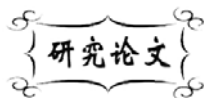


中图分类号: TM281
文献标识码: A

文献编号: 1005-1198 (2017) 02-0150-06
DOI: 10.16253/j.cnki.37-1226/tq.2017.01.001



(1-x)Ca_{15/16}Sr_{1/16}TiO₃-xLi_{1/2}Nd_{1/2}TiO₃ 陶瓷的 相组成、显微结构及微波介电性能

杜中强, 戴 英, 裴新美

武汉理工大学 材料科学与工程学院, 武汉 430070

摘 要: 采用传统固相法合成了 (1-x)Ca_{15/16}Sr_{1/16}TiO₃-xLi_{1/2}Nd_{1/2}TiO₃ (CST-LNT) 系列微波介质陶瓷材料, 研究了该系列材料的物相组成、显微结构及微波介电性能。XRD 分析结果表明所有样品均为钙钛矿结构, 无二次相出现。随着 Li_{1/2}Nd_{1/2}TiO₃ 的加入, 陶瓷平均晶粒尺寸下降, 表明 Li_{1/2}Nd_{1/2}TiO₃ 会抑制晶粒生长。随着 x 的增加, 介电常数下降, 频率温度系数向负方向移动。当 x = 0.85 时, 1250°C 保温 4 h 可以得到优良的微波介电性能: $\epsilon_r = 125.4$, $Q \times f = 2230$ GHz, $\tau_f = +14.4$ ppm/°C。

关键词: 微波介质陶瓷; 复合钙钛矿结构; 介电性能

移动通信、卫星通信、全球卫星定位系统 (GPS)、无线局域网 (WLAN) 等现代无线通信技术的飞速发展对以微波介质陶瓷为基础的微波元件如微波谐振器、滤波器、振荡器、移相器、微波电容器以及微波基板等提出了越来越高的要求。微波介质陶瓷很大程度上决定了微波通讯最终产品的性能、尺寸和成本^[1]。对微波介质材料性能的要求主要包括: 适当的介电常数、高 Q 值 (低的介电损耗) 和接近于零的谐振频率温度系数。高的介电常数以便减小器件的尺寸和重量, 高 Q (或低 tanδ) 以便降低介电损耗增强信号选择性, 接近于零的频率温度系数可以保证器件的工作稳定性。然而, 这几个性能参数之间是相互制约甚至相互矛盾的, 一般材料很难同时满足这三个要求^[2-3]。

高介微波介质陶瓷研究较广的有钨青铜结构的 BaO-Ln₂O₃-TiO₂ 体系^[4]和铅基钙钛矿体系^[5]。BaO-Ln₂O₃-TiO₂ 体系陶瓷的介电常数往往不超过 100, 不能满足超高频、小型化的要求; 而铅基钙钛矿体系陶瓷的烧结温度很高, PbO 在高温下易挥发, 对人体伤害很大, 同时会造成环境污染。

CaTiO₃ 陶瓷具有较高的介电常数 ($\epsilon_r = 170$), 但其谐振频率温度系数太大 ($\tau_f = +800$ ppm/°C), 无法满足材料实用化的要求^[6]。采用 Sr²⁺ 离子部分取代 CaTiO₃ 中的 Ca²⁺ 离子, 在适当范围内可以

收稿日期: 2017-01-17

收到修改稿日期: 2017-02-21

第一作者: 杜中强 (1991 -), 男, 江西九江人, 硕士研究生。E-mail: 15207137787@163.com。

通讯作者: 戴 英 (1964 -), 女, 湖北武汉人, 教授。E-mail: daiying@whut.edu.cn。

增大材料的介电常数,降低介电损耗,但 $(\text{Ca,Sr})\text{TiO}_3$ 陶瓷的温度系数还是偏高^[7]。Takahashi 等人^[8-9]发现 $\text{Li}_{1/2}\text{Ln}_{1/2}\text{TiO}_3$ ($\text{Ln} = \text{La}, \text{Sm}, \text{Nd}$) 具有较大的介电常数和较大的负频率温度系数,与 CaTiO_3 复合可以调节其频率温度系数,同时保留较高的介电常数。基于 $\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2}\text{TiO}_3$ 高的介电常数和负的谐振频率温度系数 ($\epsilon_r = 80$, $\tau_f = -310 \text{ ppm}/^\circ\text{C}$)^[10], 两相进行复合固溶调节频率温度系数,可以得到较为优异的微波介电性能。

