

# 行政院國家科學委員會專題研究計畫 成果報告

## 低溫積層壓電陶瓷材料的配方製程研究與界面分析

計畫類別：個別型計畫

計畫編號：NSC94-2622-E-009-009-CC3

執行期間：94年05月01日至95年04月30日

執行單位：國立交通大學材料科學與工程學系(所)

計畫主持人：陳三元

報告類型：精簡報告

處理方式：本計畫為提升產業技術及人才培育研究計畫，不提供公開查詢

中 華 民 國 95 年 5 月 22 日

## 摘要

本研究主要是低溫燒結積層型壓電式平面喇叭開發，使元件兼具有質量輕、耗電小、音質佳、尺寸薄及無任何電磁場干擾等特點外，並配合銀內電極製程技術，縮減成本為原高溫元件之5~7成。因此本計劃之執行以低溫壓電材料開發為重點，於0.5PZT-0.42PbNiNb-0.8PZN低溫壓電材料系統中，添加LiBiO<sub>2</sub>燒結助劑，並4wt%鉛過量，電性最佳，將燒結溫度從1200°C降至900°C以下，於900°C、2小時燒結，介電常數可達2832，K<sub>p</sub>為58%，並探討燒結壓電陶瓷薄片製程及低溫燒結與銀內電極的界面反應及匹配性，以做為建立積層型壓電式平面喇叭之製程技術。本研究達成目標如下：

1. 低溫壓電材料配方開發：完成燒結溫度900°C以下之壓電陶瓷材料開發，其介電常數K>2800，機電耦合係數K<sub>p</sub>>55%。
2. 壓電陶瓷薄片製作：完成之尺寸約1\*4cm<sup>2</sup>之積層陶瓷薄片製作，以銀為內電極，其積層數目3層以上，層厚<30μ。

**關鍵字：** 壓電陶瓷、低溫燒結、積層型平面喇叭、銀內電極

## ABSTRACT

Multilayer panel speakers developed from piezoelectric ceramics have unique characteristic including light weight, low power consumption, excellent sound, small size and non-interference by electromagnetic wave. In this project, low-temperature sintering PZT-based formula used for multiayer piezoelectric ceramics were developed. The sintering temperature will be reduced from 1200 to 900 which can be further combined with internal silver electrode to reduce cost down to 50~60% than the component sintered at traditional high temperature. In study, 0.5PZT -0.42PbNiNb -0.8PZN piezoelectric ceramics system with addition of LiBiO<sub>2</sub> sintering agency and extra 4% PbO can be the best used for low temperature sintering material at 900 2 hours. Dielectric constant K= 2832 and electromechanical coupling factor K<sub>p</sub>=58% can obtain from this composition. In addition, the interface interaction of cofiring PZT-based/Ag multilayer will be analyzed to improve the piezoelectric properties of multilayer panel speakers. The goal of this project is completed as follows:

1. Research in low temperature sintering piezoelectric material: piezoelectric material with sintering temperature below 900 , dielectric constant K>2800 and electromechanical coupling factor K<sub>p</sub>>55%.
2. Fabrication of piezoelectric ceramic thin piece with the size of 1\*4cm<sup>2</sup> and layer thickness <30μmultilayer ceramic thin piece.

**Keywords:** piezoelectric ceramics ; low temperature sintering ; Multilayer panel speakers ; internal silver electrode

## 1. 前言

近年來隨著 3G 手機、MPEG 播放器、筆記型電腦、數位相機、PDA 及其它攜帶型電子產品等快速地成長，而導致其中高功率、微小型的壓電平面喇叭受到廣泛的運用。然而為因應元件微小化，功能多樣化之趨勢，以增加其體積效率。積層壓電陶瓷元件 (Multilayer Piezoelectric Ceramic Component) 的研發，成為一個相當重要的導向。然而在積層陶瓷的製作過程中，壓電陶瓷材料必須要與內導電極層共燒 (Co-Fire)，但是目前一般所用的壓電陶瓷材料之燒結溫度都相當高，以鋇鈦酸鉛 (PZT) 為主，約為 1200~1350°C，使得內導電極不得不使用含有大量的鈀 (Pd) 等銀合金。而此類金屬或合金，都含有較高的傳導電阻 (Conductivity Resistance)，鈀的傳導電阻一般約銀的十倍左右，且相當的昂貴，而目前金屬鈀之價格約 8000 USD/磅，且價格常受到國際貴金屬價格之影響，易於上下波動，約為銀電極價格之 20~25 倍 (金屬銀約 80 USD/磅)，佔材料成本 80%，並佔產品所有成本之 50%。因此雖然縱使壓電式平面音響元件，較傳統電磁式及動圈式之元件具有質量輕、耗電小、音質佳、尺寸薄及無任何電磁場干擾等優點，但由於價格之競爭力不及傳統元件，使需求量受到嚴重影響，也是國內廠商於產品無法順暢推展之主要因素。因此若為了降低金屬導體的傳導電阻，則祇有降低 Pd, Pt 的含量，或甚至採用純銀 ( $T_m=961^\circ\text{C}$ ) 等導體。在此情況下，就必須降低壓電材料之燒結溫度 (最好低於 950°C)，因此從事於適合於低溫燒結之壓電材料的研究開發，便顯得非常的重要。

