

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5046462号
(P5046462)

(45) 発行日 平成24年10月10日 (2012.10.10)

(24) 登録日 平成24年7月27日 (2012.7.27)

(51) Int. Cl.		F I	
CO 8 L 101/00	(2006.01)	CO 8 L 101/00	
CO 8 K 9/00	(2006.01)	CO 8 K 9/00	
HO 1 B 3/00	(2006.01)	HO 1 B 3/00	A
HO 1 Q 15/08	(2006.01)	HO 1 Q 15/08	

請求項の数 3 (全 20 頁)

(21) 出願番号	特願2001-575443 (P2001-575443)	(73) 特許権者	505005049
(86) (22) 出願日	平成13年2月23日 (2001.2.23)		スリーエム イノベイティブ プロパティ
(65) 公表番号	特表2003-530463 (P2003-530463A)		ズ カンパニー
(43) 公表日	平成15年10月14日 (2003.10.14)		アメリカ合衆国, ミネソタ州 55133
(86) 国際出願番号	PCT/US2001/005877		-3427, セント ポール, ポスト オ
(87) 国際公開番号	W02001/078085		フィス ボックス 33427, スリーエ
(87) 国際公開日	平成13年10月18日 (2001.10.18)		ム センター
審査請求日	平成20年2月20日 (2008.2.20)	(74) 代理人	100062144
(31) 優先権主張番号	09/544,067		弁理士 青山 稔
(32) 優先日	平成12年4月6日 (2000.4.6)	(74) 代理人	100088801
(33) 優先権主張国	米国 (US)		弁理士 山本 宗雄
		(72) 発明者	クレイグ・エス・チェンバレン
			アメリカ合衆国55133-3427 ミネ
			ソタ州セント・ポール、ポスト・オフィス
			・ボックス33427

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 低マイクロ波損失の低密度誘電体

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

マイクロ波透過性ポリマーを含むマトリックス材料と、
前記マトリックス中に分散した 1 ~ 65 体積% の粒状充填剤と、
を含む複合材料であって、前記粒状充填剤が、
前記充填剤粒子上の 5 ~ 500 nm 厚の導電性コーティングと、
前記導電性コーティング上の電気絶縁性のコーティングと、
密度が 3.5 g / cc 未満であり、最大寸法が 0.5 mm 未満である回転楕円体およ
び楕円体から選択され、最小寸法が 100 μm 未満でありアスペクト比が 2 : 1 を超える
粒子と、

0.9 GHz において 1.2 ~ 100 の間の複合材料誘電率および 0.9 GHz にお
いて 0.10 以下の複合材料マイクロ波損失正接の組合せを得るのに十分な粒度およびコ
ーティング厚さの組合せと、
を特徴とする複合材料。

【請求項 2】

密度 0.47 ~ 0.87 g / cc を有する請求項 1 に記載の複合材料。

【請求項 3】

前記充填剤が 10 ~ 350 μm の範囲内の平均粒度の中空マイクロスフィアを含み、前
記充填剤粒子上の導電性コーティングが、アルミニウム、ステンレス鋼、チタン、および
タングステンからなる群より選択される金属を含む、請求項 1 または 2 に記載の複合材料

。

【発明の詳細な説明】

【0001】

技術分野

本発明は、充填剤およびポリマーを含む複合材料に関するものであり、これらの複合材料は低密度、低マイクロ波損失であり、所定の誘電率を有する。

【0002】

背景

マイクロ波レンズおよびアンテナは、高誘電率充填剤を含有するプラスチックなどのマイクロ波透過性高誘電性材料から製造することができる。

10

【0003】

二酸化チタンやチタン酸バリウムなどの高密度無機化合物は、マイクロ波用高誘電性材料の製造のための充填剤として使用することができる。複合材料の誘電率を増加させるためにはこれらの充填剤の充填体積が増加するため、複合材料の密度も増加する。より低密度で高誘電性の材料は、低密度材料の比較的大きな粒子に金属をコーティングすることによって製造されてきた。

【0004】

マイクロスフィアは、中実または中空の比較的小さな実質的に球形の粒子である。中空マイクロスフィアはマイクロバブルとも呼ばれる。マイクロスフィアはガラス製であることが多い。金属コーティングを有するマイクロスフィアがポリマー物品に混入されて使用されてきた。

20

【0005】

発明の開示

簡潔に述べると、本発明は、マイクロ波透過性ポリマーを含むマトリックス材料と、マトリックス中に分散した約1～65体積%の粒状充填剤とを含む複合材料を提供する。この粒状充填剤は、充填剤粒子上の導電性コーティングと、最大寸法が約0.5mm未満（好ましくは約0.2mm未満）である回転楕円体および楕円体から選択され、最小寸法が100μmでアスペクト比が約2：1を超える粒子と、約1.2～100の間の複合材料誘電率および1GHzにおいて約0.10以下の複合材料マイクロ波損失正接の組合せを得るのに十分な粒度およびコーティング厚さの組合せとを特徴とする。

30

【0006】

別の態様では、本発明は、マイクロ波透過性ポリマーを含むマトリックス材料と、マトリックス中に分散したマイクロスフィアを含む約1～65体積%の充填剤とを含む複合材料を提供する。この充填剤マイクロスフィアは導電性コーティングを含み、特に有用な導電性コーティングとしては、アルミニウム、ステンレス鋼、チタン、およびタングステンなどが挙げられる。またこの充填剤マイクロスフィアは、10～350μmの平均粒度と、約3.5g/cc未満の密度と、約1.2～100の間の複合材料誘電率および1GHzにおいて約0.10以下の複合材料マイクロ波損失正接の組合せを得るのに十分な粒度およびコーティング厚さの組合せとを特徴とする。

【0007】

40

本明細書で使用される場合、

「マトリックス」は、連続でも不連続でもよく、空隙および/またはガスを含んでもよいポリマー材料の網目構造を意味し、

「充填剤」は、コーティングされたまたはコーティングされていない粒子を意味し、これは中空でも中実でもよく、ガラスやセラミックスなどの無機材料またはポリマーなどの有機材料から製造されてもよく、球形、繊維、および/またはフレークなどの種々の形状であってもよく、

「導電性」は、抵抗率が約 $10^{-6} \sim 10^0$ ・cmの間であることを意味し、

「最大寸法」は粒子の直径、長さ、幅、断面、または厚さの最大のものを意味し、「最小寸法」は粒子の直径、長さ、幅、断面、または厚さの最小のものを意味し、最大寸法および

50

最小寸法はどちらも標準的なふるい分け方法または粒子分粒装置によって直接測定または分級が可能であり、

「実質的に中空」は、少なくともある程度の空隙またはガスを包含することを意味し、

「バブル」は、通常は球形である実質的に中空の粒子を意味し、

「マイクロバブル」および「マイクロスフィア」は、粒度が約 $350\text{ }\mu\text{m}$ 未満である球体を意味し、

「密度」は、ASTM D2840に記載のように粒状材料の体積に対する重量の比を意味し、

中空マイクロスフィアに適用される場合の「溶融加工可能」は、ポリマーメルトと混合中、またはレンズまたはアンテナの製造作業中に通常発生するような圧力に対して、マイクロスフィアの大部分が粉碎されずに耐えることができることを意味し、