本文采用传统固相合成法制备了 $(1-x)\text{Ca}_{15/16}\text{Sr}_{1/16}\text{TiO}_3-x\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2}\text{TiO}_3$ 高介微波介质陶瓷,研究不同复合量对陶瓷物相组成、显微结构和微波介电性能的影响。

1 实验

按化学式 $(1-x)\text{Ca}_{15/16}\text{Sr}_{1/16}\text{TiO}_3-x\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2}\text{TiO}_3$ ($x = 0.6, 0.7, 0.8, 0.85, 0.9$) 称取纯度为 99% 以上的 CaCO_3 、 SrCO_3 、 Li_2CO_3 、 Nd_2O_3 、 TiO_2 原料,球磨混合 16 h 后烘干。混合粉料在 1100°C 保温 3 h 预烧后,再次球磨 16 h。烘干后加入质量分数为 5% 的 PVA 水溶液作粘接剂,造粒过筛,干压成直径为 12 mm,厚度为 5 mm 的圆片,排胶后在空气气氛中烧结成瓷 ($1150^\circ\text{C} \sim 1300^\circ\text{C}$, 保温 4 h)。

用阿基米德排水法测量样品的密度。采用荷兰 Philips 公司的 Panalytical X'Pert Pro 型 X 射线衍射仪 (XRD) 分析陶瓷的相组成。采用日本电子株式会社的 JSM-5610LV 型扫描电子显微镜 (SEM) 观察陶瓷的断面形貌。采用美国 Agilent 公司的 HP Agilent 8722ET 型矢量网络分析仪测试陶瓷样品在高频段下的介电常数 ϵ_r 和介电损耗 $\tan\delta$,选择的谐振模式为 TE011;同时采用将高低温变温炉 (美国 Sigma 公司,型号 M-10) 与矢量网络分析仪相结合的方式测试材料的频率温度系数 τ_f ,测试温度范围为 $25^\circ\text{C} \sim 85^\circ\text{C}$ 。

2 结果与讨论

2.1 XRD 分析

图 1 为固相法合成的 $(1-x)\text{Ca}_{15/16}\text{Sr}_{1/16}\text{TiO}_3-x\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2}\text{TiO}_3$ (CST-LNT) 粉体在 1100°C 煅烧 3 h 后的 XRD 图谱。从图中可以看出,所有的衍射峰都可以标定为钙钛矿结构,说明在 1100°C 预烧温度下, $\text{Ca}_{15/16}\text{Sr}_{1/16}\text{TiO}_3$ 和 $\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2}\text{TiO}_3$ 就已经完全固溶。图 2 所示为 1250°C 烧结 4 h 得到的 CST-LNT

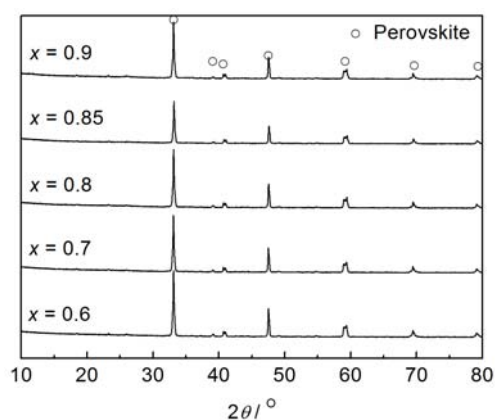


图 1 1100°C 煅烧 3 h 后 CST-LNT 粉体的 XRD 图谱

Figure 1 XRD patterns of the CST-LNT powders after being calcined at 1100°C for 3 h

