MgO	0	0	0	6.2	0	0
CaO	0	0	0	12.5	0	7.5
BaO	24.4	21.3	18.8	8.1	36.0	15.0
ZnO	14.6	15.9	16.5	10.3	0	0
SnO <sub>2</sub>	0.3	0.3	0.3	0	0	0
Li <sub>2</sub> O	1.5	1.4	1.4	0	0	0
TiO <sub>2</sub>	0	0	0	0	0	23.0
ZrO <sub>2</sub>	0	0	1.0	2.0	0	0
D <sub>50</sub>	2.6	2.8	2.4	2.0	1.6	1.8
Tg	652	653	657	720	705	681
Tc	856	875	894	915	880	867

製作從表 3 的玻璃粉末至 BT 粉末為止的欄位上以質量百分率表示的組成的玻璃陶瓷組成物 GC1~GC9，玻璃係使用玻璃種類欄上所示者，GC1 為玻璃陶瓷組成物 B，GC2~GC6 為玻璃陶瓷組成物 A。

氧化鋁粉末係使用昭和電工社製 AL-45H (D<sub>50</sub>=3.0 μm)，鎂橄欖石粉末係使用 Titan 工業社製 F-300 (D<sub>50</sub>=1.1 μm)。

BT 粉末係經由如下述的方法所製作的粉末，亦即將 BaCO<sub>3</sub> (堺化學工業社製碳酸鋇 BW-KT) 88g 與 TiO<sub>2</sub> (關東化學社製試藥金紅石型) 130g，以水作為溶劑用球磨機進行混合、乾燥後於 1150℃ 保持 2 小時，然後用球磨機進行 60 小時粉碎後得到 D<sub>50</sub> 為 0.9 μm 的粉末，對於此粉末進行 X 射線繞射測量的結果，確認出具有 BaTi<sub>4</sub>O<sub>9</sub> 結晶的強的繞射波峰圖型。

將 GC1~GC9 各 4~5g 使用模型進行加壓成形，進行於 875°C 保持 2 小時的燒成後得到燒成體，將其進行研磨加工後得到直徑約 13mm、高度約 10mm 的圓柱狀試樣。

關於此等試樣，使用 Network Analyzer 與 KEYCOM 公司製平行導體共振法相對介電常數測量系統，各自測量關於 GC1~GC8 之 (9±1.5) GHz 處、關於 GC9 之 6.3GHz 處的相對介電常數與介電損失正切，結果列示於表 3。

此外，於 50g 的 GC1 中混合有機溶劑（甲苯、二甲苯、2-丙醇、2-丁醇以質量比 4:2:2:1 混合者）15g、可塑劑（鄰苯二甲酸二-2-乙基己酯）2.5g、樹脂（DENKA 社製聚乙烯丁縮醛 PVK#3000K）5g 與分散劑（BYK 社製 BYK180）而製成淤漿。將此淤漿利用刮刀法塗佈於 PET 薄膜上，乾燥後得到厚度為 0.2mm 的綠紙 S1，此外，使用 GC2~GC9 同樣作法製作綠紙 S2~S8。

將重疊 6 片的綠紙 S1 者，以 10MPa 進行 1 分鐘的壓黏加壓，將此壓黏體（被燒成體）於 550°C 保持 5 小時而分解去除樹脂成分後，進行於 875°C 保持 2 小時之燒成而製作強度試驗用燒成體。

使用將此燒成體加工為寬度 5mm、長度 20mm 的薄長方形狀者，使用 MacScience 公司製差示熱膨脹計 DILATOMETER 測量前述膨脹係數  $\alpha$ （單位： $10^{-7}/^{\circ}\text{C}$ ）。

此外，關於強度試驗用燒成體測量 3 點彎曲強度（單位：MPa），跨距（span）為 15mm，十字頭速度為 0.5 cm/分鐘。

使用綠紙 S2~S6 以同樣的作法，關於 GC2~GC6 的燒成體測量膨脹係數及 3 點彎曲強度。

此等測量結果列示於表 3。

[表 3]

	GC1	GC2	GC3	GC4	GC5	GC6	GC7	GC8	GC9G1
玻璃種類	G1	G5	G5	G6	G6	G5	G10	G11	G12
玻璃粉末	75	68	75	60	70	90	65	80	50
氧化鋁粉末	25	28	25	40	30	10	25	20	0
鎂橄欖石粉末	0	7	0	0	0	0	10	0	0
BT 粉末	0	0	0	0	0	0	0	0	50
膨脹係數	83	95	80	84	85	81	75	95	82
相對介電常數	6.9	8.0	8.0	7.7	8.9	—	5.2	—	18
介電正切	0.0013	0.0018	0.0016	0.0015	0.0020	—	0.0031	—	0.0024
強度	270	230	235	154	170	154	—	—	—
收縮率	14.5	13.1	14.5	11.0	13.7	16.2	10.6	6.6	12.6

(例 1)

