



(11) RO 131868 A2

(51) Int.Cl.

C04B 35/04 (2006.01),

H01B 3/12 (2006.01)

(12)

## CERERE DE BREVET DE INVENȚIE

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

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

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

(71) Solicitant:

• INSTITUTUL NAȚIONAL DE  
CERCETARE-DEZVOLTARE PENTRU  
FIZICA MATERIALELOR (INCDFM),  
STR. ATOMIȘTIILOR NR. 105 B/S,  
MĂGURELE, IF, RO

(72) Inventatori:

• NEDELCU LIVIU, STR. FIZICENIILOR  
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;  
• GEAMBAŞU CEZAR DRAGOS,  
STR. FIZICENIILOR NR. 26, BL. O3, SC. 1,  
AP. 3, MĂGURELE, IF, RO

Această publicație include și modificările descrierii,  
revendicărilor și desenelor depuse conform art. 35,  
alin. (20), din HG nr.547/2008

### (54) MATERIALE CERAMICE PE BAZĂ DE NIOBIU, CU ABSORBȚIE REDUSĂ ÎN TERAHERTZI

(57) Rezumat:

Invenția se referă la un procedeu de obținere a materialelor ceramice de tip  $Mg_4Nb_2O_9$ , cu absorbție redusă în terahertz, pentru aplicații în telecomunicații. Procedeul conform inventiei cuprinde etapele de măcinare primară a materiilor prime constând din  $MgO$  și  $Nb_2O_5$ , în apă deionizată, calcinare la  $1150^{\circ}C$ , timp de 4 h, măcinare secundară în apă deionizată,

granulare cu liant pe bază de alcool polivinilic (procent masic 2), presare uniaxială la 50 MPa și sinterizare la  $1300^{\circ}C$ , timp de 4 h.

Revendicări initiale: 1

Revendicări amendate: 1

Figuri: 1

Cu începere de la data publicării cererii de brevet, cererea asigură, în mod provizoriu, solicitantului, protecția conferită potrivit dispozițiilor art.32 din Legea nr.64/1991, cu excepția cazurilor în care cererea de brevet de inventie a fost respinsă, retrasă sau considerată ca fiind retrasă. Întinderea protecției conferite de cererea de brevet de inventie este determinată de revendicările conținute în cererea publicată în conformitate cu art.23 alin.(1) - (3).



RO 131868 A2

2/

OFICIUL DE STAT PENTRU INVENTII ȘI MĂRCI
Cerere de brevet de inventie
Nr. A... 2015 00898
Data depozit 26-11-2015

## DESCRIEREA INVENTIEI

### MATERIALE CERAMICE PE BAZĂ DE NIOBIU CU ABSORBTIE REDUSĂ ÎN TERAHERTZI

Prezenta inventie se referă la obținerea unor materiale ceramice de tip  $Mg_4Nb_2O_9$  cu absorbție redusă în terahertzii pentru aplicații în telecomunicații pe purtatoare de unde milimetrice și submilimetrice. Astfel de materiale sunt necesare pentru realizarea componentelor pasive performante, cu pierderi de inserție reduse, în scopul utilizării eficiente a benzilor de comunicații.

Materialele ceramice cu pierderi dielectrice reduse au impulsionat în mod decisiv domeniul microundelor, fiind folosite în rezonatoare, oscilatoare, filtre, antene, circuite integrate hibride etc [1]. Pe de altă parte, sistemele moderne de telecomunicații tind să migreze spre benzile de frecvență mai mari [2], către unde milimetrice și submilimetrice, atât pentru creșterea vitezei de transfer cât și pentru reducerea interferențelor. Prin urmare, este necesară dezvoltarea de materiale dielectrice rentabile, cu absorbție redusă în terahertzii, pentru integrarea în componente pasive competitive care să asigure progresul sistemelor de comunicații curente și viitoare.