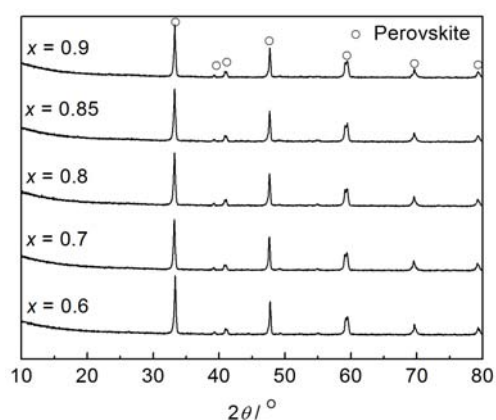


图 2 $1250^\circ\text{C} \times 4 \text{ h}$ 烧结的 CST-LNT 陶瓷 XRD 图谱

Figure 2 XRD patterns of the CST-LNT ceramics sintered at 1250°C for 4 h

陶瓷的 XRD 图谱。所有陶瓷样品的衍射峰都可以标定为钙钛矿结构, 没有其他杂相的衍射峰出现。随着 x 值的改变, 衍射峰没有发生明显变化。这说明在 $0.6 \leq x \leq 0.9$ 的范围内, $\text{Ca}_{15/16}\text{Sr}_{1/16}\text{TiO}_3$ 和 $\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2}\text{TiO}_3$ 两者可以完全固溶, 形成单一的钙钛矿结构。

2.2 SEM 分析

图 3 所示为 $x = 0.85$ 时不同烧结温度下烧结 4 h 得到的 CST-LNT 陶瓷的断面 SEM 照片。可以看出, 随着烧结温度的变化, CST-LNT ($x = 0.85$) 陶瓷的晶粒尺寸和气孔率变化较大。当烧结温度较低 (1150°C) 时, 晶粒尺寸较小, 晶粒未得到充分长大, 晶粒间存在大量孔洞。随着烧结温度的升高, 烧结推动力变大, 晶粒得到了充分生长, 到 1250°C 时, 气孔率明显降低, 晶粒尺寸分布均匀, 陶瓷呈现出较为致密的显微结构。当烧结温度过高 (1350°C) 时, 陶瓷样品出现过烧现象, 晶粒异常长大, 大晶粒尺寸达到 $5\ \mu\text{m}$ 以上, 并伴随有大量气孔出现, 致密性较差。

图 4 为不同 x 值的 CST-LNT 陶瓷在 1250°C 烧结 4 h 后的断面 SEM 照片。可以看出, 所有陶瓷样品都呈现出较为致密的显微结构, 几乎没有气孔存在。陶瓷晶粒主要为等轴状, 晶粒尺寸大小不一, 大尺寸晶粒在 $2\ \mu\text{m} \sim 3\ \mu\text{m}$ 左右, 小晶粒在 $0.5\ \mu\text{m} \sim 1\ \mu\text{m}$ 左右。在 $x = 0.6$ 时, 大尺寸晶粒居多, 小晶粒填充在大晶粒之间。而随着 x 的增大, 小尺寸晶粒增多。在 $x = 0.9$ 时, 出现了大量的小尺寸

