

行政院國家科學委員會專題研究計畫成果報告

無線通訊用積層微波陶瓷元件之研發(II)

微波介電材料低溫燒結及積層技術(子計劃 -)

Microwave Dielectrics for Low-Temperature Sintering and Multilayer Technology

計畫編號：NSC 88-2213-E009-130

執行期限：87年8月1日至88年7月31日

主持人：林 鵬 教授 國立交通大學材料科學與工程學系

一、中文摘要

關鍵詞：通訊元件、積層陶瓷、低溫燒結、濾波器、天線

無線通訊的機具為求攜帶方便，對於使用的被動元件尺寸朝向輕薄短小。因此以積層陶瓷技術來製作微波元件是達成此一目標的可行方式。

目前業界多以有機溶劑形成漿料[1-3]後再以刮刀成型法將微波陶瓷漿料製作成積層元件。由於毒性高、易燃、成本高且對環境傷害大，故本計劃持續上年度計劃所開發水系漿料的製程[4]來製作微波元件。

因積層元件內電極中含低熔點的銀電極，陶瓷體內多添加低溫玻璃成分以便在低溫下 ($\leq 950^{\circ}\text{C}$) 燒結後可得緻密且品質良好的元件 [5-9]。其主要是利用玻璃液態相 (liquid-phase) 的形成，來達到微波陶瓷燒結體緻密化的要求 [10]。本計劃研究一特定鋇鎳鈦成分的微波陶瓷添加一特定低熔點玻璃(鋅硼矽系統)，開發出穩定的水系漿料，並以刮刀法研製出生胚薄片。進行低溫燒結之研究，並利用網印、疊壓等積層陶瓷製作方式試作出多層微波元件 (Band Stop Filter)。

本年度並以蒸鍍(thermal coating)的方式製作一 leaky wave 天線，並完成測試；該天線的設計是利用去年度子計劃 1 完成的模擬結果，於今年度執行計劃中實際試作

完成。

英文摘要

Keywords: communication devices, multilayer ceramics, low-temperature sintering, filter, antenna

Abstract

The multilayer-ceramic microwave devices are highly demanded in the current wireless communication system, due to the portability brought by their much reduced size. Doctor blade method is usually adopted in the industry for processing ceramic slurry into green tapes and the multilayer devices. In this project a stable water-based slurry is developed to replace the slurry using organic solvent. The latter, with high toxicity and flammability, is currently taken as a standard process in the industry.

The main works of this year also include 1. The study of sintering of the ceramic powder (Ba-La-Ti oxides) mixed with a low-melting-point glass (Zn-B-Si system), with a aim to obtain a densified ceramic body at a sintering temperature below 950°C , 2. the fabrication of a multi-layer ceramic devices using the green tape made of the ceramic mixed with glass, and 3. to make a leaky wave antenna device, The design of the which was provided from the project 1 in last year.

二、緣由與目的

為開發微小化之微波被動元件，本計

劃利用去年度的研究成果，以先進製程與新型材料開發積層陶瓷微波元件製作技術。

三、研究方法及步驟

A. 積層微波陶瓷濾波元件製作

本計畫研究中，針對先前本實驗室已研發之微波陶瓷系統 BaO-La₂O₃-4.67TiO₂ 添加商用玻璃系統 GP-032 (ZnO-B₂O₃-SiO₂, Nippon Electro Glass Co.) 進行了一系列的元件製作有關工作。包括生胚薄帶的製作及燒結性質研究，採用不同的燒結溫度及不同的有機添加物。並將此燒結後薄片作單層電極化處理製成微波元件。程序如下：

BaO-La₂O₃-4.7TiO₂ 陶瓷粉體的製備是以固態法將莫耳比為 1 比 1 比 4.67 之 BaCO₃、La₂O₃ 和 TiO₂ 進行球磨 48 小時之後於 1300°C 煅燒 1 小時。

製備好的漿料 (Slurry) 內含 BaO-La₂O₃-4.67TiO₂ 陶瓷粉體、GP-032 玻璃粉、PVA_(aq) (Polyvinyl Alcohol) 及 PEG 等。此漿料倒入刮刀機內刮出厚膜，再經乾燥後獲得厚度約為 300-400 μm 之生胚厚膜。

將製好的生胚薄片進一步製成多層微波通訊元件，其步驟如下：

1. 將生胚薄片整平後，利用網版印刷機將調配好的純銀漿料網印設計電路於薄片上。
2. 利用對準機將各層印有電路的薄片對位後，使用疊壓機於 80°C/2000kg 的調件下進行壓合。
3. 將壓合完成後的生胚薄片依照對位線裁切出元件的生坯體。
4. 生坯體在 250°C/2h 下脫脂後，再以 900°C/2h 的調件進行燒結。
5. 將燒結後的陶瓷體兩端接上端電極後，經 600°C/1h 熱處理後完成。