Datorită pierderilor dielectrice foarte reduse, materialele dielectrice pe baza de tantal cu structură de tip perovskit complex au fost studiate pentru aplicații în domeniul microundelor și undelor milimetrice [1]. Deși acestea sunt dintre cele mai performante, temperaturile mari de sinteză, resursele limitate și prețul ridicat restrâng foarte mult domeniile de aplicabilitate pentru compușii pe bază de tantal [3].

Director General INCDFM,  
Dr. Ionuț Enculescu

În ultimii ani, materiale dielectrice din familia niobațiilor au atras o atenție specială datorită costului redus al materiei prime și a temperaturilor de procesare nu foarte ridicate [3-6]. Dintre acestea, compușii de tip  $Mg_4Nb_2O_9$  (MNO) prezintă pierderi dielectrice foarte reduse în microunde, comparabile cu cele ale tantalătilor. Prin urmare, în acord cu relația de proporționalitate dintre pierderile dielectrice intrinseci și frecvența câmpului electromagnetic [7], este de așteptat ca aceste materiale să prezinte absorbție în terahertzii suficient de redusă pentru a fi utilizate în aplicații.

Scopul acestei invenții este de a reduce pierderile dielectrice extrinseci ale ceramicilor MNO prin optimizarea parametrilor tehnologici, în strânsă corelație cu structura cristalină și microstructura, identificându-se astfel tehnologia de laborator necesară pentru sinteza unor materiale dielectrice avansate rentabile, necesare pentru evoluția infrastructurii în domeniul telecomunicațiilor.

Datorită costurilor reduse, tehnologia ceramică convențională [8] este de departe cea mai utilizată metodă de preparare pentru producerea industrială a materialelor policristaline. Procesul de obținere a ceramicilor implică urmatoarele etape principale:

- sinteza amestecului de pulbere;
- compactarea pentru formarea semifabricatului;
- sinterizarea;
- finisarea.

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 caracterizari specifice, de tipul: analiză termică, difracție de raze X, microscopie electronică, porozimetrie etc.

Director General INCDFM,  
Dr. Ionuț Enculescu

Eșantioane  $Mg_4Nb_2O_9$  au fost preparate prin reacție în fază solidă din pulberi oxidice de înaltă puritate ( $> 99.5\%$ ). Materiile prime utilizate ( $MgO$  și  $Nb_2O_5$ ) au fost dozate corepunzător 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. Cilindri 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.

În conformitate cu rezultatele obținute prin difracție de raze X, microscopie electronică de baleaj și spectroscopie de terahertz în domeniu s-a identificat fluxul tehnologic pentru sinteza ceramicilor MNO cu absorbție redusă, după cum urmează:

- măcinare primară (omogenizare) în apă deionizată, 5h la 400 rpm;
- calcinare la  $1150$  °C/4h;
- măcinare secundară în apă deionizată, 3h la 400 rpm;
- granulare cu liant pe bază de alcool polivinic, 2 % procent masic;
- presare uniaxială la 50 MPa;
- sinterizare la  $1300$  °C/4h.

În continuare sunt prezentate rezultatele spectroscopiei de terahertz în domeniu timp pe materiale ceramice optimizate. Măsurările au fost efectuate în transmisie pe discuri cu grosime de 0,3 mm. În Fig. 1 este prezentată dependența 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. În baza rezultatelor obținute se poate concluziona ca ceramicile  $Mg_4Nb_2O_9$  optimizate pot fi utilizate în componente pasive pentru unde milimetrice și submilimetrice.

Director General INCDFM,  
Dr. Ionuț Enculescu



## REVENDICĂRI

Metoda de obținere a unor ceramici de tip  $Mg_4Nb_2O_9$  cu absorbție redusă în terahertzii caracterizată prin aceea că, în strânsă corelație cu structura cristalină și microstructura, se reduc contribuțiile extrinseci în scopul utilizării acestor materiale pentru aplicații în telecomunicații pe purtătoare de unde milimetrice și submilimetrice.

