



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2014-0019808
 (43) 공개일자 2014년02월17일

- (51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C04B 35/01 (2006.01) *C04B 35/468* (2006.01)
H01B 3/12 (2006.01) *H01G 4/12* (2006.01)
- (21) 출원번호 10-2013-7027770
- (22) 출원일자(국제) 2012년03월23일
 심사청구일자 없음
- (85) 번역문제출일자 2013년10월22일
- (86) 국제출원번호 PCT/US2012/030379
- (87) 국제공개번호 WO 2012/145122
 국제공개일자 2012년10월26일
- (30) 우선권주장
 61/466,604 2011년03월23일 미국(US)

- (71) 출원인
 더 큐레이터스 오브 더 유니버시티 오브 미주리
 미국 65211 미주리주 콜롬비아 에스. 프로비던스
 알디 1601 스위트 124 엠유 비즈니스 인큐베이터
- (72) 발명자
 커리, 랜디 디.
 미국, 미주리 65211, 컬럼비아, 유니버시티 홀
 316
 오코넬, 케빈
 미국, 미주리 65211, 컬럼비아, 유니버시티 홀
 316
- (74) 대리인
 강명구

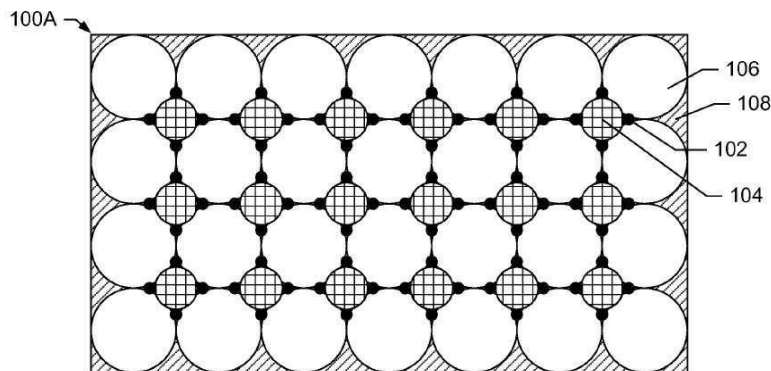
전체 청구항 수 : 총 114 항

(54) 발명의 명칭 **고유전상수 복합 재료 및 제조 방법**

(57) 요약

고 유전 상수 및 고 절연강도를 가진 복합 재료 및 상기 복합 재료를 제조하는 방법이 개시된다. 상기 복합 재료는 다양한 구성으로 가공될 수 있도록, 고주파 범위에서 높은 유전상수를 가지고 견고한 기계적 특성 및 강도를 보유한다. 상기 복합 재료는 또한 고전력 및 고에너지 밀도 시스템에서 작동하기 위한 고절연강도를 가진다. 상기 복합 재료는 바륨 티타네이트, 바륨 스트론튬 티타네이트(BST), 또는 이들의 조합을 비롯한 삼중 분포의 세라믹 입자 및 중합체 결합제로 구성된다.

대표도 - 도1a



도 1A

특허청구의 범위

청구항 1

고 유전상수 및 고 절연강도를 가지는 복합 재료이되, 다음을 포함하는 복합 재료:

고 유전상수 세라믹 입자의 분배물; 및,

중합체 재료, 여기서 중합체 재료는 고 유전상수 세라믹 입자의 분배물과 혼합되고 중합체는 인 시추(in situ)로 형성됨.

청구항 2

제1항에 있어서, 유전 상수는 20을 초과하는 복합 재료.

청구항 3

제1항에 있어서, 세라믹 입자는 단일 입자 크기를 갖는 복합 재료.

청구항 4

제1항에 있어서, 세라믹 입자는 약 2 nm 내지 약 2000 μm 의 직경을 가지는 복합 재료.

청구항 5

제1항에 있어서, 고 유전상수 세라믹 입자의 분배물은 이중모드 분배물인 복합 재료.

청구항 6

제1항에 있어서, 고 유전상수 세라믹 입자의 분배물은 삼중모드 분배물인 복합 재료.

청구항 7

제1항에 있어서, 고 유전상수 세라믹 입자의 분배물은 삼중모드 분배물인 복합 재료.

청구항 8

제7항에 있어서, 삼중모드 분배물 중 가장 큰 분배물의 세라믹 입자의 직경은 40 μm 내지 220 μm 인 복합 재료.

청구항 9

제7항에 있어서, 삼중모드 분배물 중 중간 분배물의 세라믹 입자의 직경은 500 nm 내지 5 μm 인 복합 재료.

청구항 10

제7항에 있어서, 삼중모드 분배물 중 가장 작은 분배물의 세라믹 입자의 직경은 2 nm 내지 500 nm의 범위인 복합 재료.

청구항 11

제1항에 있어서, 삼중모드 분배물은 40 μm 내지 220 μm 의 제1 범위의 제1 직경을 가지는 적어도 하나의 제1 세라믹 입자, 500 nm 내지 5 μm 의 제2 범위의 제2 직경을 가지는 적어도 하나의 제2 세라믹 입자, 및 2 nm 내지 500 nm의 제3 범위의 제3 직경을 가지는 적어도 하나의 제3 세라믹 입자를 포함하는 복합 재료.

청구항 12

제1항에 있어서, 삼중모드 분배물은 0.5 μm 내지 3 μm 의 제1 범위의 제1 직경을 가지는 적어도 하나의 제1 세라믹 입자, 65 μm 내지 150 μm 의 제2 범위의 제2 직경을 가지는 적어도 하나의 제2 세라믹 입자, 및 2 nm 내지 200 nm의 제3 범위의 제3 직경을 가지는 적어도 하나의 제3 세라믹 입자를 포함하는 복합 재료.