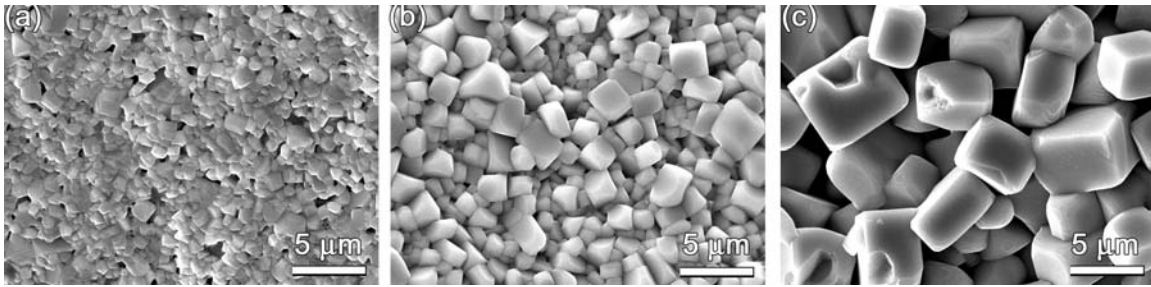


图 3 不同温度烧结 4 h 的 CST-LNT 陶瓷 ($x = 0.85$) 断面 SEM 照片
Figure 3 SEM images of CST-LNT ceramics with $x = 0.85$ sintered at different temperatures for 4 h:
(a) 1150°C ; (b) 1250°C ; (c) 1350°C

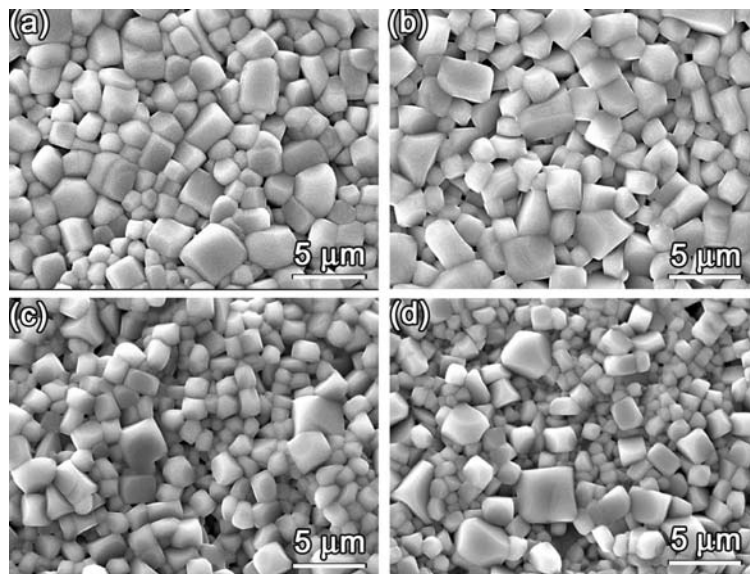


图 4 1250°C 烧结 4 h 的 CST-LNT 陶瓷断面 SEM 图
Figure 4 SEM images of CST-LNT ceramics sintered at 1250°C for 4 h:
(a) $x = 0.6$; (b) $x = 0.7$; (c) $x = 0.8$; (d) $x = 0.9$

晶粒, 大尺寸晶粒被小尺寸晶粒包围。在 $x = 0.6$ 时, 平均晶粒尺寸约为 $2 \mu\text{m}$; 而在 $x = 0.9$ 时, 平均晶粒尺寸已经下降到 $1.3 \mu\text{m}$ 。这说明 $\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2}\text{TiO}_3$ 的加入会抑制晶粒增长。晶粒尺寸减小, 晶界增多, 这会增大介电损耗, 降低品质因数。Yan 等人^[11]也有类似的报道。