「金属コーティングされた」は、電氣的に連続した金属層で実質的に封入されたことを意味し、

「化学発泡剤」は、押出成形可能なポリマーに混入することができ、押出成形中に使用される温度より高温で分解して窒素や二酸化炭素などのガスを発生し、その分解温度より高温に物質が加熱されるとガスがポリマー・マトリックス中の空隙に取り入れられる物質を意味し、

「著しく破裂した」は、低密度充填剤として効果的でなくなる程度に損傷したマイクロスフィアを意味する。

【0008】

本発明の利点の1つは、低密度で所定の誘電率を有しマイクロ波周波数領域で低誘電損失の複合材料を提供することである。この複合材料の誘電率は広範囲で選択可能である。複合材料中の好ましい充填剤の体積分率が增加すると、複合材料の誘電率が增加する。いくつかの実施態様では、充填剤の体積分率が增加すると、複合材料の密度は増加するのではなく減少する。これらの本発明の材料は、例えばマイクロ波アンテナおよびマイクロ波レンズ用途に有用であり、特に重量が重要な考慮点である場合に有用である。

【0009】

詳細な説明

本発明の複合材料は低密度であり、マイクロ波周波数領域で低誘電損失であり、約 $1\sim100$ の範囲から選択可能な誘電率を有する。

【0010】

マトリックス材料は連続であっても不連続であってもよい。マトリックス材料のポリマーは中実であっても発泡していてもよい。マトリックス材料としては、充填剤材料を互いに結合させる機能を果たすマイクロ波透過性ポリマーが挙げられる。この材料は、 $65\text{ }(^{\circ}\text{F})$ より高温 (より好ましくは $95\text{ }(^{\circ}\text{F})$ より高温) で安定であることが好ましい。この材料は通常は安価であり、重量を基準にした場合に複合材料中で最も安価な材料であることが好ましい。

【0011】

本発明に有用なマイクロ波透過性ポリマーは非極性材料から極性または芳香族材料までおよび、一般にポリマーの極性または芳香族性と複合材料中に混入される量との両方とともに損失正接が増加する。したがって、少量で使用される場合は極性材料または芳香族材料が本発明で有用である。非極性および飽和材料は、複合材料中に多量のポリマーが使用される場合には好ましい。本発明に有用なマイクロ波透過性ポリマーは、マイクロ波周波数を吸収する有意な官能性を有さないことが好ましい。

【0012】

有用なポリマーの例としては、酢酸セルロース、天然ゴム、ポリアミド、ポリエステル、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメタクリル酸メチル、フルオロポリマー、ポリウレタン、合成ゴム、およびシリコンが挙げられる。ポリオレフィン、低コスト、マイクロ波透過性、および加工の容易さなどの性質を有するため好ましい。飽和ポリオレフィンおよび一部に不飽和のセグメントを有するポリオレフィン、芳香族セグメントを含む材

10

20

30

40

50

料およびより極性の高いポリマーよりも好ましい。好適なエラストマーバインダーとしては、天然ゴム、合成ゴム、およびシリコン化合物が挙げられる。

【0013】

複合材料の1GHzにおける誘電損失正接を0.10を超える値まで上昇させるには不十分である量で使用されるのであれば、マトリックス材料として、マイクロ波吸収性芳香族、およびマイクロ波を吸収する官能基を有するポリマーも挙げることができる。

【0014】

粒状充填剤は、複合材料の誘電率を増加させるために使用される通常の充填剤よりも低密度であり、複合材料と混合した場合に誘電損失は実質的に増加しない。充填剤の寸法、形状、および組成は、個々の用途および周波数範囲に応じて選択され、マイクロスフィア、針状繊維、および/またはフレークが好ましい。充填剤は後述するように導電性材料でコーティングされる。本発明の複合材料に使用される粒状充填剤の密度は約3.5g/cc未満(より好ましくは2.7g/cc未満)であることが好ましい。いくつかの用途では、密度が約1.0g/cc未満である粒状充填剤が好ましい。個々の用途における複合材料に望まれる誘電率は、使用される充填剤の種類および量によって決定される。所望の誘電率が増加する場合、二酸化チタンまたはチタン酸バリウム充填剤を使用して製造される当技術分野で公知の材料は、充填剤含有率を上昇させ密度を増加させて製造しなければならない。望ましくは、本発明の複合材料は誘電率が増加するにつれて密度が低下する。

【0015】

針状繊維はポリマー材料、あるいはセラミックや粉碎ガラスなどの無機材料を含んでもよい。好ましい針状繊維はチョップドストランドガラス繊維(Owens Corning (Toledo, オハイオ州)よりFiberglass(登録商標)Milled Fibers 731ED 1/32インチとして入手可能)である。これらの繊維は平均直径が15.8μmであり、アスペクト比が40:1である。マイカは無機フレークとして好ましい。好ましいマイカフレーク材料は平均密度が2.9g/ccであり、平均表面積が2.8m²/gである(Zemex Industrial Minerals, Inc. (カナダオンタリオ州Toronto)よりSuzoriteTM 200HKとして入手可能)。中空マイクロスフィアは、二酸化チタンなどの複合材料の誘電率を増加させるために従来使用されてきた充填剤よりも好ましい。かかるマイクロスフィアはガラス、セラミック、および/またはポリマー材料から製造されることが好ましい。マイクロスフィアに好ましい材料はガラスであるが、セラミックおよびポリマー材料も好適である。

【0016】

好ましい粒状充填剤の1つは中空ガラスマイクロスフィアを含む。10~350μmの範囲内の平均外径が好適である。マイクロスフィアの平均外径の好ましい範囲は15~50μmである。マイクロスフィアの好ましい密度は、ASTM D2840に準拠して測定した場合で約0.25~0.75g/cc(より好ましくは約0.30~0.65g/cc)である。好ましいガラスマイクロスフィアはソーダ石灰ホウケイ酸ガラス(Minnesota Mining and Manufacturing Co. (3M) (St. Paul, ミネソタ州)より入手可能なScotchliteTM Glass Bubble)である。一般に、これらのマイクロスフィアは、マイクロスフィアが著しく破裂することなく好ましくは少なくとも約6.9MPa(1,000psi)の静水圧に十分耐えられるほどの強度を有するべきである。破碎されたマイクロスフィアは複合材料の密度を増加させ、本発明に望ましい低密度低マイクロ波損失特性を与えない。好ましい種類のK37 ScotchliteTM Glass Bubbleはこの目的に適する。これらのK37ガラスバブルは、平均密度が0.37g/cc、平均直径が約40μmであり、目標残存率90%および最低残存率90%における静水圧破碎強さが3,000psi(20.7MPa)である。静水圧破碎強さが10,000psi(68.9MPa)であり平均直径が約30μmであるS60/10,000 ScotchliteTM Glass Bubbleなどのさらに高強度のマイクロスフィアを使用することもできるが、これらはより高い平均密度0.60g/ccを有する。

10

20

30

40

50

【0017】

粒状充填剤は、複合材料の約1～65（より好ましくは約5～45）体積％を構成する。約1体積％未満の量では、複合材料の誘電率の有意な変化が起こらない。約65体積％を超える量は、複合材料を互いに維持するためのマトリックス材料が不十分となる場合があるのであまり望ましくない。マトリックス複合材料を発泡させる場合または材料が不足している場合は、残部35体積％の有意量が空気またはその他の気体であってもよい。充填剤の体積配合率が好ましい範囲の上限である本発明の実施態様では、本発明の複合材料の熔融加工時のマイクロスフィアの有意な破裂を防止するためにより高強度のマイクロスフィア（例えばS60/10,000）が使用される。

