



(11) **RO 131868 B1**

(51) **Int.Cl.**  
**C03C 1/10** (2006.01),  
**H01B 3/12** (2006.01)

(12)

## BREVET DE INVENȚIE

(21) Nr. cerere: **a 2015 00898**

(22) Data de depozit: **26/11/2015**

(45) Data publicării mențiunii acordării brevetului: **30/04/2019** BOPI nr. **4/2019**

(41) Data publicării cererii:  
**30/05/2017** BOPI nr. **5/2017**

(73) Titular:  
• **INSTITUTUL NAȚIONAL DE  
CERCETARE-DEZVOLTARE PENTRU  
FIZICA MATERIALELOR (INCDFM),  
STR. ATOMIȘTILOR NR. 105 BIS,  
MĂGURELE, IF, RO**

(72) Inventatori:  
• **NEDELCU LIVIU, STR. FIZICIENILOR  
NR. 24, BL. N4, SC. 1, ET. 3, AP. 20,  
MĂGURELE, IF, RO;**

• **BANCIU MARIAN GABRIEL,  
BD. IULIU MANIU NR. 168, BL. 39, SC. 1,  
ET. 7, SECTOR 6, BUCUREȘTI, B, RO;**  
• **GEAMBAȘU CEZAR DRAGOȘ,  
STR. FIZICIENILOR NR. 26, BL. O3, SC. 1,  
AP. 3, MĂGURELE, IF, RO**

(56) Documente din stadiul tehnicii:  
**CN 102517626 A; CN 101265095 A**

(54) **PROCEDEU DE OBȚINERE A UNOR MATERIALE CERAMICE  
DE TIP  $Mg_4Nb_2O_9$  CU ABSORBȚIE REDUSĂ ÎN TERAHERTZI**



1 Prezenta invenție se referă la obținerea unor materiale ceramice de tip  $Mg_4Nb_2O_9$  cu  
2 absorbție redusă în terahertzi pentru aplicații în telecomunicații pe purtătoare de unde  
3 milimetrice și submilimetrice.

4 Materialele ceramice cu pierderi dielectrice reduse au impulsivat în mod decisiv  
5 domeniul microundelor, fiind folosite în rezonatoare, oscilatoare, filtre, antene, circuite  
6 integrate hibride etc., "M. T. Sebastian, *Dielectric materials for wireless communication*,  
7 Elsevier, Oxford, 2008". Pe de altă parte, sistemele moderne de telecomunicații tind să  
8 migreze spre benzile de frecvență mai mari, "T. Kurner, S. Priebe, "Towards THz  
9 Communications - Status in Research, Standardization and Regulation", *Journal of*  
10 *Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves 35 (2014)*", către unde milimetrice și submili-  
11 metrice, atât pentru creșterea vitezei de tranfer cât, și pentru reducerea interferențelor. Prin  
12 urmare, este necesară dezvoltarea de materiale dielectrice rentabile, cu absorbție redusă  
13 în terahertzi, pentru integrarea în componente pasive competitive care să asigure progresul  
14 sistemelor de comunicații curente și viitoare.

15 Datorită pierderilor dielectrice foarte reduse, materialele dielectrice pe bază de tantal  
16 cu structură de tip perovskit complex au fost studiate pentru aplicații în domeniul  
17 microundelor și undelor milimetrice, "M. T. Sebastian, *Dielectric materials for wireless*  
18 *communication*, Elsevier, Oxford, 2008". Deși acestea sunt dintre cele mai performante,  
19 temperaturile mari de sinteză, resursele limitate și prețul ridicat restrâng foarte mult domeniile  
20 de aplicabilitate pentru compușii pe bază de tantal "R. C. Pullar, *The synthesis, properties,*  
21 *and applications of columbite niobates ( $M_2 + Nb_2O_6$ ): a critical review*, J. Am. Ceram.  
22 Soc. 92 (2009) 563".

23 În ultimii ani, materiale dielectrice din familia niobaților au atras o atenție specială  
24 datorită costului redus al materiei prime și a temperaturilor de procesare nu foarte ridicate  
25 "R. C. Pullar, *The synthesis, properties, and applications of columbite niobates*  
26 *( $M_2 + Nb_2O_6$ ): a critical review*, J. Am. Ceram. Soc. 92 (2009) 563"; "C.-L. Huang, W.-R.  
27 Yang, *Low-loss microwave dielectrics using ( $Mg_{1-x}Zn_x$ ) $_4$ Nb $_2$ O $_9$  ( $x = 0,02-0,08$ ) solid*  
28 *solutions*, J. Alloy. Compd. 509 (2011) 2269"; "H. T. Wu et al., *Synthesis and*  
29 *microwave dielectric properties of pseudobrookite-type structure  $Mg_5Nb_4O_{15}$  ceramics*  
30 *by aqueous sol-gel technique*, Ceram. Int. 38 (2012) 4271"; "Q. Liao et al., *A new*  
31 *temperature stable microwave dielectric material  $Mg_{0,5}Zn_{0,5}TiNb_2O_8$* , J. Am. Ceram. Soc.  
32 95 (2012) 1501".

33 Datorită costurilor reduse, tehnologia ceramică convențională "S.-J. L. Kang,  
34 "Sintering - Densification. Grain Growth, and Microstructure", Elsevier Butterworth-  
35 Heinemann, 2005", este de departe cea mai utilizată metodă de preparare pentru  
36 producerea industrială a materialelor policristaline.