Director General INCDFM,  
Dr. Ionuț Enculescu

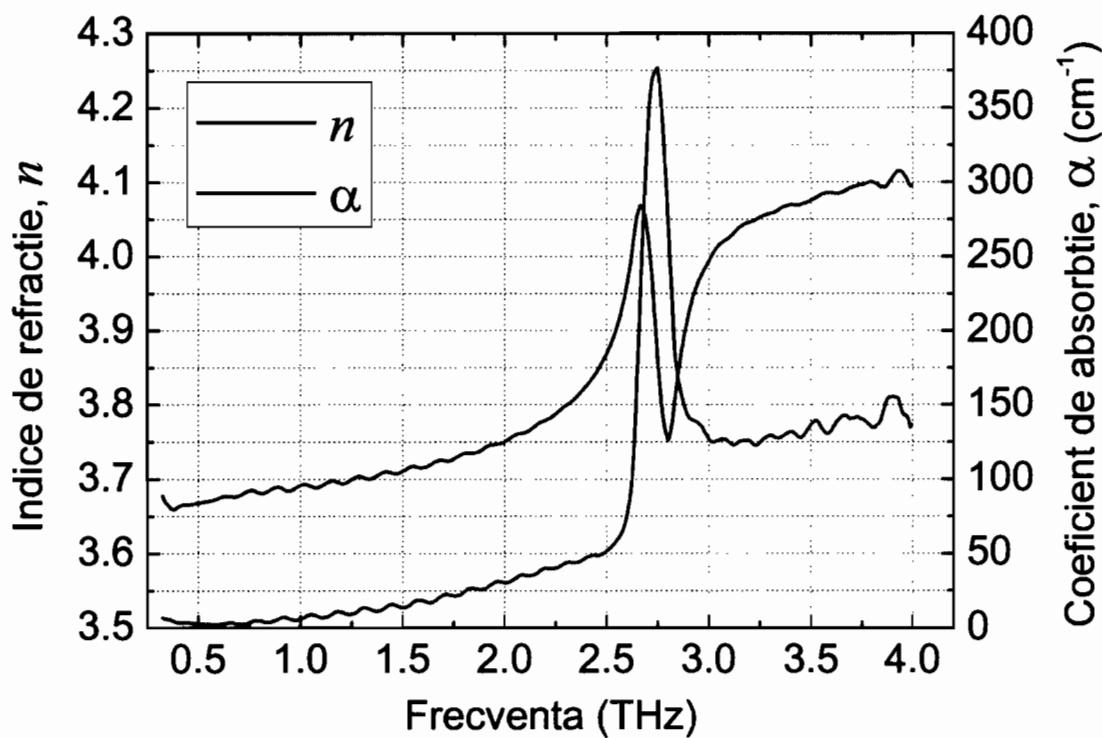


Fig. 1. Indicele de refracție ( $n$ ) și coeficientul de absorbție ( $\alpha$ )  
în funcție de frecvență pentru eșantionul  $\text{Mg}_4\text{Nb}_2\text{O}_9$  optimizat.

Director General INCDFM,  
Dr. Ionuț Enculescu

*a= 2015 -- 00898-*



01 -08- 2016

## DESCRIEREA INVENTIEI

### MATERIALE CERAMICE PE BAZĂ DE NIOBIU CU ABSORBȚIE REDUSĂ ÎN TERAHERTZI

Prezenta inventie se referă la un procedeu de obținere a unor materiale ceramice de tip  $Mg_4Nb_2O_9$  cu absorbție redusă în terahertzii pentru aplicații în telecomunicații pe purtatoare de unde milimetrice și submilimetrice. Astfel de materiale sunt necesare pentru realizarea componentelor pasive performante, cu pierderi de inserție reduse, în scopul utilizării eficiente a benzilor de comunicații.