B. leaky wave antenna 製作

1. 利用 BOE 溶液清洗基材(康寧公司生產之 7059 型玻璃)。

2. 將 metal mask 置於玻璃基材上，利用蒸鍍機把銀蒸鍍於基材表面。
3. 以 lift-off 的方式製作出圖樣。
4. 於樣品背面蒸鍍一層銀作為接地層 (background)。
5. 使用 NSI 微波量測系統進行特性量測。

四、結果與討論

A. 積層微波陶瓷濾波元件製作

與玻璃粉混合燒結之陶瓷粉，必需具有高結晶度及良好的微波性質，而且可被研磨成為微細粉末。這些要求可經由適當之鍛燒溫度達成。

圖 1 為陶瓷粉經鍛燒後之 XRD 繞射圖。當 $T_c \leq 1100^\circ\text{C}$ 時，主要生成相為 BaTi₄O₉ 及 La₂Ti₂O₇。當 $T_c > 1100^\circ\text{C}$ ，BaLa₂Ti₄O₁₂ 逐漸生成，當 $T_c = 1300^\circ\text{C}$ 時主相即變為 BaLa₂Ti₄O₁₂，而二次相為 Ba₄Ti₁₃O₃₀(B₄T₁₃)，因此在本研究中，陶瓷粉之鍛燒溫度選定為 1300°C。圖 2 為陶瓷加入 20wt%GP-032 玻璃混合後，以刮刀成形法製成生坯薄帶，經過疊壓後生坯體的 TMA 分析曲線圖，可以明顯看出在 900°C 時生坯體以近乎 30% 的收縮量達到緻密，可以達到本計劃所要求低溫燒結的調件 (<950°C)；在燒結過程中有兩個溫度範圍收縮速率較快，分別在 200-250°C 與 550-600°C 間，前者是所添加的黏結劑系統 (PVA-PEG) 的裂解揮發出 CO₂ 的所造收縮；後者則是因為加入的玻璃融化造成的液相，促使陶瓷體內部開使重新排列所達到的緻密化效果。所以在選擇升溫曲線時須特別注意這兩段的溫度區間，因此本研究在這溫度區間設計燒結程序的升溫速率為 1°C/min 以防止樣品因收縮過快導至變形或破裂。

在微波元件的製作方面，先將生坯薄片以 1000kg 的重量整平後，利用網版印刷機將設計好電路圖樣的網印在薄片上，網印的調件為：刮刀角度 45 度、網版與生坯間距 (snap-off) 0.1cm、刮刀行進速度

5cm/sec;網印後以 70°C/10min 調件烘乾，先利用對準機對位，再以疊壓機於 80 °C/2000kg 的調件下壓合 30min；將生坯體依對位線將各別的元件生坯裁切出來，經過脫脂、燒結的過程後得到緻密的陶瓷元件，再以銀漿塗佈於內電極引出端，經 600 °C/1h 的熱處理後，即完成一 band-stop 型微波陶瓷濾波元件。

B. leaky wave antenna 製作

該天線的設計尺寸圖如圖 3 所示，每一線單元之距離為饋入微帶線之一個導波波長(guided wavelength)，使得每一線單元均為同相饋入。經過二十個天線單元後，即可得到窄波束，並可將大部份之能量輻射出去。

本研究利用 7059 玻璃作為基材，使用蒸鍍(Thermal coating)的技術將所設計的圖樣以銀鍍於基材上。製作完成後的樣品經過 NSI 微波系統量測結果如圖 4、5 所示，在 22GHz 的頻率下具有很好的集中效果。

五、參考文獻

- [1] D. J. Shanefield and R. E. Mistler, *Am. Ceram. Soc. Bull.* 53(5): 416-420 (1974)
- [2] P. Boch and T. Chartier, in *Proceedings of the International Ceramic Conference AUSTCERAM 88, Part 2* (C. C. Sorrell and B. Ben-Nissan eds.). Trans Tech Publications, Sydney, 1988, pp. 813-819
- [3] L. Braun, J. R. Morris, Jr., and W.R. Cannon, *Am. Ceram. Soc. Bull.* 64(5)
- [4] D. Hotza, and P. Greil, "Review: Aqueous Tape Casting of Ceramic Powders," *Mater. Sci. Eng.*, A202 pp.206-17 (1995).
- [5] T. Takada, S.F. Wang, S. Yoshikawa, S.J. Jang, and R. E. Newnham, "Effects of Glass Additions on (Zr,Sn)TiO₄ for Microwave Applications," *J. Am. Ceram. Soc.*, 77 [9] pp.2485-88 (1994).
- [6] T. Takada, S.F. Wang, S. Yoshikawa, S.J. Jang, and R. E. Newnham, "Effects of Glass Additions on BaO-TiO₂-WO₃ Microwave Ceramics," *J. Am. Ceram. Soc.*, 77 [7] pp.1909-16 (1994).
- [7] M. Abe, T. Nanataki, and S. Yano, "Dielectric Ceramic Composition Containing ZnO-B₂O₃-SiO₂ Glass, Method of Preparing the Same, and Resonator and Filter Using the Dielectric Ceramic Composition," U.S. Patent 5350721.