37 Dintre acestea, compușii de tip  $Mg_4Nb_2O_9$  (MNO) prezintă pierderi dielectrice foarte  
38 reduse în microunde, comparabile cu cele ale tantalaiților. Prin urmare, în acord cu relația de  
39 proporționalitate dintre pierderile dielectrice intrinseci și frecvența câmpului electromagnetic,  
40 "H. Tamura, *Microwave Dielectric Losses Caused by Lattice Defects*, J. Eur. Ceram.  
41 Soc. 26 (2006) 1775", este de așteptat ca aceste materiale să prezinte absorbție în  
42 terahertzi suficient de redusă pentru a fi utilizate în aplicații.

43 Scopul acestei invenții este de a reduce pierderile dielectrice extrinseci ale  
44 ceramicilor MNO prin optimizarea parametrilor tehnologici, în strânsă corelație cu structura  
45 cristalină și cu microstructura, identificându-se astfel tehnologia de laborator necesară pentru  
46 sinteza unor materiale dielectrice avansate rentabile, necesare pentru evoluția infrastructurii  
47 în domeniul telecomunicațiilor. Astfel de materiale sunt necesare pentru realizarea  
48 componentelor pasive performante, cu pierderi de inserție reduse, în scopul utilizării eficiente  
49 a benzilor de comunicații.

# RO 131868 B1

Problema tehnică pe care o rezolvă invenția constă în obținerea de materiale ceramice folosite la realizarea componentelor pasive performante, care au pierderi dielectrice reduse și absorbție redusă în terahertzi.	1 3
Invenția înlătură dezavantajele de mai sus prin aceea că se referă la un procedeu de obținere a materialelor ceramice care cuprinde următoarele etape: măcinarea primară a materiilor prime MgO și Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> în apă distilată sau deionizată, calcinarea la 1150°C, timp de 4 h, măcinare secundară în apă deionizată, granulare cu liant pe bază de alcool polivinilic 2%, presare uniaxială la 50 Mpa și sinterizare la 1300°C timp de 4 h.	5 7
Procesul de obținere a ceramicilor implică următoarele etape principale:	9
- sinteza amestecului de pulbere;	
- compactarea pentru formarea semifabricatului;	11
- sinterizarea;	
- finisarea.	13
Pe parcursul fluxului tehnologic este necesară efectuarea de analize și testări pentru alegerea parametrilor adecvați în vederea obținerii materialelor ceramice cu proprietățile scontate. Monitorizarea proceselor de sinteză se efectuează prin caracterizări specifice, de tipul: analiză termică, difracție de raze X, microscopie electronică, porozimetrie etc.	15 17
Se prezintă, în continuare, un exemplu de realizare a invenției:	
Eșantioane Mg <sub>4</sub> Nb <sub>2</sub> O <sub>9</sub> au fost preparate prin reacție în fază solidă din pulberi oxidice de înaltă puritate (> 99,5%). Materiile prime utilizate (MgO și Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ) au fost dozate corespunzător formulei dorite și măcinate într-o moară cu bile din zirconia timp de 2...5 h în apă distilată sau deionizată. Pulberile omogenizate au fost uscate și calcinate la 1100...1200°C/2...4 h, temperatura optimă fiind aleasă în urma difracției de raze X. Pulberile calcinate au fost măcinate secundar timp de 3...4 h. Cilindrii cu 12,5 mm diametru și 8 mm înălțime au fost compactați prin presare uniaxială. Tratamentele de sinterizare au fost efectuate la temperaturi în intervalul 1250...1400°C pentru 2...8 h.	19 21 23 25
În conformitate cu rezultatele obținute prin difracție de raze X, microscopie electronică de baleiaj și spectroscopie de terahertzi în domeniu, s-a identificat fluxul tehnologic pentru sinteza ceramicilor MNO cu absorbție redusă; s-a optimizat procedeu de obținere a ceramicilor MNO cu absorbție redusă, după cum urmează:	27 29
- măcinare primară în apă deionizată la 400 rot/min timp de 5 h în moara planetară cu vase și bile de zirconia;	31
- calcinare în aer la 1150°C timp de 4 h;	33
- măcinare secundară în apă deionizată la 400 rot/min timp de 3 h în moara planetară cu vase și bile de zirconia;	35
- granulare cu liant pe bază de alcool polivinilic, 2% procent masic;	
- presare uniaxială la 50 MPa în matrițe cilindrice cu diametru de 12 mm;	37
- sinterizare în aer la 1300°C/4 h.	
În continuare, sunt prezentate rezultatele spectroscopiei de terahertzi în domeniu timp pe materiale ceramice optimizate. Măsurătorile au fost efectuate în transmisie pe discuri cu grosime de 0,3 mm.	39 41
În fig. 1, este prezentată depedența de frecvență a indicelui de refracție și a coeficientului de absorbție a eșantionului MNO, creșterea accentuată la frecvențe mai mari de 2 THz fiind datorată interacției câmpului electromagnetic cu fononii optici activi în infraroșu îndepărtat.	43 45
În baza rezultatelor obținute se poate concluziona că ceramicile Mg <sub>4</sub> Nb <sub>2</sub> O <sub>9</sub> optimizate pot fi utilizate în componente pasive pentru unde milimetrice și submilimetrice.	47

# RO 131868 B1

1

## Revendicare

3

Procedeu de obținere a unor materiale ceramice de tip  $Mg_4Nb_2O_9$  din oxid de niobiu și oxid de magneziu, **caracterizat prin aceea că** va cuprinde următoarele etape: măcinarea

5

primară a materiilor prime  $MgO$  și  $Nb_2O_5$  în apă deionizată, calcinarea în aer la temperatura de  $1150^\circ C$ , timp de 4 h, măcinarea secundară în apă deionizată timp de 3 h, granulara cu

7

liant pe bază de alcool polivinilic 2% procente masice, presarea uniaxială la 50 MPa și sinterizarea la  $1300^\circ C$  timp de 4 h.