## 2. 研究目的

為了因應價格方面之挑戰，積層平面壓電陶瓷之材料需要重新做調整，考量以往於積層陶瓷與共燒陶瓷方面之經驗，使成本能大幅下降之主要構想，為降低陶瓷材料之燒結溫度至 900°C 以下，並以銀電極搭配共燒，如此將可節省 40% 之材料與電力成本，故開發低溫燒結壓電陶瓷材料將成為積層壓電式平面音響元件發展之重點。此外，目前雖然有關 Ag/Pd 內電極與被動元件例如積層電容、電阻、電感及半導體的研究及資料相當多，可是有關壓電材料與電極塗料 (paste) 的低溫共燒研究仍相當少，尤其考量銀 (Ag) 內電極與積層壓電材料在低溫共燒的匹配性，反應性等，這主要其常是一般公司的 "Know-how"，在資料上也不易取得，甚至於內電極 (Ag)，對於積層壓電材料薄片在低溫共燒，所可能產生的界面反應，例如銀的擴散與穩定性，及中間相的生成，對壓電特性的影響等。根據詠業公司對市場之調查及相關產品之研究結果發現，這些低溫材料尚未導入特定產品，且目前於市場上亦無推出。因此這方面的研究，對於詠業公司在壓電平面喇叭的製程技術發展，都是相當重要及值得探討。

## 3、文獻探討

過去在製作壓電元件時，主要使用以鋇鈦酸鉛 (PZT) 為主之壓電陶瓷，其燒結溫度約為 1200~1350°C，在此溫度範圍內，積層壓電陶瓷與之匹配之內電極材料必須是含鈀 30% 左右之銀鈀電極，價格相當昂貴，且此一高燒結溫度，使 PZT 中之 PbO 容易揮發，因 PbO 之揮發溫度約為 888°C，使最終之組成難以控制。另一方面，純 PZT 需要較高之極化電場，約為 30KV/mm，同時 PZT 陶瓷最大機電耦合係數組成存在於 MPB 之範圍內，然此一範圍之  $Q_m$  值很小，使得應用方面有所限制，所以通常對 PZT 陶瓷施以少量或微量固溶添加，來改善特性以符合各種應用需求。這些少量或微量之添加組成，包括有

等價替代(isovalent substitution)、受體替代(acceptor substitution)、施體替代(donor substitution)及具有部分受體部分施體之穩定劑(stabilizer)等。

PZT 陶瓷添加這些可替代互相替代之固溶組成後，燒結溫度可下降幾十度到幾百度，如  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$  及  $\text{Pb}(\text{Sc}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$  系統之燒結溫度約於  $1250^\circ\text{C}$  左右，而  $\text{Pb}(\text{Ni}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3\text{-PbZrO}_3$  ( $\text{PbNiNb-PT-PZ}$ ) 系統可使系統之燒結溫度降低至  $1100^\circ\text{C}$  以下，並具有優良之機電耦合特性，成為壓電式平面喇叭之適用配方。以上相關組成，為達到本計畫低溫燒結之目標，低溫燒結必須下降至  $900^\circ\text{C}$  左右，甚至更低，故添加適當低溫燒結助溶劑是必要的。而這些助溶劑應用於幫助壓電陶瓷組成之燒結，通常能溶解及對壓電陶瓷粉體，並產生良好之潤溼(wetting)作用，並形成一薄層液相膜，形成所謂液相燒結，液相燒結較固態燒結能大幅降低燒結溫度，按照 Lenel et al(1)，Gurland 及 Norton(2)，Kingery(3) 等人對液相燒結的主要步驟描述如下：

(1) 粉末重排過程：(2) 溶解再析出過程：(3) 粗化過程：

目前有關於低溫燒結使用之助溶劑或液相燒結促進劑，可歸納於以下幾項：(1) 玻璃形成劑(Glass Former)因為這些化合物之熔點都相當低，且主要以三、四價之氧化物如  $\text{B}_2\text{O}_3$ 、 $\text{SiO}_2$  為主，而這些離子半徑都相當小，無法溶入鈣鈦礦結構之晶格中。(2) 修飾劑(Modifier)，型態 I，即  $\text{BaO}$ 、 $\text{SrO}$ 、 $\text{CaO}$  等，易於溶入 PZT 晶格中，主要取代鈣鈦礦結構之 A 位原子，但亦可能部分溶於 B 位；型態 II，離子僅能輕微溶入 PZT 晶格中，II1 通常當作受體 (acceptors)，II2 通常當作施體 (donors)。(3) 其他低熔點添加劑，Park(4) 最早利用添加於  $738^\circ\text{C}$ ，有液相生成，Walker(5) 等人發現  $\text{LiF}$  是優良之燒結促進劑，於  $1000^\circ\text{C}$  以下有良好之燒結性，G. Desgardin(6) 等人發現  $\text{BaLiF}_3$  如同  $\text{LiF}$  具優良之效果。