【0018】

粒状充填剤表面には、充填剤を実質的に封入するための導電性コーティング層が形成される。導電性コーティング材料は、個々の用途における周波数範囲を考慮して選択される。望まれる性質は、使用される厚さでの表面に対するぬれ性、低コスト、および材料の入手しやすさである。好ましい材料としては、アルミニウム、ステンレス鋼、チタン、およびタングステンが挙げられる。

【0019】

表面にコーティング材料のビードが形成される場合などに発生する導電性材料の不連続層は、誘電率を低下させる原因となりうるので好ましくない。マイクロ波周波数範囲で低損失を有する複合材料の場合、導電性コーティング層の好ましい厚さは約5～500ナノメートル（nm）（より好ましくは約10～100nm）の範囲である。より低密度の複合材料の場合には、約100nm未満の厚さの層がより望ましい。

【0020】

所与の粒度の充填剤粒子において、導電性コーティングの厚さおよび種類は、誘電損失の程度において重要な因子である。コーティングが非常に薄いと、マイクロ波損失が非常に高くことが分かっている。なんらかの具体的な理論で束縛することを望むものではないが、マイクロ波放射線の電場とのカップリングによるためと考えられる。この種のマイクロ波損失は、導電性コーティング厚さを増加させると減少する。しかしながら、導電性コーティング厚さが増加すると、マイクロ波放射線の磁場成分とのカップリングによるマイクロ波損失が増加する。現在最小のマイクロ波損失は、マイクロ波放射線の両方の成分とのカップリングが少なくなる中間の導電性コーティング厚さで達成されている。

【0021】

複合材料のマイクロ波損失は、（1）金属の厚さ、（2）金属の種類、（3）充填剤の形状、（4）充填剤の粒度、（5）マイクロ波周波数、および（6）複合材料中のマトリックス材料のマイクロ波損失の少なくとも6つの変数の影響を受ける。所与の周波数ならびに充填剤の形状および粒度では、損失値は金属の種類および厚さによって変動する。一般に各金属は特殊な実験によって決定された金属厚さにおいて最小損失値を有する。このことを図3に示しており、この図ではマイクロスフィアは3種類の異なる金属でコーティングされたものであり、それぞれいくつかの異なる厚さ値を有する。図から分かるように、各金属は異なる金属厚さによって最小損失値が得られた。マイクロバブルまたは繊維の直径またはフレークの厚さが減少した場合には、金属厚さの範囲の下限付近の金属コーティングでもより低い損失値が得られる。マイクロ波周波数が増加する場合は、低い損失値の達成がより困難となる。

【0022】

導電性コーティング上に、実質的に電気絶縁層の層を形成することができる。かかる絶縁層は粒状充填剤を実質的に封入することが好ましい。この層は、導電性層の有効厚さを減少させうる経時酸化を防止するなどによって導電性層を安定化させることができる。いくつかの薄い導電性コーティングは酸化されやすく、それによってコーティングの一部またはコーティングの全体が非導電性となる。例えば、薄いタングステンコーティングは空気にさらされたときに、場合によってはおよそ数時間以内に粉体抵抗率の測定可能な変化が生じる。暗灰色または黒色の金属層が白色または無色の酸化物に転化することによって、

10

20

30

40

50

金属コーティングされた粒子の色の完全な退色が数日または数週間以内に起こりうる。亜酸化アルミニウムなどの保護絶縁層を加えることによってこれが防止される。吸収が最小になるように最適化された導電性コーティングが部分的酸化した場合に推測される結果では、有効厚さが減少し、そのため吸収の増加が起こる。完全に酸化されたコーティングの場合に推測される結果では、金属酸化物コーティングされた粒子は高誘電性充填剤として機能しない。

【0023】

かかる絶縁層は薄くてもよく、例えば約4 nmであってもよい。このコーティングの材料は、有害な化学反応を避けるために導電性コーティングと適合性であるものから選択されることが好ましい。例えば、アルミニウムが導電性コーティングとして使用される場合、亜酸化アルミニウムが絶縁層として好適である。

10

【0024】

絶縁層は任意の有用な手段によって形成される。一般に、導電性層がアルミニウムを含む場合、酸化アルミニウムなどの導電性コーティング材料の酸化物を形成するのに十分な条件および量で蒸着工程中に酸素を導入することによって実現される。

【0025】

別の絶縁層を有するまたは有さない充填剤を使用して誘電体を製造可能であることが実験から分かった。より低い体積配合率では、誘電特性を変化させる球体間の接触がほとんど起こらず、そのため誘電特性の変化は非有意量のみとなる。しかしながらより高い体積配合率では、充填剤粒子の電氣的接触がより起こりやすくなる。かかる接触によって材料が、電磁放射線を透過せずに吸収および反射することができる弱い導電性材料になることができる。かかる材料は実質的な誘電率を有する場合があるが、それに伴うマイクロ波誘電損失によって用途が制限される。例えば、レンズは光を屈折させるが、有意量の信号を吸収もする。絶縁層を加えることによって、粒子間の導電性を実質的に低下させることができ、それによって電磁エネルギーを吸収せずに透過する高誘電性材料を製造することができる。

20

【0026】

得られる混合物が意図する用途に十分な機械的性質を有するのであれば、相溶化剤を使用または使用しない2種類以上のポリマーの混合物を使用することもできる。コーティングされた充填剤の充填レベルが少なく周波数が約1 GHz未満と低い場合、有意な多孔性を有する場合でさえもほとんどすべてのポリマーはマトリックス材料中で機能する。コーティングされた充填剤の充填レベルの増加、および周波数の増加によってマイクロ波損失は増加するので、官能性が低く芳香性が低く無極性のポリマーが好ましい。約6 ~ 10 GHzの複合材料用途では、ポリオレフィンおよびポリテトラフルオロエチレンが最も好ましい。したがって本発明は、高MHz(10⁸ Hzを超える)から高GHzの範囲(10¹² Hzを超える)で低損失となる複合材料を提供する。

30

【0027】

本発明の複合材料を、本発明の複合材料と同様の組成の対照複合材料と比較することができる。この対照複合材料は、二酸化チタンまたはチタン酸バリウム充填剤、あるいは別の好適な市販のマイクロ波透過性充填剤を十分な量含有し、本発明の複合材料の誘電率の約5%以内の誘電率が得られる。本発明の複合材料は本発明の充填剤を含有する。本発明の複合材料は、対照複合材料の密度の約95%未満(より好ましくは85%未満)の密度であることが好ましい。

40

【0028】

これまでの議論を考慮すれば、本発明に好ましい充填剤材料は、導電性コーティング、導電性コーティングを封入する非導電性層、低密度、および熔融加工可能のための十分な強度の4つの性質を有するガラスマイクロスフィアである。本発明により好ましい充填剤材料は、さらにより低密度の中空ガラスマイクロスフィアである。

【0029】

ガラスバブルまたはミルドグラスファイバーなどの非導電性充填剤粒子は、従来のコーテ

50

ィング方法などの任意の有用な手段によって金属薄膜でコーティングすることができる。これらの技術としては、スパッタ蒸着、気化コーティング、および陰極アークコーティングなどの物理蒸着方法、化学蒸着、ならびに無電解めっきまたはミラーリングなどの溶液コーティング技術が挙げられる。それぞれの場合で粒子が均一にコーティングされて適切な膜厚が得られるように、粒子表面が金属源に適切に曝露されるための適切な配慮が必要である。例えばスパッタ蒸着では、金属蒸気の流れの中で粒子を攪拌することができ、曝露時間および蒸着速度を制御することによってコーティング厚さが制御される。絶縁性コーティングも同様の方法で設けることができ、例えば、粒子表面近傍で酸素を同時に流しながら金属を蒸着させるなどの方法を実施できる。