(1994)

- [8] M. Abe, T. Nanataki, and S. Yano, "Method of Producing Low Temperature Firing Dielectric Ceramic Composition Containing B₂O₃," U.S. Patent 5292694 (1994).
- [9] M. Abe, T. Sugiura, T. Nanataki, and S. Yano, "Dielectric Resonator or Filter for Microwave Application, and Method of Producing the Dielectric Resonator or Filter," U.S. Patent 5332984 (1994).
- [10] R.M. German, "Liquid Phase Sintering," pp.65-151, Plenum Press, New York, (1985).
- [11] Robert J.Pugh and Lennart Bergström, *Surface and Colloid Chemistry in Advanced Ceramics Processing*. Marcel Dekker Inc. Publications, pp. 136-138 (1994)

六、附圖

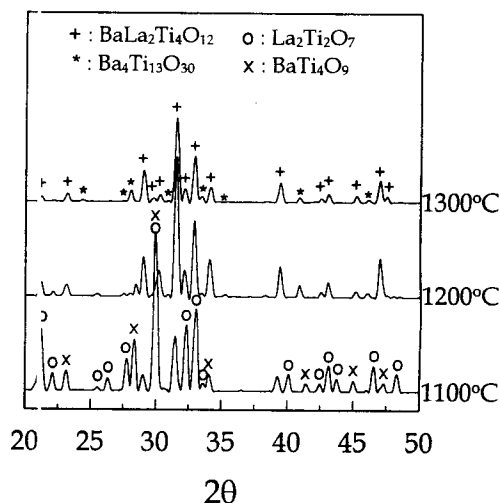


圖 1 BaO-La₂O₃-4.67TiO₂ 粉體對不同燒結溫度的 XRD 圖

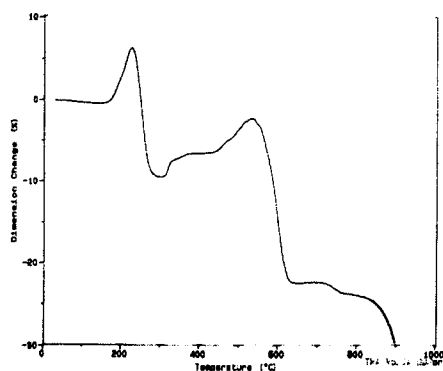


圖 2 生坯體 TMA 熱收縮曲線

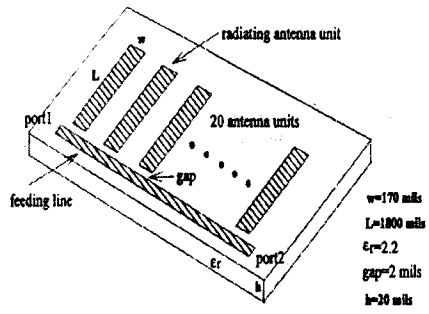


圖 3 Leaky wave antenna 設計圖

22GHz Leaky Wave Antenna (made in glass)

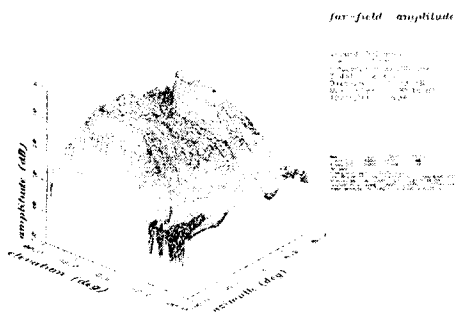


圖 4 微波量測結果

22GHz Leaky Wave Antenna (made in glass)

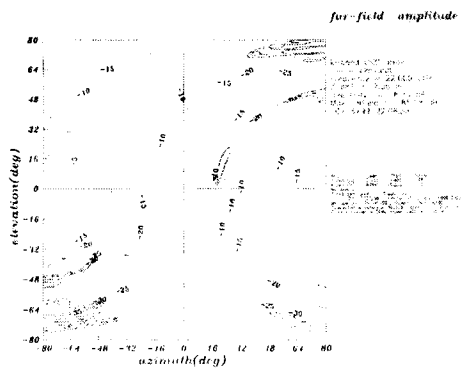


圖 5 微波量測結果