Materialele ceramice cu pierderi dielectrice reduse au impulsionat în mod decisiv domeniul microundelor, fiind folosite în rezonatoare, oscilatoare, filtre, antene, circuite integrate hibride etc [1]. Pe de altă parte, sistemele moderne de telecomunicații tind să migreze spre benzile de frecvență mai mari [2], către unde milimetrice și submilimetrice, atât pentru creșterea vitezei de transfer cât și pentru reducerea interferențelor. Prin urmare, este necesară dezvoltarea de materiale dielectrice rentabile, cu absorbție redusă în terahertzii, pentru integrarea în componente pasive competitive.

Datorită pierderilor dielectrice foarte reduse, materialele dielectrice pe baza de tantal cu structură de tip perovskit complex au fost studiate pentru aplicații în domeniul microundelor și undelor milimetrice [1]. Deși acestea sunt dintre cele mai performante, temperaturile mari de sinteză, resursele limitate și prețul ridicat restrâng foarte mult domeniile de aplicabilitate pentru compușii pe bază de tantal [3].

Director General INCDFM,  
Dr. Ionuț Enculescu

În ultimii ani, materiale dielectrice din familia niobațiilor au atras o atenție specială datorită costului redus al materiei prime și a temperaturilor de procesare nu foarte ridicate [3-6]. Dintre acestea, compușii de tip  $Mg_4Nb_2O_9$  (MNO) prezintă pierderi dielectrice foarte reduse în microunde, comparabile cu cele ale tantalătilor. Prin urmare, în acord cu relația de proporționalitate dintre pierderile dielectrice intrinseci și frecvența câmpului electromagnetic [7], este de așteptat ca aceste materiale să prezinte absorbție în terahertzii suficient de redusă pentru a fi utilizate în aplicații.

Scopul acestei invenții este de a reduce pierderile dielectrice extrinseci ale ceramicilor MNO prin optimizarea parametrilor de sinteza, în strânsă corelație cu structura cristalină și microstructura, stabilindu-se astfel procedeul de obținerea a unor materiale dielectrice rentabile, cu absorbție redusă în terahertzii.

Datorită costurilor reduse, tehnologia ceramică convențională [8] este de departe procedeul cel mai utilizat pentru producerea industrială a materialelor policristaline. În acest sens, eșantioane MNO au fost preparate reacție în fază solidă din pulberi oxidice ( $MgO$  și  $Nb_2O_5$ ) de înaltă puritate (99.5 %). În conformitate cu rezultatele obținute prin difracție de raze X, microscopie electronică de baleaj și spectroscopie de terahertzii în domeniu timp s-a optimizat procedeul de obținere a ceramicilor MNO cu absorbție redusă, după cum urmează:

- măcinare primară în apă deionizată la 400 rotații pe minut timp de 5 ore în moara planetară cu vase și bile de zirconia;
- calcinare în aer la 1150 °C timp de 4 ore;
- măcinare secundară în apă deionizată la 400 rotații pe minut timp de 3 ore în moara planetară cu vase și bile de zirconia;
- granulare cu liant pe bază de alcool polivinic, 2 % procent masic;
- presare uniaxială la 50 MPa în mătrițe cilindrice cu diametru de 12 mm;
- sinterizare în aer la 1300 °C/4h.

Director General INCDFM,  
Dr. Ionuț Enculescu



*a-2015--00898-*

În continuare sunt prezentate rezultatele spectroscopiei de teraherti în domeniu timp pe materiale ceramice optimizate. Măsurările au fost efectuate în transmisie pe discuri cu grosime de 0,3 mm. În Fig. 1 este prezentată dependența de frecvență a indicelui de refracție și a coeficientului de absorție a eșantionului MNO, creșterea accentuată la frecvențe mai mari de 2 THz fiind datorată interacției câmpului electromagnetic cu fononii optici activi în infraroșu îndepărtat. În baza rezultatelor obținute se poate concluziona ca ceramicile  $Mg_4Nb_2O_9$  optimizate pot fi utilizate în componente pasive pentru unde milimetrice și submilimetrice.