【 0 0 3 0 】

10

複合材料は、熱可塑性材料中にコーティングされた粒子を混入することによって製造することができる。これは、熱可塑性材料を溶融させ、コーティングされた粒子を溶融物中に機械的に混合するなどの任意の好適な手段によって実施することができる。かかる方法の代表的設備としては一軸および二軸スクリュウ押出機が挙げられ、その加工条件は、コーティングされた粒子が熱可塑性樹脂と密接かつ均一に混合するが、摩耗や破損などの機械的損傷は受けないような加工条件から選択されることが好ましい。得られる複合材料は任意の有用な手段によって最終物品に成形することができる。かかる物品の例としてはレンズおよび平面アンテナが挙げられる。射出成形または加熱プラテンプレス法などの溶融加工方法を使用してもよい。

【 0 0 3 1 】

20

連続マトリックスは、マトリックス材料によって粒状充填剤が実質的に封入されて実質的に空隙が存在しない場合に得られる。不連続マトリックスは、連続マトリックスに使用されるよりも少量のマトリックスを使用する場合に形成される。粒状充填剤は不連続マトリックス中で互いに結合しているが、マトリックス材料がなければ網目構造全体を通過する連続経路は通常は形成できない。

【 0 0 3 2 】

本発明の複合材料は、マトリックスを構成するポリマーよりも誘電率の低い別の成分を含んでもよい。例えば、複合材料中に充填剤とともに空隙またはガスを混入させることができ、それによって発泡以外は同様の組成の未発泡マトリックスよりも一般に密度が低い発泡マトリックスが得られる。空気またはその他のガスをポリマーに混入することによって通常は密度が低下するが、誘電率も低下する。本発明の利点の1つは、金属コーティングされた中空マイクロスフィア充填剤をポリマーに加えることで、複合材料の誘電率を、発泡マトリックス材料の充填剤を加えないポリマーとほぼ同じにすることが可能なことである。すなわち発泡複合材料は、マトリックス材料中のポリマーの誘電率と同じまたはほぼ同じ誘電率を有する場合があります、さらにはより低密度である。

30

【 0 0 3 3 】

発泡剤は発泡複合材料を得るために有用な材料である。好適な化学発泡剤は、押出温度では安定であるが、それより高温で分解して窒素または二酸化炭素などのガスを発生する。こうして発生したガスがマトリックス材料を発泡させる。マイクロ波透過性ポリマーとして低密度ポリエチレン (LDPE) を使用する場合に好ましい化学発泡剤は p , p' - オキシビス (ベンゼンスルホニルヒドラジド) (Uniroyal Chemical Co. (Middlebury、コネティカット州) の CelogenTM OTとして入手可能) である。

40

【 0 0 3 4 】

マイクロスフィアの体積配合率がより低い発泡系または不足系が約 1 . 2 の誘電率を達成するために使用される。高アスペクト比の繊維またはフレークへの充填剤形状の変更および充填剤配合率の増加は、50 ~ 100 の間のより高い複合材料誘電率を得るために使用される。

【 0 0 3 5 】

レンズは、屈折によって放射線を曲げるまたは集中させるために成形された物品である。

50

屈折率に基づいて、可視光透過性材料に関するレンズ設計が行われる。同様に、誘電率に基づいて、その他の材料に関するレンズ設計が行われる（低マイクロ波損失材料の場合、屈折率は誘電率の平方根で近似できる）。平面、凸形、凹形、半球形、または球形のレンズ構造は前述の複合材料を使用して成形することができる。例えば、J. J. Lee, 「Numerical Methods Make Lens Antennas Practical」, Microwaves, 81～84ページ（September 1982）を参照されたい。これらの材料は、各層が互いに同じまたは異なる誘電率であってもよい複数の層を有するレンズの製造に特に有用となりうる。本発明の複合材料が有用であるレンズの一例は、ルネベルグレンズ（Luneberg lens）として当技術分野で公知のものであり、これは誘電率が異なる多種類の誘電材料を使用する。この使用法に関するさらなる詳細は当技術分野から見つけることができる。例えば、P. G. Ingerson, 「Luneberg Lens Performance Limitations Due to Fabrication Process」IEEE Antennas and Propagation Society International Symposium, 862～865ページ（1997）を参照されたい。かかる複合材料の層状構造を使用することで、対象となる特定の周波数範囲および帯域幅に合わせることができる。この構造は放射線源の方向にレンズを向ける必要性をなくすこともでき、レンズを固定位置に配置することができる。したがって、このレンズは両方向のマイクロ波周波数伝達（例えば地上局と衛星の間）に好適である。本発明の複合材料はレンズの支持体の作製に使用することもできる。

【0036】

本発明の複合材料は誘電体アンテナにも有用である。例えば、これらの複合材料から作製されたアンテナ基板は特定の誘電率を有しマイクロ波周波数範囲で低損失となることができる。さらなるアンテナの用途は米国特許第5,844,523号に記載されている。

【0037】

本発明の充填剤および複合材料は、前述したように本発明の複合材料により高い体積%の好ましい意充填剤を添加することによって誘電率を増加させながら密度を低下させることができる。これらの複合材料が低密度の性質のため、これらの材料が大きな体積を占めることができ、さらに建造物、乗り物、航空機、周回軌道衛星、またはより軽量であることが望ましい性質である任意の用途に導入することができる。さらに、本発明の材料は高周波数範囲のマイクロ波伝達で低損失が得られ、従来の熱可塑性樹脂加工技術を使用できる。

【0038】

以下の実施例によって本発明の目的および利点をさらに説明するが、これらの実施例に記載される個々の材料およびそれらの量、ならびにその他の条件および詳細は本発明を不当に限定するために構成されたものではない。

【0039】

実施例

試験方法

導電性コーティングの厚さ

マイクロスフィアの表面積はBET表面積法を使用して測定した。マイクロスフィア上の金属の重量%は、硝酸、塩酸、または硫酸と適宜組み合わせた希フッ化水素酸中でのコーティングされた粒子の溶解部分によって求めた。得られた溶液を誘導結合アルゴンプラズマ原子発光分析法で分析して粒子上の金属の重量%を求めた。粒子状の導電性コーティングの厚さは、以下の関係

$$CT = (1,000 \times (WT) / (100 - WT)) / (SA \times CD)$$

を使用して推定し、式中CT = コーティング厚さ（nm）、WT = 粒子全重量に対する金属の重量%、SA = 比表面積（m²/g）、CD = コーティング密度（g/cc）である。

【0040】

コーティングされた充填剤の密度

Model 930 Beckman Air Comparison Pycnometerを使用してコーティングされた充填剤試料の体積(V)を測定した。同じ試料の質量(M)は天秤を使用して求めた。コーティングされた充填剤の密度(D)は関係式
$$D = M / V$$

から計算した。

【0041】

複合材料の密度

これらの試料の密度は、Mettler高精度天秤で少量の試料を秤量することで測定した。次に試料を水中に配置した。室温における 1 g/cc の水の密度を使用して、置き換えられた水の質量から試料の体積を求めた。試料の密度を計算するために、測定した質量を測定した体積で割った。