在最近之研究方面，Kondo<sup>(7,8,9)</sup> 等人於  $\text{PbNi}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3\text{-PbTiO}_3\text{-PbZrO}_3$  ( $\text{PbNiNb-PT-PZ}$ ) 系統中所做低溫燒結研究，得到優良之機電耦合特性，並有寬廣之音頻響應，而由  $\text{PbNiNb}$  之添加亦可使系統之燒結溫度降低至  $1100^\circ\text{C}$ ，另外過量之  $\text{PbO}$  對降低燒結溫度亦有效果，在 5mol% 過量  $\text{PbO}$  之添加之後，將於  $900^\circ\text{C}$  左右產生液相燒結(liquid-phase sintering)，此因  $\text{PbO-Nb}_2\text{O}_5$  與  $\text{PbO-TiO}_2$  (約  $868^\circ\text{C}$ ) 系統之共溶點(eutectic point)低於  $900^\circ\text{C}$ ，而可將整體  $\text{PbNiNb-PT-PZ}$  系統粉體之可燒結溫度降低至  $950^\circ\text{C}$  以下，而有機會使  $\text{Ag}$  成為內電極一起共燒。在液相燒結之方式之外，適當低溫燒結助劑之添加，亦有助於降低鈣鈦礦結構鐵電陶瓷之燒結溫度， $\text{PGO}(\text{Pb}_5\text{Ge}_3\text{O}_{11})$  為鐵電材料，其溶點為  $738^\circ\text{C}$ ，以 2wt%-之添加與 PZT 共燒，其燒結溫度可低於  $900^\circ\text{C}$  以下，且機電耦合係數接近 65%，而  $\text{LBO}(\text{LiBiO}_2:\text{LiBiO})$  也為低溫鐵電材料，溶點低於  $700^\circ\text{C}$  以下，少量添加時可達到與 PGO 相當之燒結效果。因此為能有效降低燒結溫度達本計劃之目標是  $900^\circ\text{C}$  以下，且能與銀電極共燒之材料，添加部分較低熔點之固溶相，如  $\text{PNZ}(\text{PbNb}_{2/3}\text{Zn}_{1/3}\text{O})$ 、 $\text{PMN}(\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O})$ 、 $\text{PMS}(\text{PbMg}_{1/3}\text{Sb}_{2/3}\text{O})$ 、 $\text{PMT}(\text{PbMg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3}\text{O})$ 、 $\text{PNN}(\text{PbNi}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3)$  等材料，或再輔以少量低熔點之氧化物、玻璃材料及碳酸鹽類材料，而產生低溫燒結之效果，為目前較可行性及切入研究之時機。

## 4、實驗方法

### 4-1.原料

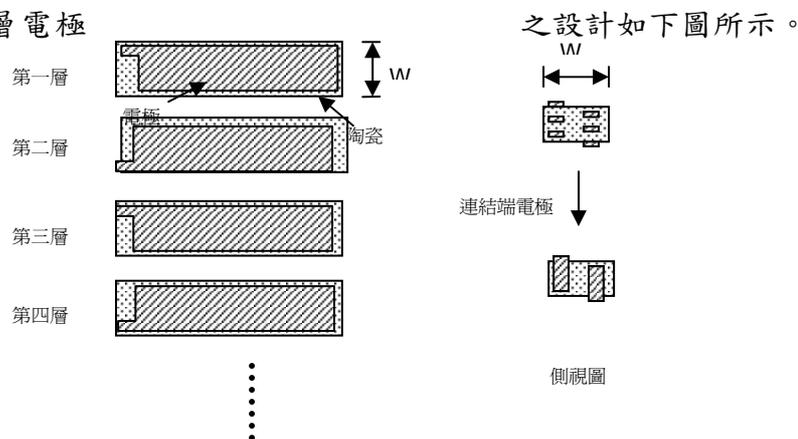
名稱	PbO	CaCO <sub>3</sub>	TiO <sub>2</sub>	ZnO	Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	NiO
製造商	三井	SABED	Ishihara	林純藥	Merck	Merck