2.3 烧结特性

图 5 所示为不同温度下烧结 4 h 得到的 CST-LNT 陶瓷的表观密度。可以得出, 随着烧结温度的提高, 表观密度先上升后下降。在 $1150^\circ\text{C} \sim 1200^\circ\text{C}$ 之间, 表观密度迅速上升; 在 $1200^\circ\text{C} \sim 1300^\circ\text{C}$ 之间, 表观密度变化较小; 当烧结温度超过 1250°C 时, 表观密度随着烧结温度进一步升高而呈下降趋势。结合图 3 所示的 SEM 观察结果, 图 5 说明不同的烧结温度对陶瓷的致密度有很大的影响, 合适的烧结温度能够促进陶瓷的致密化, 过高的烧结温度会导致晶粒异常长大, 导致陶瓷密度的快速下降。因此, 该体系的烧结温度范围应在 $1200^\circ\text{C} \sim 1300^\circ\text{C}$ 之间。此外, 在相同的烧结温度下, 表观密度整体上随着 x 值的增大而增大。烧结温度为 1250°C 时, 随着 x 由 0.6 增大至 0.9, 密度从 4.56 g/cm^3 上升至 4.86 g/cm^3 。这是因为 $(\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2})^{2+}$ 的有效离子半径小于 $(\text{Ca}_{15/16}\text{Sr}_{1/16})^{2+}$ 的有效离子半径。 $(\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2})^{2+}$ 的加入, Li^{1+} 和 Nd^{3+} 固溶进晶格, Li^{1+} 、 Ca^{2+} 、 Nd^{3+} 三种离子共同占据钙钛矿结构的 A 位; 随着 $(\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2})^{2+}$ 离子的增多, 晶胞体积下降, 密度上升, 这与 Kim 等人^[12]的研究结果一致。

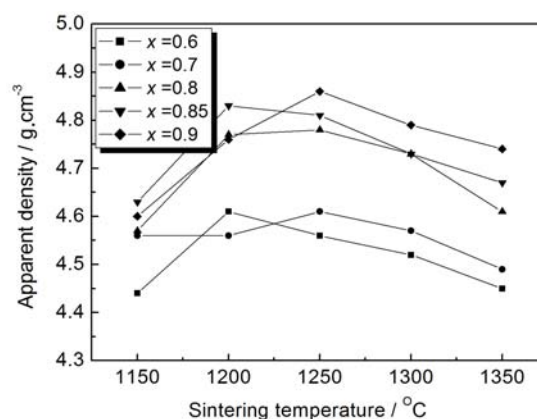


图 5 不同温度烧结的 CST-LNT 陶瓷的表观密度
Figure 5 Apparent density of the CST-LNT ceramics sintered at different temperatures

度进一步升高而呈下降趋势。结合图 3 所示的 SEM 观察结果, 图 5 说明不同的烧结温度对陶瓷的致密度有很大的影响, 合适的烧结温度能够促进陶瓷的致密化, 过高的烧结温度会导致晶粒异常长大, 导致陶瓷密度的快速下降。因此, 该体系的烧结温度范围应在 $1200^\circ\text{C} \sim 1300^\circ\text{C}$ 之间。此外, 在相同的烧结温度下, 表观密度整体上随着 x 值的增大而增大。烧结温度为 1250°C 时, 随着 x 由 0.6 增大至 0.9, 密度从 4.56 g/cm^3 上升至 4.86 g/cm^3 。这是因为 $(\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2})^{2+}$ 的有效离子半径小于 $(\text{Ca}_{15/16}\text{Sr}_{1/16})^{2+}$ 的有效离子半径。 $(\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2})^{2+}$ 的加入, Li^{1+} 和 Nd^{3+} 固溶进晶格, Li^{1+} 、 Ca^{2+} 、 Nd^{3+} 三种离子共同占据钙钛矿结构的 A 位; 随着 $(\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2})^{2+}$ 离子的增多, 晶胞体积下降, 密度上升, 这与 Kim 等人^[12]的研究结果一致。

2.4 介电性能分析

图 6 为不同温度下保温 4 h 烧结得到的 CST-LNT 陶瓷的介电性能。

由图 6 (a) 可以看出, 陶瓷的介电常数随着烧结温度的升高呈现先上升后下降的趋势, 该体系得到合适的介电常数的温度范围在 $1200^\circ\text{C} \sim 1300^\circ\text{C}$, 变化规律与前面提到的表观密度、显微结构随着温度的变化是一致的。此外随着 x 值的增大, CST-LNT 陶瓷的介电常数下降。这一方面是因为 $(\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2})^{2+}$ 的极化率远低于 $(\text{Ca}_{15/16}\text{Sr}_{1/16})^{2+}$ 的极化率, 随着 x 值的增大, $(\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2})^{2+}$ 离子的增多, 介电常数下降; 另一方面, 晶胞体积下降, 单位体积内极化粒子数目增大, 介电常数增加。综合上述两个方面, 介电常数随着 x 的增大呈现下降趋势, 这说明在 CST-LNT 陶瓷中离子极化率的影响占主要因素。在 1250°C 时, 随着 x 从 0.6 上升至 0.9, 介电常数从 142.1 降到了 120.6。