【0042】

誘電率測定

905 MHzにおける薄膜の誘電特性は、RFインピーダンス/材料分析装置(Hewlett Packard (Palo Alto、カリフォルニア州)のModel HP 4291A)を使用して室温(23)で測定した。キャパシタンス測定に使用した試験を高周波数用に変更した。HP 16453A誘電試験取付具(Hewlett Packardより入手可能)も使用した。

【0043】

6.0 GHzおよび10.0 GHzにおける薄膜の誘電特性は室温で測定した。6.0 GHzの測定はDielectric Split Post Resonator試験法を使用して行った。10.0 GHzの測定は、TE01nモード円筒形中空導波路共鳴器を使用して行い、掃引走査パラメータスペクトルS21(f)、すなわち周波数の関数としての伝達信号と入力信号の比をHP8510c Vector Network Analyzerを使用して10 GHzにおける「013」共鳴近傍で測定した。複合材料の誘電率測定の誤差は、6.0 GHzおよび10.0 GHzの両方の測定で、実部が $\pm 0.1\%$ であり、損失正接が ± 0.0001 であった。非常に高い(30,000を超える)Q因子(すなわち共鳴量の因子)および付随する狭い帯域幅が得られた。かかる高いQ因子は、共鳴が非常に狭い周波数幅で低損失材料に同伴すると画定されたことを意味する。その空洞場を励起させ測定した。空洞場は金属箱内の電磁場であり、電場を励起させるための第1のプロープとエネルギーを受け取るための第2のプロープを使用し、発生する共鳴の減少を求めるために箱に試料を挿入する前後に測定が行われる。完全円筒境界値問題の解法を使用して、S21(f)スペクトルから求めた空洞のQおよび共鳴周波数について誘電率および損失正接の厳密な計算を行った。空洞壁の有限の導電率を考慮して補正を行った。

【0044】

【表1】

使用した材料

10

20

30

材料	説明
二酸化チタン	DuPont(Wilmington、デラウェア州)より Ti-Pure R960 として入手可能
タングステン	Teledyne Advanced Materials(Huntsville、アラバマ州)より純度 99.95 重量%のタングステン切削フラットストックとして入手可能
304 ステンレス鋼	Specialty Steel and Forge(Fairfield、ニュージャージー州)より 304 ステンレス鋼板として入手可能
アルミニウム	Central Steel and Wire(Chicago、イリノイ州)より 1100F アルミニウム板として入手可能
チタン	Astro Metallurgic, Inc.(Wooster、オハイオ州)よりチタン板として入手可能
ポリマーA	室温硬化性高強度透明液体シリコーンゴム、General Electric Co.,Silicone Products Division(Waterford、ニューヨーク州)の製品番号 RTV 615
ポリマーB	メルトフローインデックスが 3.5 の低密度ポリエチレン、Eastman Chemical Co.(Kingsport、テネシー州)より Tenite™ 1550F として入手可能
ポリマーC	エチレンプロピレンゴムおよび結晶質ポリプロピレンのポリマーアロイであると説明され、UV 安定化されている熱可塑性ポリオレフィンエラストマー、Montell USA(Wilmington、デラウェア州)より HiFax(登録商標)CA10 G として入手可能 G
ポリマーD	Exxon Chemicals(Houston、テキサス州)より Exact™ 4023 Plastomer として入手可能なエチレン系ブテンプラストマー
ポリマーE	Fina(Bayport、テキサス州)より Fina HDPE 1285 として入手可能な高密度ポリエチレン
ポリマーF	Shell Chemicals(Houston、テキサス州)の商品名 SRD-7462 のエチレンプロピレンゴム/ポリプロピレン
ポリマーG	Montell USA より HiFax(登録商標)MXL42D01 TPE として入手可能な部分架橋熱可塑性ポリオレフィンエラストマー

10

20

30

40

【 0 0 4 5 】

手順 1 : コーティングされた充填剤の作製

K 3 7 ガラスマイクロバブルにタングステン (W) をスパッタコーティングすることによってコーティングされた充填剤 A を作製した。最初に充填剤を 3 2 5 メッシュ (4 5 μ m) ふるいでふるい分けし、次いで 4 0 0 メッシュ (3 8 μ m) ふるい (コーティングされた充填剤 A の場合のみに使用) でふるい分けして最小粒子を除去した。ふるいを通りしなかった充填剤粒子をメタノール

に浮かべて、最高密度の粒子を除去するために浮かばなかった粒子を廃棄した。浮かんだ粒子は風乾した。ふるい分けし浮かばせて乾燥させた粒子を減圧室に入れて、圧力約 1 .

50

3×10^{-5} トル (1.73×10^{-3} Pa) まで減圧し、約 3 ミリトル (0.4 Pa) のアルゴンスパッタリングガスを充填した。粒子を室内でゆっくりと攪拌しながら、タングステン蒸気でスパッタコーティングした。カソードは直接水冷した 5 インチ × 8 インチ ($127 \text{ mm} \times 203 \text{ mm}$) のタングステン板であった。スパッタリング装置は、表 1 に示す電力を使用して直流平面マグネトロンのモードで稼働させた。次に、標準状態換算で $3.5 \text{ cm}^3 / \text{分}$ (sccm) の速度で室内の粒子近傍に酸素を入れながら 1.00 キロワット (kW) で 2.00 時間アルミニウムターゲットで同様に金属コーティングされた充填剤をスパッタコーティングした。これによって、厚さ約 2 nm の非化学量論的酸化アルミニウムの絶縁層が導電層上に形成された。

【0046】

分粒によって分類せずに $S60$ マイクロバブルを使用し、スパッタターゲットが 304 ステンレス鋼 (SS) であったことを除けば、コーティングされた充填剤 A と同様にしてコーティングされた充填剤 B ~ G を作製した。稼働条件を表 1 に示す。非化学量論的酸化アルミニウムの蒸着条件は、 20.0 sccm の酸素流で 4.00 kW において 3.00 時間であった。

【0047】

スパッタターゲットがアルミニウム (Al) であり、使用した $K37$ バブルが 325 メッシュふるいに残ったものであった (後にメタノールに浮かばせることはしなかった) ことを除けば、コーティングされた充填剤 A と同様にしてコーティングされた充填剤 H ~ K を作製した。稼働条件を表 1 に示す。非化学量論的酸化アルミニウムの蒸着条件は、 4.0 sccm の酸素流で 0.80 kW において 2.00 時間であった。

【0048】

スパッタターゲットがチタン (Ti) であり、使用した $K37$ バブルが 325 メッシュふるいに残ったものであった (後にメタノールに浮かばせることはしなかった) ことを除けば、コーティングされた充填剤 A と同様にしてコーティングされた充填剤 L ~ O を作製した。稼働条件を表 1 に示す。非化学量論的酸化アルミニウムの蒸着条件は、 4.0 sccm の酸素流で 0.80 kW において 2.00 時間であった。

【0049】

コーティングされた充填剤 A と同様にして P ~ V コーティングされた充填剤を作製し、使用した $K37$ バブルは 325 メッシュふるいに残ったものであった (後にメタノールに浮かばせることはしなかった)。稼働条件を表 1 に示す。非化学量論的酸化アルミニウムの蒸着条件は、 4.0 sccm の酸素流で 0.80 kW において 2.00 時間であった。