### 4-2. 材料製程

(1)稱粉→(2)球磨混合→(3)烘乾→(4)煨燒→(5)球磨→(6)烘乾→(7)成型→(8)燒結

### 4-3. 陶瓷薄片主要製程:

- (1) 稱重(刮刀配方)
- (2) 球磨混合：將球磨桶內裝入氧化鋯球，球重：粉重=2.5：1，加入有機添加劑一起球磨混合 40 小時。
- (3) 倒漿：球磨後以濾網分離磨球及漿料，將漿料倒入漿料桶內。
- (4) 抽氣：利用真空幫浦抽氣，使漿料黏度提高到 2000~3000CPS。
- (5) 刮刀：在刮刀機上成形，刮刀縫隙 0.1mm，生胚乾燥後約 35 $\mu$ m。
- (6) 老化：把生胚裁成適當大小(比網印機底板大一些)，放入 70 $^{\circ}$ C 烘箱 30 分鐘。
- (7) 網印堆疊：把老化後之生胚，以依序相疊之方式網印內電極，電極材料為 Ag paste，內電極之層數為 2 層、4 層及 6 層，其生胚即為 3 層、5 層及 7 層。單數層與偶數層電極



- (8) 均壓：均壓條件：80 $^{\circ}$ C，3000psi，10 分鐘。
- (9) 切割：依據生胚上之切割線，用切割機切出長方型的壓電陶瓷生胚。
- (10) 脫脂：2 $^{\circ}$ C/min250 $^{\circ}$ C/2hrs→1 $^{\circ}$ C/min 400 $^{\circ}$ C/2hrs→1 $^{\circ}$ C/min600 $^{\circ}$ C/4hrs。
- (11) 燒結：3 $^{\circ}$ C/min→800 $^{\circ}$ C/1hr→2 $^{\circ}$ C/min 900 $^{\circ}$ C/1~2hr→3 $^{\circ}$ C/min 室溫
- (12) 外電極製作：利用網印塗上 Ag paste 外電極及端電極，燒附溫度 730 $^{\circ}$ C。
- (13) 極化：利用極化機極化壓電陶瓷薄片，極化電場為 10V/ $\mu$ m，常溫極化。

## 5、結果與討論

低溫壓電材料配方開發，主要達成燒結溫度 900°C 以下之壓電陶瓷材料開發，其介電常數  $K > 2500$ ，機電耦合係數  $K_p > 55\%$ ，構想以添加玻璃形成劑及低熔點固熔添加劑之方式來達成，首先以玻璃形成劑做添加，於 PZT+PNN ( $\text{PbNi}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ ) 系統進行燒結溫度 950°C 以下試驗，於不同比例之添加中，得到介電常數  $1900 > K > 1700$ ，平面機電耦合係數  $K_p > 45\%$ ，其介電常數可能因玻璃之作用而無法再增加，且玻璃之添加量增大時，介電常數反而有下降之趨勢，尚未達到目標。

主成份 PZT52/48	玻璃添加劑 組成	添加量 wt%	燒結條件	密度 g/cm <sup>3</sup>	K 1KHz	K <sub>p</sub>
PZT+PNN0.15	BBiZnCu	1	950°C / 2hr	7.65	1789	0.51
PZT+PNN0.2	BBiZnCu	1	950°C / 2hr	7.63	1781	0.54
PZT+PNN0.25	BBiZnCu	1	950°C / 2hr	7.68	1880	0.55
PZT+PNN0.25	BBiZnCu	2	950°C / 2hr	7.64	1795	0.51
PZT+PNN0.3	BBiZnCu	1	950°C / 2hr	7.71	1898	0.53
PZT+PNN0.3	BBiZnCu	1	900°C / 2hr	7.65	1802	0.48