微波介质陶瓷的介电损耗由本征损耗和非本征损耗组成, 本征损耗是由非调谐晶格振动引起的, 而非本征损耗则是由晶粒大小、晶界、致密度、气孔、缺陷、二次相等决定^[13]。从图 6 (b) 可以看到, 在该钙钛矿结构体系中, 随着 $(\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2})^{2+}$ 的不断加入, A 位有序度降低, 介电损耗增大。当烧结温度低于 1250°C 时, 品质因数随着烧结温度升高变化不大; 当烧结温度超过 1250°C 后, 品质因数随着温度升高而急剧下降。这可能是因为烧结温度过高, 晶粒异常长大导致的。

谐振频率温度系数主要由相组成决定。由图 6 (c) 可见, 频率温度系数随着烧结温度的变化并不明显, 但随着 x 的增大, 频率温度向负方向移动。CST-LNT 是 $\text{Ca}_{15/16}\text{Sr}_{1/16}\text{TiO}_3$ 和 $\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2}\text{TiO}_3$ 的复合固溶, $\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2}\text{TiO}_3$ 具有较大的负频率温度系数 ($\tau_f = -310 \text{ ppm}/^\circ\text{C}$), 随着 x 值增大, 频率温度系数 τ_f 下降, 故可以通过调节 x 值调节陶瓷的频率温度系数, 同时兼顾高的介电常数、低的介电损耗以及接近于零的谐振频率温度系数。 $x = 0.85$ 、烧结温度为 1250°C 时, CST-LNT 陶瓷具有最佳的微波介电性能: $\epsilon_r = 125.4$, $Q \times f = 2230 \text{ GHz}$, $\tau_f = +14.4 \text{ ppm}/^\circ\text{C}$ 。