S1 (GC1) 及 S2 (GC2) 各自切割出 40mm×40mm，將 S1 為 2 片、S2 為 4 片、S1 為 2 片之合計 8 片的綠紙依此順序重疊，製作原料層層合體，2 片的 S1 經重疊而成者，係經燒成後成為第 1 及第 3 的介電體層之含有玻璃粉末的原料層，4 片的 S2 經重疊者，係經燒成後成為第 2 介電體層之含有玻璃粉末的原料層。

接著，將此原料層層合體以 10MPa 進行 1 分鐘壓黏加壓，於所得到的加壓品上挖出 4 個沖床孔使其形成 1 邊 30mm 的正方形的頂點，於 550℃ 保持 5 小時而分解去除樹脂成分後，於 750℃ 保持 1 小時，再進行於 875℃ 保持 1.5 小

時之燒成後製作層合介電體，藉由此層合介電體中之前述沖床孔而被形成的正方形的 1 邊的長度，於顯微鏡下測定而計算出收縮率，結果為 3.1%，再者，此收縮率為 5% 以下較佳。

此外，與先前測量 GC1 的燒成體的 3 點彎曲強度同樣作法，測量此層合介電體的 3 點彎曲強度，結果為 240 MPa，再者，此強度為 200MPa 以上較佳。

此等測量結果列示於表 4 的例 1 的欄。

(例 2~例 8)

與例 1 的情況同樣的作法，使用表 4 所表示的層結構的原料層合體製作例 2~例 8 的層合介電體，再者，例 6~8 為比較例，例 6 係於燒成體的加工中破壞，例 7、8 的 3 點彎曲強度無法測量。

收縮率與 3 點彎曲強度的測量結果列示於表 4。

[表 4]

	例 1	例 2	例 3	例 4	例 5	例 6	例 7	例 8
第 1、3 層	GC1	GC1	GC1	GC1	GC1	GC1	GC1	GC1
第 2 層	GC2	GC3	GC4	GC5	GC6	GC7	GC8	GC9
收縮率	3.1	3.0	3.5	3.1	12.2	10.3	6.6	10.3
強度	240	192	233	259	225	破壞	—	—

(例 9)

S1 (GC1)、S2 (GC2) 及 S9 (GC9) 各自切割出 40 mm×40 mm，將 S1 為 2 片、S2 為 2 片、S1 為 2 片、S9 為

1 片、S1 爲 2 片、S2 爲 2 片、S1 爲 2 片之合計 13 片的綠紙依此順序進行重疊，作爲原料層層合體，與例 1 同樣作法測量收縮率，結果爲 3.4%。

此例 9 係使用原料層 B、原料層 A、原料層 B、S9、原料層 B、原料層 A、原料層 B 依此順序進行重疊的原料層合體，前述第 1 方法的實施例，應與前述比較例 8 進行比較者，亦即，本發明的實施例之例 9 的收縮率，與比較例之前述例 8 比較下，明顯地減少。

## [產業上利用可能性]

被使用於作爲適用於微波帶等高周波區域中使用的行動電話等小型電子機器的回路或天線等之基板等之層合介電體的製造方法。

再者，文中引用 2007 年 4 月 25 日申請的日本特許出願 2007-115724 號的明細書、申請專利範圍、圖式及摘要的所有內容，作爲本發明的說明書的揭示內容。

### 五、中文發明摘要

發明之名稱：層合介電體之製造方法

本發明係提供一種使用安定的玻璃之層合介電體之製造方法。

燒成前的至少 1 層的原料層係由以質量%而言為 50~80 的玻璃粉末、20~50 的氧化鋁粉末所成的該玻璃粉末，以莫耳%而言，由  $\text{SiO}_2$  45~60、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  2~10、 $\text{BaO}$  10~30、 $\text{ZnO}$  10~20 等所形成，與此原料層相鄰的 2 個原料層的玻璃粉末，以莫耳%而言，由  $\text{SiO}_2$  45~55、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  2~20、 $\text{MgO}$  20~45 等所形成，後者的玻璃粉末的玻璃轉移點比前者的玻璃轉移點高 50℃ 以上，鄰接介電體層的 50~350℃ 之平均線膨脹係數的差的絕對值為  $15 \times 10^{-7}/^\circ\text{C}$  以下之層合介電體之製造方法。

### 六、英文發明摘要

發明之名稱：

## 十、申請專利範圍

1. 一種層合介電體之製造方法，其係使  $n$  為 3 以上的整數之  $n$  個介電體層，以相鄰的介電體層之於  $50 \sim 350^\circ\text{C}$  的平均線膨脹係數差的絕對值成爲  $15 \times 10^{-7}/^\circ\text{C}$  以下的方式進行層合之層合介電體之製造方法，其特徵係將經燒成而成爲上述介電體層之  $n$  個含玻璃粉末的原料層進行層合後燒成者，

成爲第 2 至第  $(n-1)$  個介電體層之含有玻璃粉末的原料層中的至少 1 個含有玻璃粉末的原料層，含有以質量百分率表示之  $50 \sim 80\%$  的玻璃粉末及  $20 \sim 50\%$  的氧化鋁粉末，