參照已往之經驗，改以低熔點固熔添加劑之方式，於 0.5PZT-0.42PbNiNb-0.8PZN 系統中，分別添加 2.5%PGO( $\text{Pb}_3\text{Ge}_3\text{O}_{11}$ )、2.5%LiBiO ( $\text{LiBiO}_2 \sim \text{LiBiO}$  固溶組成)及 2.5%BaLiF<sub>3</sub>，分別於 700~1100°C 以 2 小時燒結成圓片狀之試片，試片經外電極塗布及高壓極化之後(於矽油中 60°C、2KV/mm、20min)，進行相關電性測試。圖 5-1 為燒結體於不同溫度中燒結，密度隨溫度之變化，未添加燒結助劑之試片於 1000°C 以下仍無法緻密化，而其他三種分別添加 2.5%PGO、2.5% LiBiO 及 2.5%BaLiF<sub>3</sub>之試片，其燒結緻密化之溫度較未添加者低約 200°C 左右，且三者之趨勢大略一致，在 750 至 800°C 之間有大幅提升密度之現象，而三者最大之密度區間約於 900~1000°C 左右，最高密度約 7.7g/cm<sup>3</sup>，而純粹 0.5PZT-0.42PbNiNb-0.08PZN 之試片，於 1100°C 以上才達到最高密度。圖 5-2 5-3 為純粹 0.5PZT-0.42PbNiNb-0.08PZN 之顯微結構，於 900°C 燒結體之粒徑約 3 $\mu$  以下，而且仍舊有許多孔隙，而溫度到達 1100°C 後，粒徑約為 900°C 之 2~3 倍，鈣鈦礦結構之晶形較明顯化，而孔隙率亦大為降低，圖 5-4~5-7 為純粹 0.5PZT-0.42PbNiNb-0.08PZN 添加 2.5%LiBiO 之顯微結構，750°C 時之粒徑與未添加者於 1100°C 燒結者相當，但存在許多與粒徑相當之孔隙，顯示液相燒結以使整體之晶粒成長，但緻密化之驅動力仍舊不足，而當燒結溫度增加到達 900°C 時，試片之緻密化已經相當明顯，晶粒大小約為 3 $\mu$ ，晶形尚不明顯，而 1000°C 時晶形大為明顯，1100°C 時結晶顆粒更大，易導致應力較不易於晶界中抵消，而導致一些微裂縫產生，將此對比於密度隨溫度之變化圖形，亦可映證 900~1000°C 左右燒結是密度最高之區域。在介

電常數及  $K_p$  隨溫度之變化圖形中(圖 5-8 5-9)，所有配比在增加燒結溫度時，介電常數及  $K_p$  都是增加之趨勢，其中未添加燒結助劑組成於 1100°C 以上燒結，才能到達與添加燒結助劑者相當之效果，而 PGO、LiBiO、BaLiF<sub>3</sub> 三者添加中，又以 LiBiO 對溫度之降低最為明顯，於 900°C 燒結，介電常數可達 2500 以上， $K_p$  可達 55，符合本計劃之目標，其餘二者皆比 LiBiO 高 50~100°C，這可能是 LiBiO 熔點最低之故，若是燒結助劑之添加量再略為增加，緻密化之溫度亦會再提前，但當添加量過量時，介電常數反而不易增加。