【0050】

ミルドグラスファイバー (GF) にステンレス鋼をスパッタコーティングすることによってコーティングされた充填剤 W を作製した。非化学量論的酸化アルミニウムの蒸着条件は、 35.0 sccm の酸素流で 8.00 kW において 4.50 時間であった。

【0051】

酸化アルミニウム絶縁性コーティングを導電性コーティング上に被着しなかったことを除けば、コーティングされた充填剤 B と同様にしてコーティングされた充填剤 X を作製した。稼働条件を表 1 に示し、コーティング厚さ (CT) も記載する。

【0052】

【表 2】

表 1

10

20

30

40

充填剤 試料	金属	粒子の 種類	粒子の 分粒 (μm)	粒子床 重量 (g)	コーテ ィング の電力 (kW)	コーテ ィング 時間 (時間)	全電力 (kWh)	CT (nm)
A	W	K37	45 / 38	30	1.00	4	4.0	12.1
B	SS	S60	分粒せず	700	0.55	5	2.75	1.4
C	SS	S60	分粒せず	700	0.80	5	4.0	1.8
D	SS	S60	分粒せず	700	2.00	5	10.0	4.3
E	SS	S60	分粒せず	700	3.50	5	17.5	7.4
F	SS	S60	分粒せず	700	8.00	10	80	28.5
G	SS	S60	分粒せず	700	8.00	20	160	53.9
H	Al	K37	45	36	2.40	4	9.6	10.3
I	Al	K37	45	36	0.60	4	2.4	14.2
J	Al	K37	45	36	1.20	4	4.8	31.1
K	Al	K37	45	36	2.40	4	9.6	47.5
L	Ti	K37	45	36	1.00	4	4.0	8.3
M	Ti	K37	45	36	2.00	4	8.0	14.7
N	Ti	K37	45	36	4.00	4	16.0	31.5
O	Ti	K37	45	36	6.00	4	24.0	42.1
P	W	K37	45	36	0.30	4	1.2	2.5
Q	W	K37	45	36	0.60	4	2.4	5.0
R	W	K37	45	36	0.80	4	3.2	6.7
S	W	K37	45	36	1.00	4	4.0	8.4
T	W	K37	45	36	1.20	4	4.8	11.2
U	W	K37	45	36	1.80	4	7.2	16.2
V	W	K37	45	36	2.40	4	9.6	19.8
W	SS	GF	分粒せず	1570	8.00	20	160	51.1
X	SS	S60	分粒せず	700	8.00	5	40	15.0

10

20

30

【 0 0 5 3 】

手順 2 : コーティングされたマイクロバブルを含有する複合材料の混合

1 2 5 の温度に維持した Brabender バッチミキサー (Model P L 2 1 0 0、Brabender Instruments (South Hackensack、ニュージャージー州) より入手可能) 中のポリマーメルトにコーティングされた粒子を加えた。一定トルク測定値が得られ実質的に均一な溶融複合材料が得られるまで、ブレードを 7 0 r p m で約 1 0 ~ 1 5 分間回転させて 2 種類の材料を混合して複合材料を作製した。最初に 2 つのポリエステルライナーの間に溶融複合材料を配置して 3 層サンドイッチ構造を形成することによって複合材料のフラットフィルムを作製した。続いてこのサンドイッチ構造を 2 枚のアルミニウム板の間に配置して、サンドイッチ組立体を作製した。この組立体を加熱した Carver 実験室用プレス機 (Model 2 5 1 8、Fred S. Carver Co. (Wabash、インディアナ州) より入手可能) に挿入し、圧力約 6 . 9 M P a (1 0 0 0 p s i) および温度 1 0 7 (2 2 5 ° F) でフラットフィルムに成形した。アルミニウム板の間にシムを挿入して各試料の厚さを調節した。各複合材料フィルムの直径は約 1 8 c m (7 インチ) であり、厚さは約 0 . 1 0 ~ 0 . 1 5 c m (4 0 ~ 6 0 ミル) であった。

40

【 0 0 5 4 】

手順 3 : コーティングされたマイクロバブルを含有する発泡複合材料の混合

50

125 の温度に維持した Brabender バッチミキサー中のポリマーメルトにコーティングされた粒子を加えた。化学発泡剤 (p, p' - オキシビス (ベンゼンスルホニルヒドラジド)、CelogenTM OTとしてUniroyal Chemical Co. (Middlebury、コネティカット州)より入手可能)を、100重量部のポリマーに対して10重量部の発泡剤の濃度で溶融ポリマーに加えた。温度はこの化学発泡剤の分解温度よりも低温であった。一定トルク測定値が得られ実質的に均一な溶融複合材料が得られるまで、ブレードを70rpmで約10~15分間回転させて3種類の材料を混合して複合材料を作製した。最初に2つのポリエステルライナーの間に溶融複合材料を配置して3層サンドイッチ構造を形成することによって複合材料のフラットフィルムを作製した。続いてこのサンドイッチ構造を2枚のアルミニウム板の間に配置して、サンドイッチ組立体を作製した。この組立体を加熱したCarverプレス機に挿入し、圧力約6.9MPa(1000psi)および温度107 (225°F)でフラットフィルムに成形した。長方形アルミニウム板の間にシムを挿入して各試料の厚さを調節した。各複合材料フィルムの直径は約18cm(7インチ)であり、厚さは約0.10~0.15cm(40~60ミル)であった。アルミニウム成型型を使用して発泡複合材料を成形した。成型型は、対応する2つの部品を有し、それぞれ約3.125×4.0×0.5インチ(7.9×10.0×1.3cm)であり、各成型型部品中央にくぼみを有するものであった。各部品のくぼみは約2.125×3.0インチ(5.4×7.6cm)で深さ0.025インチ(0.0635cm)であった。2.125×3.0インチ(5.4×7.6cm)の大きさの複合材料の長方形試料を切り取り、成型型のくぼみ内に入れた。次に、複合材料を収容した深さ0.05インチ(0.13cm)の空洞が形成されるように各成型型部品のくぼみの位置を合わせて、2つの成型型部品を互いに固定した。続いて、成型型を250 の温度に維持したオーブンに約2分間入れて材料を発泡させた。次に成型型をオーブンから取りだし、組立体(内部に発泡複合材料を有する成型型)を氷水で急冷した。続いて、発泡複合材料試料を成型型から取り外した。

【0055】

実施例1および比較例1

本発明の充填剤および市販の充填剤に関して、複合材料密度に対する充填剤の体積配合率の影響を示す例である。

【0056】

実施例1の複合材料試料1-A~1-Dは、タングステンコーティングされたマイクロバブル(W/MB)であるコーティングされた充填剤AとポリマーBマトリックスを使用して手順2に記載のように作製し、充填剤の体積配合率を変動させた。対照Bは充填剤を使用せずに作製した。比較例1の複合材料試料CE1-A~CE-Cは、二酸化チタン充填剤とポリマーBマトリックスを使用して作製し、充填剤の体積配合率を変動させた。

【0057】

各複合材料試料について、誘電率(K)および複合材料密度の試験を行った。充填剤配合率および試験結果を表2ならびに図1および2に示す。

【0058】

【表3】

表2

10

20

30

40

複合材料 試料	充填剤	充填剤 体積%	密度 g/cc	K
1-A	W/MB	10	0.87	2.73
1-B	W/MB	30	0.74	6.03
1-C	W/MB	40	0.68	9.34
1-D	W/MB	50	0.65	15.7
対照 B	なし	なし	0.89	2.23
CE1-A	TiO ₂	5	1.05	2.76
CE1-B	TiO ₂	10	1.21	3.36
CE1-C	TiO ₂	20	1.54	4.40