該玻璃粉末，含有下述氧化物基準的莫耳%表示之  $45 \sim 60\%$  的  $\text{SiO}_2$ 、 $0 \sim 10\%$  的  $\text{B}_2\text{O}_3$ 、 $2 \sim 10\%$  的  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $0 \sim 5\%$  的  $\text{CaO}$ 、 $10 \sim 30\%$  的  $\text{BaO}$ 、 $10 \sim 20\%$  的  $\text{ZnO}$ 、 $0 \sim 5\%$  的  $\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$ 、 $0 \sim 5\%$  的  $\text{TiO}_2 + \text{ZrO}_2 + \text{SnO}_2$ ，

該含有玻璃粉末的原料層之相鄰的 2 個含有玻璃粉末的原料層所含有的玻璃粉末的任一者，皆含有下述氧化物基準的莫耳%表示之  $45 \sim 55\%$  的  $\text{SiO}_2$ 、 $0 \sim 5\%$  的  $\text{B}_2\text{O}_3$ 、 $2 \sim 20\%$  的  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $20 \sim 45\%$  的  $\text{MgO}$ 、 $0 \sim 20\%$  的  $\text{CaO} + \text{SrO}$ 、 $0 \sim 10\%$  的  $\text{BaO}$ 、 $0 \sim 15\%$  的  $\text{ZnO}$ 、 $0 \sim 10\%$  的  $\text{TiO}_2 + \text{ZrO}_2 + \text{SnO}_2$ ，其玻璃轉移點比被挾持於上述 2 個含有玻璃粉末的原料層之含有玻璃粉末的原料層的玻璃粉末的玻璃轉移點高  $50^\circ\text{C}$  以上。

2. 如申請專利範圍第 1 項之層合介電體之製造方法，

其中上述 2 個含有玻璃粉末的原料層所含有的玻璃粉末的  $\text{TiO}_2 + \text{ZrO}_2 + \text{SnO}_2$  為 0~5 莫耳%。

3. 一種層合介電體之製造方法，其係使  $n$  為 3 以上的整數之  $n$  個介電體層，以相鄰的介電體層之於 50~350°C 的平均線膨脹係數差的絕對值成為  $15 \times 10^{-7}/^\circ\text{C}$  以下的方式進行層合之層合介電體之製造方法，其特徵係將經燒成而成為上述介電體層之  $n$  個含玻璃粉末的原料層進行層合後燒成者，

成為第 2 至第  $(n-1)$  個介電體層之含有玻璃粉末的原料層中的至少 1 個含有玻璃粉末的原料層，其所含有的玻璃粉，含有下述氧化物基準的莫耳%表示之 45~55% 的  $\text{SiO}_2$ 、0~5% 的  $\text{B}_2\text{O}_3$ 、2~20% 的  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、20~45% 的  $\text{MgO}$ 、0~20% 的  $\text{CaO} + \text{SrO}$ 、0~10% 的  $\text{BaO}$ 、0~15% 的  $\text{ZnO}$ 、0~10% 的  $\text{TiO}_2 + \text{ZrO}_2 + \text{SnO}_2$ ，

該含有玻璃粉末的原料層之相鄰的 2 個含有玻璃粉末的原料層所含有的玻璃粉末的任一者，皆含有以質量百分率表示之 50~80% 的玻璃粉末及 20~50% 的氧化鋁粉末，

該玻璃粉末，含有下述氧化物基準的莫耳%表示之 45~60% 的  $\text{SiO}_2$ 、0~10% 的  $\text{B}_2\text{O}_3$ 、2~10% 的  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、0~5% 的  $\text{CaO}$ 、10~30% 的  $\text{BaO}$ 、10~20% 的  $\text{ZnO}$ 、0~5% 的  $\text{Li}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}$ 、0~5% 的  $\text{TiO}_2 + \text{ZrO}_2 + \text{SnO}_2$ ，

其玻璃轉移點比被挾持於上述 2 個含有玻璃粉末的原料層之含有玻璃粉末的原料層的玻璃粉末的玻璃轉移點高 50°C 以上。

4.如申請專利範圍第 3 項之層合介電體之製造方法，其中上述至少 1 個含有玻璃粉末的原料層所含有的玻璃粉末的  $\text{TiO}_2+\text{ZrO}_2+\text{SnO}_2$  為 0~5 莫耳%。

5.如申請專利範圍第 1 至 4 項中任一項之層合介電體之製造方法，其中含有以質量百分率表示之 50~80%的玻璃粉末及 20~50%的氧化鋁粉末之含有玻璃粉末的原料層的玻璃粉末的玻璃轉移點為 550~700℃。

6.如申請專利範圍第 1 至 5 項中任一項之層合介電體之製造方法，其中含有以質量百分率表示之 50~80%的玻璃粉末及 20~50%的氧化鋁粉末之含有玻璃粉末的原料層，以質量百分率表示而言，含有 1~10%之 1 個以上選自鎂橄欖石、頑輝石及氧化鎂的陶瓷粉末。

7.如申請專利範圍第 1 至 6 項中任一項之層合介電體之製造方法，其中層合介電體的各介電體層的 9GHz 處之介電損失正切為 0.0050 以下。

七、指定代表圖：

(一)、本案指定代表圖為：無

(二)、本代表圖之元件代表符號簡單說明：無

八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：無