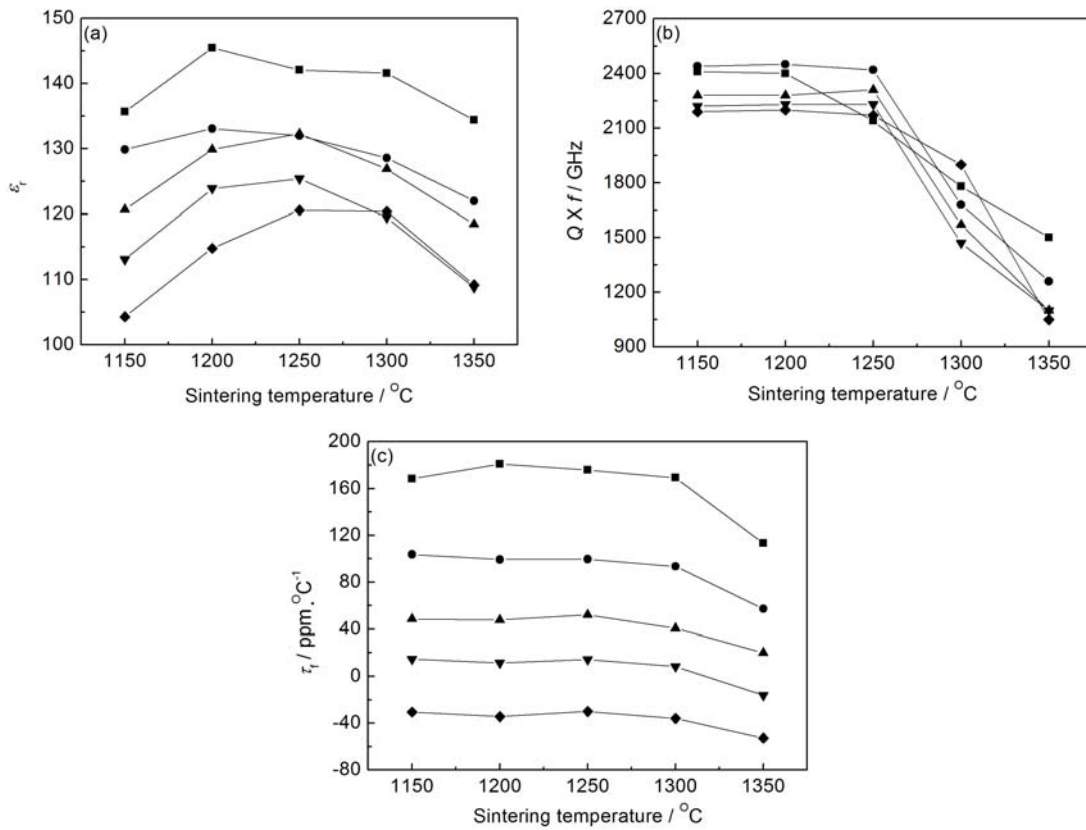


图 6 不同温度烧结的 CST-LNT 陶瓷的微波介电性能
 Figure 6 Microwave dielectric properties of the CST-LNT ceramics sintered at different temperatures
 (■: $x = 0.6$; ●: $x = 0.7$; ▲: $x = 0.8$; ▼: $x = 0.85$; ◆: $x = 0.9$)

3 结 论

采用传统固相法合成了 $(1-x)\text{Ca}_{15/16}\text{Sr}_{1/16}\text{TiO}_3-x\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2}\text{TiO}_3$ (CST-LNT) 系列微波介质陶瓷材料, 研究了该系列材料的物相组成、显微结构及微波介电性能, 得到了以下结论:

(1) XRD 分析结果表明所有的陶瓷样品均为钙钛矿结构, 无二次相出现。在 $0.6 \leq x \leq 0.9$ 范围内, $\text{Ca}_{15/16}\text{Sr}_{1/16}\text{TiO}_3$ 和 $\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2}\text{TiO}_3$ 可以形成完全的固溶体。随着 x 值的增加, 表观密度增加, 在 1250 °C 时, 陶瓷样品在烧结温度范围内均呈现了较致密的显微结构。同时陶瓷的平均晶粒尺寸随着 x 值的增加而下降, 表明 $\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2}\text{TiO}_3$ 能抑制晶粒的生长。

(2) 随着 x 的增大, 陶瓷的介电常数减小, 品质因数降低, 谐振频率温度系数减小 (即朝着负方向移动)。烧结温度为 1250 °C 时, $0.15\text{Ca}_{15/16}\text{Sr}_{1/16}\text{TiO}_3-0.85\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2}\text{TiO}_3$ 陶瓷有最佳的微波介电性能: $\epsilon_r = 125.4$, $Q \times f = 2230 \text{ GHz}$, $\tau_f = +14.4 \text{ ppm}/^\circ\text{C}$ 。

参考文献

[1] FIEDZIUSZKO SJ, HUNTER IC, ITOH T, et al. Dielectric materials, devices, and circuits [J]. IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, 2002, 50 (3): 706-720.
 [2] SEBASTIAN MT. Dielectric Materials for Wireless Communication [M]. Amsterdam: Elsevier, 2010.
 [3] MANAN A, QAZI I. Dielectric properties of ceramics for microwave and millimeterwave applications [C]. Proceedings of 2013 International Conference on Aerospace Science & Engineering (ICASE). IEEE, 2013: 1-7.