10

【 0 0 5 9 】

上記表および図 1 から分かるように、本発明の複合材料の実施態様の密度は、コーティングされた充填剤の体積配合率が増加するにつれて減少した。対照的に、市販のマイクロ波透過性充填剤を使用して作製した複合材料の密度は、充填剤の体積配合率が増加するとともに直線的に増加した。

20

【 0 0 6 0 】

表 2 および図 2 は、充填剤の体積配合率が増加するとともに本発明の実施態様の誘電率が增加することを示している。さらに、図 1 および 2 の両方を考慮すれば、本発明によって、対照材料と比べて同様の寸法の物品で全重量を増加させずに比較的高い誘電率を実現可能である。実際、本発明の実施態様を使用するとかかる物品の重量が減少する。

【 0 0 6 1 】

実施例 2

複合材料の損失正接に対する充填剤上の導電性コーティングの厚さの影響を示す例である。

30

【 0 0 6 2 】

実施例 2 の複合材料試料 2 - A ~ 2 - F を手順 2 に従って作製した。充填剤には、金属コーティング厚さの異なるステンレス鋼 (S S) でコーティングされたマイクロバブルであるコーティングされた充填剤 B ~ G を複合材料の 2 0 体積 % 使用した。ポリマーマトリックスはポリマー C であった。ステンレス鋼の体積導電率は、「 H a n d b o o k o f C h e m i s t r y a n d P h y s i c s 」第 6 6 版 (C R C P r e s s I n c (B o c a R a t o n 、 フ ロ リ ダ 州) の記載によると 1.39×10^4 ($\cdot \text{cm}$)⁻¹ であった。

【 0 0 6 3 】

各複合材料試料について 6 G H z における損失正接を測定し、ミリユニット (m u) で記録した。平均導電性コーティング厚さおよび試験結果を表 4 に示す。

40

【 0 0 6 4 】

【 表 4 】

表 3

複合材料 試料	CT (nm)	損失 (μ)
2-A	1.4	78.90
2-B	1.8	58.6
2-C	4.3	11.8
2-D	7.4	14.7
2-E	28.5	33.1
2-F	53.9	51.1

10

【0065】

表3から分かるように、6GHzにおける損失正接はステンレス鋼コーティング厚さが約4.3nmのときに最小値となった。

【0066】

実施例3

複合材料の性質に対する異なる導電性コーティングを有する充填剤の影響を示す例である。

【0067】

異なる体積導電率を有する導電性コーティングを20体積%で使用したことを除けば実施例2と同様にして実施例3の複合材料試料を作製した。試料3-A~3-Dは、便覧の導電率が 3.78×10^5 ($\Omega \cdot \text{cm}$)⁻¹であるアルミニウム(Al)の異なる量でコーティングされたマイクロバブルであるコーティングされた充填剤H~Kを使用して作製した。試料3-E~3-Hは、便覧の導電率が 2.38×10^4 ($\Omega \cdot \text{cm}$)⁻¹であるチタン(Ti)の異なる量でコーティングされたマイクロバブルであるコーティングされた充填剤L~Oを使用して作製した。試料3-I~3-Pは、便覧の導電率が 1.77×10^5 ($\Omega \cdot \text{cm}$)⁻¹であるタングステン(W)の異なる量でコーティングされたマイクロバブルであるコーティングされた充填剤P~Vを使用して作製した。すべての複合材料試料はポリマーBマトリックスを使用して作製した。

20

【0068】

各複合材料試料について、10GHzにおける損失正接を測定した。導電性コーティングの平均厚さおよび試験結果を表4と図3に示す。

30

【0069】

【表5】

表4

複合材料試料	導電性コーティング		損失
	種類	CT (nm)	
3-A	Al	10.3	12.8
3-B	Al	14.2	5.23
3-C	Al	31.1	7.38
3-D	Al	47.5	12.91
3-E	Ti	8.3	17.7
3-F	Ti	14.7	7.83
3-G	Ti	31.5	4.79
3-H	Ti	42.1	4.69
3-I	W	2.5	高損失
3-J	W	5.0	5.33
3-K	W	6.7	4.23
3-L	W	8.4	4.19
3-M	W	11.2	4.51
3-N	W	16.2	6.18
3-O	W	19.8	12.21

10

【 0 0 7 0 】

20

表 4 および図 3 から分かるように、10 GHz における損失正接は、アルミニウムコーティング厚さ約 15 nm で最小値、タングステンコーティング厚さ約 8 nm で最小値、チタンコーティング厚さ 40 nm 以上で最小値となった。この実施例によって各金属で損失正接の最小値が存在し、それぞれ異なることが示された。非常に薄い膜の導電率は薄膜が作製される材料の体積導電率から実質的にずれる場合があるので、文献中の体積導電率の補正は行わなかった。

【 0 0 7 1 】

実施例 4

高アスペクト比の充填剤粒子を有する複合材料の誘電率に対する配向の影響を示す例である。

30

【 0 0 7 2 】

ガラス繊維複合材料の実施例 4 - A ~ 4 - C を、ポリマー A のマトリックス中 10 体積 % のステンレス鋼コーティングガラス繊維を使用して作製した。実施例 4 - A では、試料面 (x y 平面) に向けた直流ソレノイドコイルでかけた 50 エルステッド (Oe) (3.98 kA/m) の磁場の存在下で試料を固化または硬化させた。実施例 4 - B では、なにも処理せずに複合材料を固化させた。実施例 4 - C では、平坦な試料の主軸に対して垂直な z 軸の方向である以外は実施例 4 - A と同じ磁場の存在下で試料を固化させた。対照 C は、充填剤を使用しなかったことを除けば実施例 4 と同様に作製した。

【 0 0 7 3 】

各試料の誘電率を測定した。各複合材料試料について 32 倍の光学顕微鏡で配向の均一性を検査した。この検査から、実施例 4 - A のコーティング繊維の配向は試料の主面内にあることが分かった。実施例 4 - B では、コーティング繊維は不規則に配列していた。実施例 4 - C では、コーティング繊維は、平坦な試料の主面に対して垂直方向に高い割合で配列していた。

40

【 0 0 7 4 】

平行板コンデンサーの板の間に各試料を挿入することによって、その誘電率を測定した。キャパシタンスは、z 軸に沿った方向の電場で RCL メーターを使用して測定した。誘電率は式

$$K = C d / \epsilon_0 A$$

を使用して計算され、式中 C はキャパシタンスであり、d は試料の厚さであり、 ϵ_0 は自

50

由空間の誘電率であり、Aは試料の面積である。0.3GHzで行った誘電率測定はこのデータと一致した。繊維の配向および計算した誘電率を表5に示す。

【0075】

【表6】

表5

複合材料試料	配向	z軸配向の%	K
4-A	xy平面	0	4.6
4-B	不規則	33	5.6
4-C	z軸	100	11.9
試料C	なし	なし	3.0

10

【0076】

表5から分かるように、コーティングされた充填剤が非対称の形状である場合にはコーティングされた充填剤のz軸配向の量を制御することによって複合材料の誘電率を変化させることもできる。

【0077】

実施例5

複合材料の性質に対する異なるポリマーマトリックスの影響を示す例である。

【0078】

ステンレス鋼および酸化アルミニウムでコーティングされたマイクロバブルであるコーティングされた充填剤Xを20体積%の配合率で使用し、それぞれポリマーD、ポリマーE、およびポリマーFのマトリックスポリマーを使用したことを除けば、実施例2と同様にして実施例複合材料試料5-A、5-B、および5-Cを作製した。