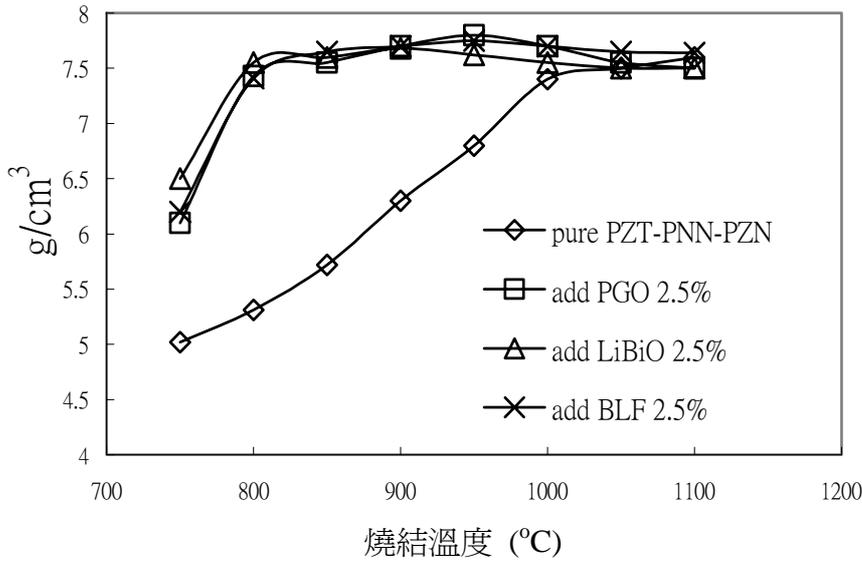


圖 5-1 試片於不同溫度中燒結，密度隨溫度之變化

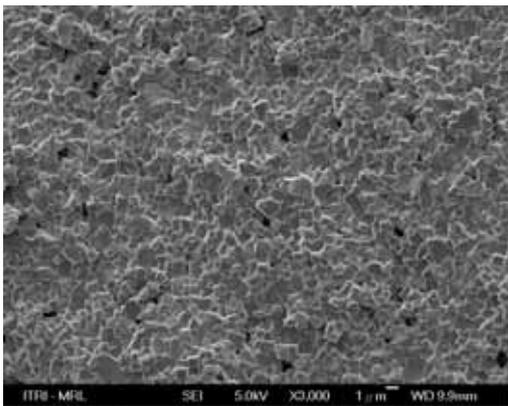


圖 5-2 純 PZT-PbNiNb-PZN 900°C 燒結

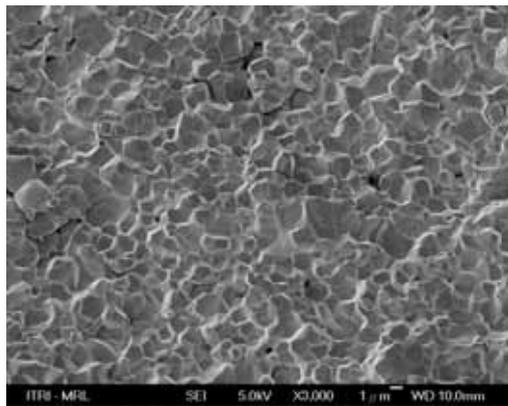


圖 5-3 純 PZT-PbNiNb-PZN 900°C 燒結

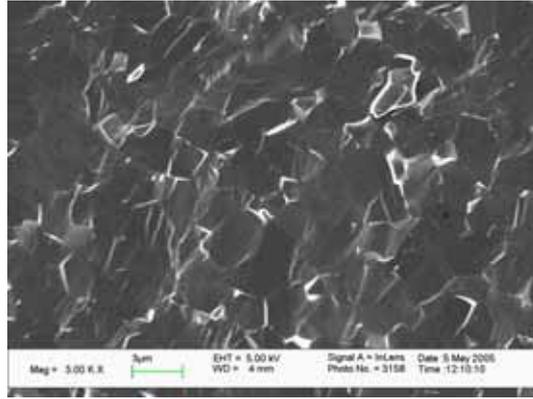
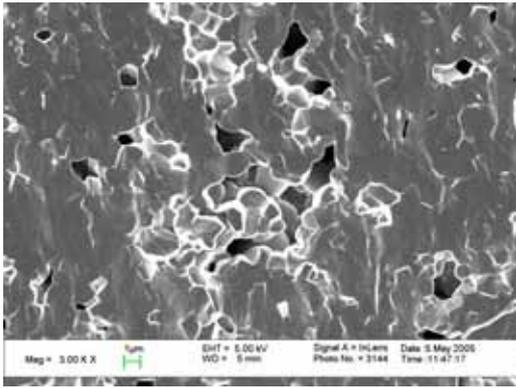


圖 5-4 PZT-PbNN-PZN+LiBiO 750°C 燒結 圖 5-5 PZT-PbNN-PZN+LiBiO 900°C 燒結

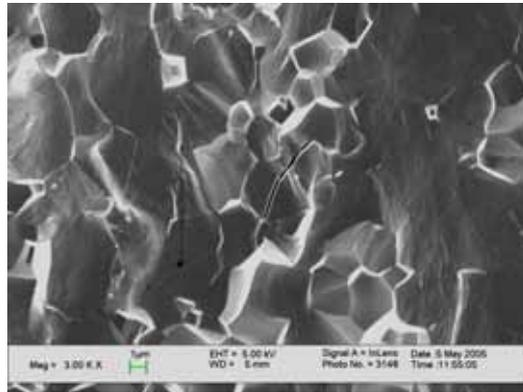
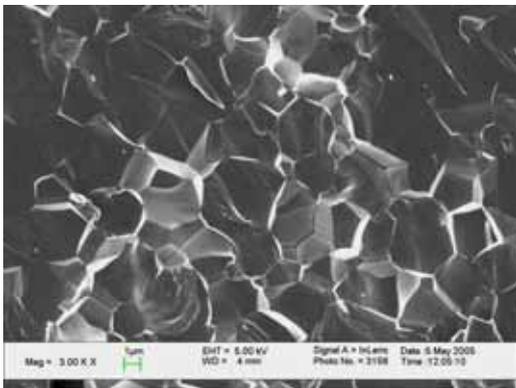