Director General INCDFM,

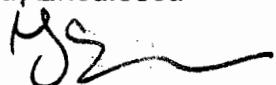
Dr. Ionut Enculescu



## REVENDICĂRI

Procedeu de obținere a unor materiale ceramice pe bază de niobiu cu absorbție redusă în terahertzii caracterizat prin aceea că, pulberea de  $Mg_4Nb_2O_9$  calcinată la  $1150\text{ }^{\circ}\text{C}/4\text{h}$ , presată uniaxial la  $50\text{ MPa}$  și sinterizată la  $1300\text{ }^{\circ}\text{C}/4\text{h}$  conduce la eșantioane care au coeficientul de absorbție mai mic de  $10\text{ cm}^{-1}$  la  $1\text{ THz}$ .

Director General INCDFM,  
Dr. Ionuț Enculescu



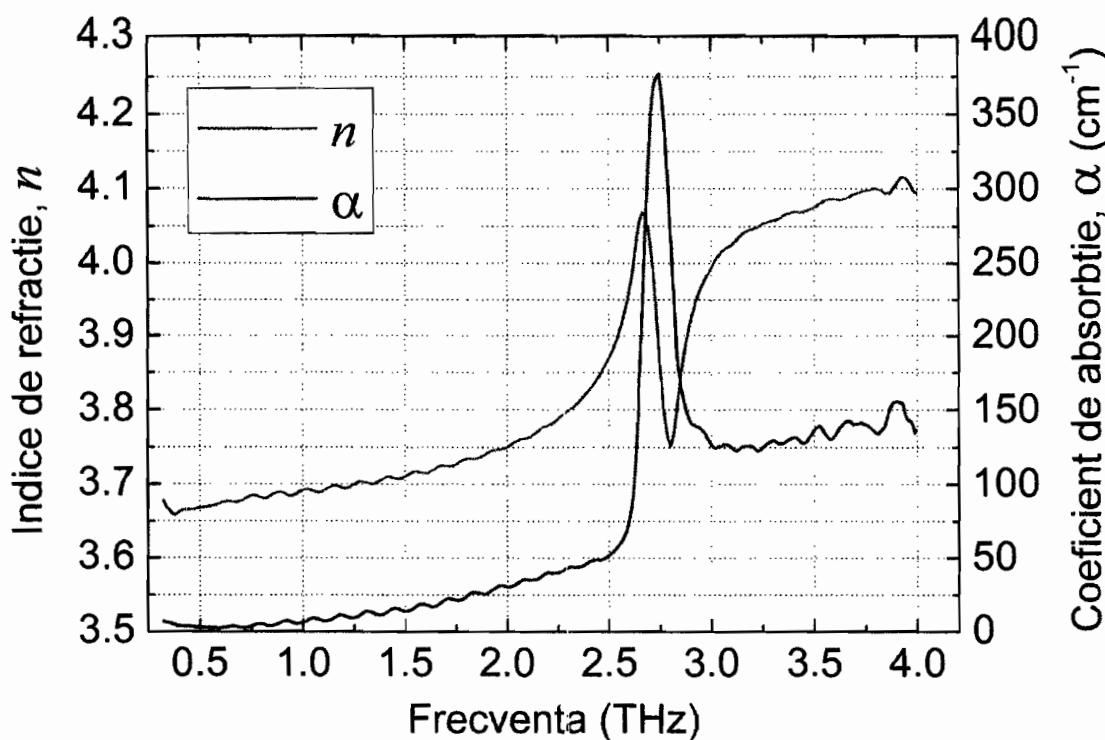


Fig. 1. Indicele de refracție ( $n$ ) și coeficientul de absorție ( $\alpha$ ) în funcție de frecvență pentru eșantionul  $\text{Mg}_4\text{Nb}_2\text{O}_9$  optimizat.

Director General INCDFM,

Dr. Ionut Enculescu

IS