- [4] CHEN YC, HUANG CL. Microwave dielectric properties of $\text{Ba}_{2-x}\text{Sm}_{4+2/3x}\text{Ti}_6\text{O}_{26}$ ceramics with zero temperature coefficient [J]. *Materials Science and Engineering A*, 2002, 334: 250–256.
- [5] LU XJ, CHEN XM. Dielectric properties of La-substituted $\text{Pb}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}[(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.5}\text{Ti}_{0.5}]\text{O}_3$ ceramics [J]. *Journal of Materials Research*, 2001, 16 (7): 2053–2056.
- [6] KIM WS, YOON KH, KIM ES. Far-infrared reflectivity spectra of $\text{CaTiO}_3-(\text{Li}_{1/2}\text{Sm}_{1/2})\text{TiO}_3$ microwave dielectrics [J]. *Materials Research Bulletin*, 1999, 34: 2309–2317.
- [7] CHEN YB. New dielectric material system of $x\text{La}(\text{Mg}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3-(1-x)\text{Ca}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ at microwave frequency [J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2011, 509 (5): 2375–2380.
- [8] TAKAHASHI H, BABA Y, EZAKI K, et al. Dielectric characteristics of $(\text{A}_{1/2}^{1+}\cdot\text{A}_{1/2}^{3+})\text{TiO}_3$ ceramics at microwave frequencies [J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 1991, 30 (9B): 2339–2342.
- [9] EZAKI K, BABA Y, TAKAHASHI H, et al. Microwave dielectric properties of $\text{CaO-Li}_2\text{O-Ln}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2$ ceramics [J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 1993, 32(9B): 4319–4322.
- [10] LIU T, ZHAO XZ, CHEN W. A/B site modified CaTiO_3 dielectric ceramics for microwave application [J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2006, 89 (3): 1153–1155.
- [11] YAN K, SHIICHI N, KARAKI T, et al. Microwave dielectric properties of $\text{Ca}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3\text{-Li}_{0.5}\text{Sm}_{0.5}\text{TiO}_3$ ceramics with near-zero temperature coefficient of resonant frequency [J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2008, 47 (10B): 7105–7107.
- [12] KIM ES, YOON KH. Microwave dielectric properties of $(1-x)\text{CaTiO}_3-x\text{Li}_{1/2}\text{Sm}_{1/2}\text{TiO}_3$ ceramics [J]. *Journal of the European Ceramic Society*, 2003, 23 (14): 2397–2401.
- [13] KIM WS, KIM TH, KIM ES, et al. Microwave dielectric properties and far infrared reflectivity spectra of the $(\text{Zr}_{0.8}\text{Sn}_{0.2})\text{TiO}_4$ ceramics with additives [J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 1998, 37 (9B): 5367–5371.

※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※

Phase, Microstructure and Microwave Dielectric Properties of $(1-x)\text{Ca}_{15/16}\text{Sr}_{1/16}\text{TiO}_3-x\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2}\text{TiO}_3$ Ceramics

DU Zhong-Qiang, DAI Ying, PEI Xin-Mei

*School of Materials Science and Engineering, Wuhan University of Technology,
Wuhan 430070, China*

Abstract: $(1-x)\text{Ca}_{15/16}\text{Sr}_{1/16}\text{TiO}_3-x\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2}\text{TiO}_3$ (CS-LNT) ceramics were prepared by the conventional solid-state reaction method. The phases, microstructures, and microwave dielectric properties of the prepared ceramics were analyzed. The XRD results indicated that all the specimens exhibited a single perovskite structure, and no other second phase was found. The grain size of CS-LNT ceramics decreases with the increase of the content of $\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2}\text{TiO}_3$, implying that $\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2}\text{TiO}_3$ may suppress grain growth. As x increased, the dielectric constant of the CS-LNT ceramics reduced and the temperature coefficient of resonant frequency gradually changed from positive to negative. Excellent microwave dielectric properties of $\epsilon_r = 125.4$, $Q \times f = 2230$ GHz and $\tau_f = +14.4$ ppm/°C were obtained for $0.15\text{Ca}_{15/16}\text{Sr}_{1/16}\text{TiO}_3-0.85\text{Li}_{1/2}\text{Nd}_{1/2}\text{TiO}_3$ ceramic sintered at 1250°C for 4 h.

Key words: Microwave ceramics; Complex perovskite; Dielectric properties