圖 5-6 PZT-PbNN-PZN+LiBiO 1000°C 燒結 圖 5-7 PZT-PbNN-PZN+LiBiO 1100°C 燒結

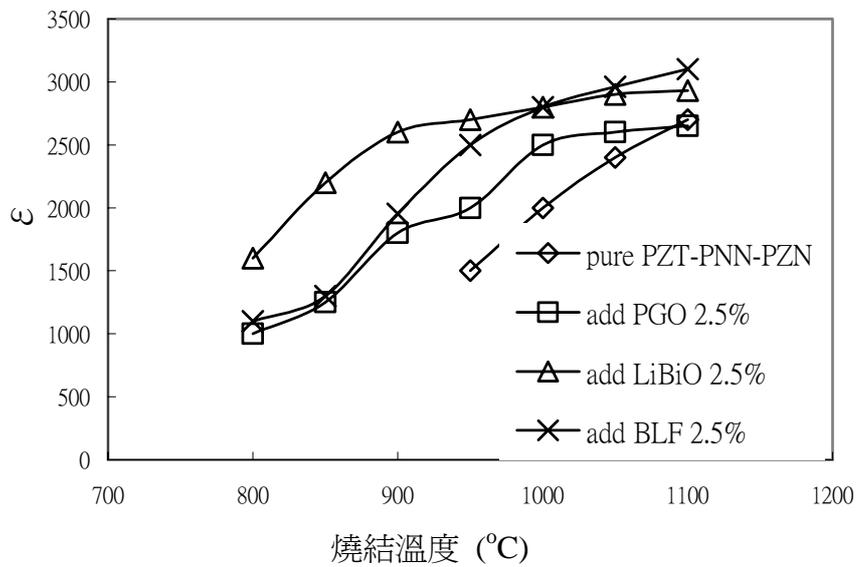


圖 5-8 試片於不同溫度中燒結，25°C 時介電常數隨溫度之變化

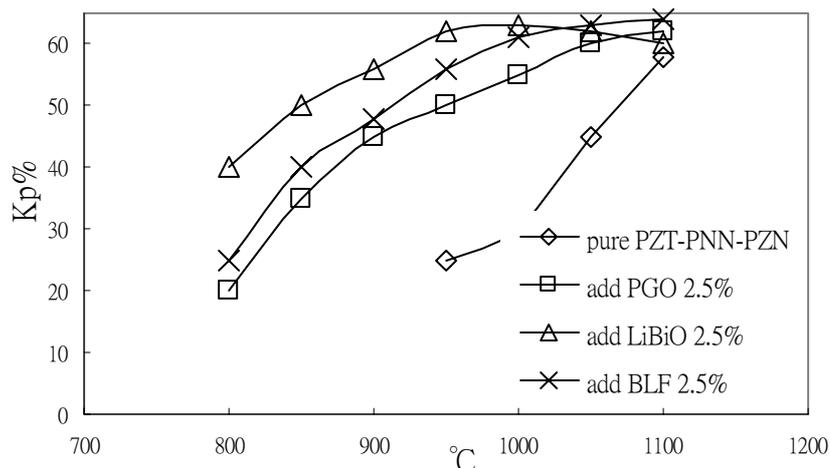


圖 5-9 試片於不同溫度中燒結，25°C時 Kp 隨溫度之變化

進一步於 0.5PZT-0.42PbNiNb-0.8PZN 系統中，添加過量鉛 2~6wt%，並以 PGO、LiBiO、BaLiF<sub>3</sub> 三者燒結助劑做添加，於 900°C 以 2 小時燒結成圓片狀之試片後加以量測，由結果得知，過量鉛之添加，使介電常數及 Kp 皆略為提升，於 LiBiO 燒結助劑添加中，4wt%鉛過量，電性最佳，達成本計劃查核點，而 PGO、BaLiF<sub>3</sub> 二者添加組成 4wt%鉛過量組成，於 900°C 燒結亦達到目標。

主成份	燒結助劑	鉛過量	燒結溫度	密度	介電常數	Kp
0.5PZT-0.42PbNiNb-0.08PZN	LiBiO2.5%	2wt%	900°C	7.71	2650	0.56
0.5PZT-0.42PbNiNb-0.08PZN	LiBiO2.5%	4wt%	900°C	7.76	2832	0.58
0.5PZT-0.42PbNiNb-0.08PZN	LiBiO2.5%	6wt%	900°C	7.78	2750	0.52
0.5PZT-0.42PbNiNb-0.08PZN	PGO2.5%	4wt%	900°C	7.82	2563	0.55
0.5PZT-0.42PbNiNb-0.08PZN	BaLiF <sub>3</sub> 2.5%	4wt%	900°C	7.76	2611	0.56

製作完成之壓電陶瓷薄片，積層數目 5 層及 7 層陶瓷薄片，薄片外形平整，顯微結構如圖 5-10、5-11 所示，電極層厚約為 2 $\mu$ ，互層電極介於壓電陶瓷之間十分平整，顯示陶瓷與銀電極之收縮率達一致，且陶瓷與銀電極介面匹配特性良好。陶瓷部分之

顯微結構如圖，粒徑約為  $1\sim 3\mu$ ，除氣孔稍多之外，與之前配方開發由粉體成型燒結之顯微結構相類似。疊層之生胚由 TMA 熱機械分析顯示，生胚於  $790^{\circ}\text{C}$  開始大幅收縮，量測出  $900^{\circ}\text{C}$  持溫後約收縮 32%，而實際收縮率為 22~25%，達緻密化。為了解銀電極中銀之擴散(diffusion)問題，利用電子顯微鏡能量分散分析系統(EDS)作量測，於銀電極處、距銀電極  $2\mu$ 、 $5\mu$  及  $7\mu$  處作單點成份分析，顯示銀電極的確向兩旁壓電陶瓷有擴散之跡象，比較積層壓電陶瓷薄片介電常數之特性，積層數目 5 層之薄片，左右電極各 3 層，共有六層電極，其電容值為  $260\text{nF}\sim 350\text{nF}$  之間，換算成介電常數為  $2450\sim 3360$  之間，而原先塊材之介電常數為 2832 左右比較穩定，而銀擴散可能造成介電常數分布較廣之原因之一，介電損失約 1.5%~2.5%，亦比塊材稍高，但在此範圍之下仍然可作為平面喇叭使用。