【0079】

各複合材料試料について905MHzにおける損失正接を測定した。試験結果を表6に示す。

【0080】

【表7】

表6

複合材料試料	マトリックスポリマー	K	損失(mu)
5-A	ポリマーD	4.29	3.2
5-B	ポリマーE	4.78	3.6
5-C	ポリマーF	4.05	3.2

30

【0081】

表6から分かるように、損失正接はマトリックスポリマーの選択によって影響されうる。

【0082】

実施例6

複合材料の性質に対する異なるポリマーマトリックスフォームの影響を示す例である。

【0083】

実施例6は、コーティングされたマイクロバブルを含有する発泡複合材料中の30体積%（発泡前）のコーティングされた充填剤Eを使用して手順3により作製した。対照Dは、コーティングされたマイクロバブルを使用しなかったこと以外は実施例6と同様にして作製した。

【0084】

実施例について10GHzにおける誘電率(K)および複合材料の密度(g/cc)を測定した。結果を表7に示す。

【0085】

【表8】

50

表 7

複合材料試料	マトリックス ポリマー	K	密度
6	ポリマー B	3.44	0.47
対照 D	ポリマー B	1.53	0.45

【 0 0 8 6 】

表 7 から分かるように、本発明の複合材料は、代表的なフォームよりも誘電率のはるかに高く、さらに充填剤を使用しないフォームと同様の密度を有することができる。

【 0 0 8 7 】

10

実施例 7

複合材料の損失正接に対する周波数の影響を示す例である。

【 0 0 8 8 】

実施例 7 の複合材料試料 7 - A ~ 7 - E は、タングステンでコーティングされた分粒したマイクロバブルであるコーティングされた充填剤 A を種々の体積 % でポリマー B のマトリックス中に使用し手順 2 に記載のようにして作製した。対照試料 E は、コーティングされたマイクロバブルを使用せずにポリマー B から作製した。

【 0 0 8 9 】

各複合材料試料について、2 つの周波数で誘電率 (K) および損失正接を測定した。試験結果を表 8 に示す。

20

【 0 0 9 0 】

【表 9】

表 8

試料	充填剤 体積%	0.9GHz		10GHz	
		K	損失(mu)	K	損失(mu)
7-A	10	2.73	0.83	3.16	2.81
7-B	20	測定せず ^a	測定せず ^a	4.85	5.32
7-C	30	6.03	1.50	7.07	12.54
7-D	40	9.34	8.62	10.08	22.1
7-E	50	15.7	2.93	15.35	22.6
対照 E	0	---	---	2.24	0.24

30

【 0 0 9 1 】

表 8 から分かるように、本発明のマイクロ波透過性複合材料は、周波数が高くなると損失正接値も高くなるが、誘電率が増加しても低損失は維持される。

【 0 0 9 2 】

実施例 8

この例は、複合材料の性質に対する絶縁性コーティングのない充填剤粒子の影響を示す例である。

40

【 0 0 9 3 】

コーティングされた充填剤 X を配合率 2 0 体積 % でポリマー D のマトリックスに分散させて手順 2 に記載のようにして複合材料を作製した。得られた複合材料の誘電率は 4 . 8 であり 0 . 9 G H z における損失正接は 5 m u であった。

【 0 0 9 4 】

0 . 9 G H z における損失は許容できる程度に低く、これは配合率が低ければ充填剤粒子上に絶縁層がなくても低損失を得ることができることを示している。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明の複合材料と、二酸化チタン充填剤を含有する対照複合材料との種々の充填剤充填レベルにおける複合材料の密度を示すグラフである。

50

【図 2】 本発明の複合材料と、二酸化チタン充填剤を含有する対照複合材料との種々の充填剤充填レベルにおける複合材料の誘電率を示すグラフである。

【図 3】 15 体積 % の充填剤を充填した本発明のある実施態様の複合材料について、10 GHz で測定した誘電損失正接と 3 種類の金属のコーティング厚さとの関係を示すグラフである。

【図 1】

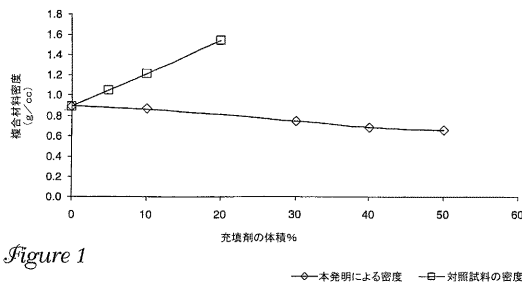


Figure 1

【図 2】

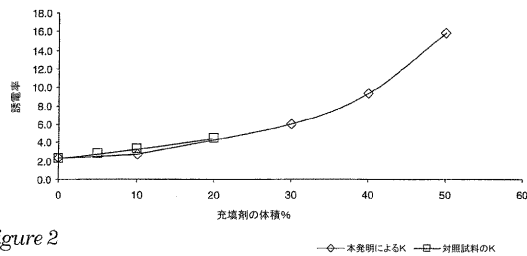


Figure 2

【図 3】

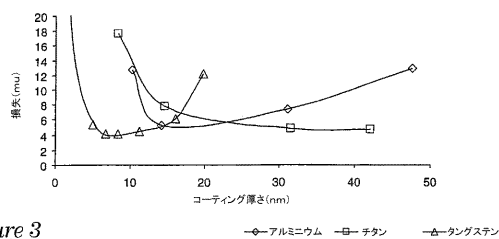


Figure 3

フロントページの続き

- (72)発明者 ジョーン・ブイ・ブレナン
アメリカ合衆国 5 5 1 3 3 - 3 4 2 7 ミネソタ州セント・ポール、ポスト・オフィス・ボックス 3 4 2 7
- (72)発明者 コンタンス・エル・ゲッティンガー
アメリカ合衆国 5 5 1 3 3 - 3 4 2 7 ミネソタ州セント・ポール、ポスト・オフィス・ボックス 3 4 2 7
- (72)発明者 ロバート・ダブリュー・ウィルソン
アメリカ合衆国 5 5 1 3 3 - 3 4 2 7 ミネソタ州セント・ポール、ポスト・オフィス・ボックス 3 4 2 7

審査官 車谷 治樹

- (56)参考文献 特開昭 4 8 - 1 0 1 4 5 5 (J P , A)
特開昭 5 8 - 0 8 9 7 0 4 (J P , A)
特開昭 6 0 - 2 5 4 5 1 4 (J P , A)
特開平 0 5 - 0 9 4 7 1 7 (J P , A)
特開平 0 5 - 3 0 7 9 1 1 (J P , A)
特開平 0 6 - 0 5 2 7 1 7 (J P , A)
特開平 0 8 - 2 0 8 8 5 6 (J P , A)
特開平 1 1 - 1 1 6 8 2 5 (J P , A)
特表 2 0 0 1 - 5 2 1 6 2 1 (J P , A)
国際公開第 9 8 / 0 4 5 7 0 3 (W O , A 1)
国際公開第 0 0 / 0 0 0 9 8 7 (W O , A 1)

- (58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)
IPC C08J 5/00-5/02
5/12-5/22
C08K 3/00-13/08
C08L 1/00-101/14
H01B 5/00-5/02
DB名 CAplus(STN)
REGISTRY(STN)