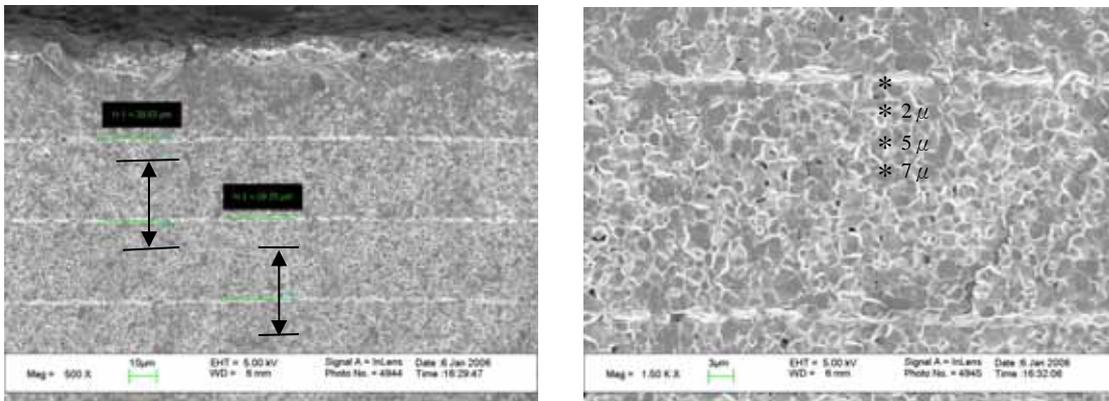


圖 5-10、5-11 壓電陶瓷薄片顯微結構

## 6、結論與建議

本研究之執行以低溫壓電材料開發為起點，並結合壓電陶瓷薄片製程，成為積層型壓電式平面喇叭之銀內電極製程技術，其具體之計劃目標已達到如下：

1. 低溫壓電材料配方開發：完成燒結溫度  $900^{\circ}\text{C}$  以下之壓電陶瓷材料開發，於  $0.5\text{PZT}-0.42\text{PbNiNb}-0.8\text{PZN}$  低溫壓電材料系統中，添加  $\text{LiBiO}$  燒結助劑，並 4wt% 鉛過量，電性最佳，其介電常數  $K > 2500$ ，最佳可達 2832，機電耦合係數  $K_p > 55\%$ 。
2. 壓電陶瓷薄片製作：完成之尺寸約  $1 \times 4\text{cm}^2$  之積層陶瓷薄片製作，以銀為內電極，其積層數目 3 層以上，層厚  $< 30\mu$ 。
3. 低溫壓電材料系統搭配銀電極，銀電極的確向兩旁壓電陶瓷有擴散之跡象，比較積層壓電陶瓷薄片介電常數之特性，其電容值為  $260\text{nF}\sim 350\text{nF}$  之間，換算成介電常數為  $2450\sim 3360$  之間，而原先塊材之介電常數為 2832 左右比較穩定，而銀擴散可能造成介電常數分布較廣之原因之一，介電損失約 1.5%~2.5%，亦比塊材稍高，但在此範圍之下仍然可作為平面喇叭使用。

## 致謝

感謝國科會與詠業科技公司給予研究經費的支持

## 參考文獻

1. F.V.Lenel, Trans.AIME 175,1948
2. J.Gurland and .J.T.Norton, Trans,AIME 194,1952
3. W.D.Kingery, J.Appl.phys,30,1959
4. Sang Moo Park, Ph. D. Thesis, University of Illinois at Urbana Champaign.
5. B.E. Walker, Jr., R. W. Rice, R. C. Pohan-Ka, and J. R. Spann, Am. Ceram. Soc. Bull., 55(3) 274-76, 284-85(1976)
6. G. Desgardin, et al., “BaLiF3 – A New Sintering Agent for Multilayer Capacitors”, J. Am. Ceram. Bull. 73(4) 564-570 (1990)
7. Masao Kondo., Masaharu Hida, Koji Omote, Osamu Taniguchi, Tsuyoshi Mita, Shigeyoshi Umemiya, Kazuaki Kurihara. Sensors and Actuators A 109 (2003) 143–148
8. Ruzhong Zuo, Longtu Li, Xiaobing Hu, Zhilun Gui. Materials Letters 54 (2002) 185– 190
9. Takushi Hayashi, Takayuki Inous, Yoshikazu Akiyamn. Jpn. J. Appl. Phys. Vol.38 (1999) pp5549~5552