청구항 13

제1항에 있어서, 고 유전상수 세라믹 입자의 분배물은 50% 이상의 제1 부피율을 가지고 중합체 재료는 50% 이하의 제2 부피율을 가지는 복합 재료.

청구항 14

제1항에 있어서, 세라믹 입자는 페로브스카이트(perovskite)인 복합 재료.

청구항 15

제13항에 있어서, 페로브스카이트는 바륨 티타네이트, 스트론튬 티타네이트, 바륨 스트론튬 티타네이트, 납 지르코네이트 티타네이트, 납 마그네슘 나이오베이트-납 티타네이트, 또는 이들의 조합을 포함하는 복합 재료.

청구항 16

제1항에 있어서, 중합체 재료는 둘 이상의 고 유전상수 세라믹 입자 사이의 공극 공간을 실질적으로 채우는 복합 재료.

청구항 17

제1항에 있어서, 중합체 재료는 고 유전상수 세라믹 입자의 표면에 직접 결합하는 복합 재료.

청구항 18

제1항에 있어서, 또다른 세라믹 입자의 또다른 표면에 접촉되어 있지 않은 각각의 세라믹 입자의 모든 표면 부분은 중합체 재료 또는 유전성 액체 충전물과 접촉되는 복합 재료.

청구항 19

제1항에 있어서, 중합체 재료는 무기-유기 커플링제인 복합 재료.

청구항 20

제1항에 있어서, 중합체 재료는 실란, 티타네이트, 지르코네이트, 또는 이들의 조합을 포함하는 커플링제로부터 유도된 중합체 전구체로부터 형성되는 복합 재료.

청구항 21

제20항에 있어서, 중합체 전구체는 반응하여 폴리실세스퀴옥산을 형성하는 복합 재료.

청구항 22

제20항에 있어서, 중합체 전구체는 트리에톡시비닐실란, 비닐트리에톡시실란, 및 아미노프로필트리에톡시실란으로 이루어진 군에서 선택된 트리알콕시실란으로부터 형성되는 복합 재료.

청구항 23

제1항에 있어서, 복합 재료는 다이 프레스(die press)에서 압축되는 복합 재료.

청구항 24

제23항에 있어서, 중합체 재료의 전구체는 다이 프레스에서 압축되기 전에 고 유전상수 세라믹 입자의 분배물과 혼합되는 복합 재료.

청구항 25

제24항에 있어서, 전구체는 인-시추(in-situ)로 중합되고 가교-연결되는 복합 재료.

청구항 26

제25항에 있어서, 전구체는 열, 화학적 촉매, 또는 자외선 중 적어도 하나에 의해 중합되는 복합 재료.

청구항 27

제1항에 있어서, 추가로 유전성 유체를 포함하는 복합 재료.

청구항 28

제27항에 있어서, 유전성 유체는 고 유전상수를 가지는 복합 재료.

청구항 29

제28항에 있어서, 유전성 유체는 물, 알킬렌 카르보네이트, 오일, 또는 이들의 조합으로 이루어진 군에서 선택되는 복합 재료.

청구항 30

제29항에 있어서, 유전성 유체는 실란, 티타네이트, 지르코네이트, 또는 이들의 조합을 포함하는 복합 재료.

청구항 31

제27항에 있어서, 유전성 유체는 복합 재료에 스며들어 복합 재료에 잔여하는 임의의 공극을 제거하는 복합 재료.

청구항 32

제1항에 있어서, 중합체 재료는 용매를 흡수하여 팽윤하는 겔을 형성하는 복합 재료.

청구항 33

제32항에 있어서, 중합체 재료는 바이오중합체인 복합 재료.

청구항 34

제33항에 있어서, 중합체 재료는 아가(agar), 젤라틴, 카라긴(carrageen), 또는 이들의 조합을 포함하는 군에서 선택되는 복합 재료.

청구항 35

고 유전상수 및 고 절연강도를 가지는 복합 재료이되, 다음을 포함하는 복합 재료:

중합체 재료에 의해 함께 결합된 고 유전상수 세라믹 입자의 삼중모드 분배물, 여기서 삼중모드 분배물은 40 μm 내지 220 μm 의 제1 범위의 제1 직경을 가지는 적어도 하나의 제1 세라믹 입자, 500 nm 내지 5 μm 의 제2 범위의 제2 직경을 가지는 적어도 하나의 제2 세라믹 입자, 및 2 nm 내지 500 nm의 제3 범위의 제3 직경을 가지는 적어도 하나의 제3 세라믹 입자를 포함함; 및,

여기서 중합체 재료는 중합체 전구체로부터 인-시추(in-situ)로 중합되며 각각의 고 유전상수 세라믹 입자의 표면에 직접 결합함.

청구항 36

제35항에 있어서, 중합체 전구체는 각각의 고 유전상수 세라믹 입자의 표면을 관능화하는 복합 재료.

청구항 37

제36항에 있어서, 중합체 전구체는 실란, 지르코네이트, 및 티타네이트로부터 선택되는 복합 재료.

청구항 38

제37항에 있어서, 중합체 전구체는 비닐트리메톡시실란, 트리에톡시비닐실란, 아미노프로피트리메톡시실란, 및 이들의 조합으로 이루어진 군에서 선택되는 트리알콕시실란인 복합 재료.

청구항 39

제35항에 있어서, 중합체 전구체는 인-시추(in-situ)로 중합되어 고 유전상수 세라믹 입자 중에서도 폴리실세스퀴옥산을 형성하는 복합 재료.

청구항 40

제35항에 있어서, 중합체 전구체는 열, 화학적 촉매, 또는 자외선 중 적어도 하나에 의해 중합되는 복합 재료.

청구항 41

제35항에 있어서, 세라믹 입자는 페로브스카이트인 복합 재료.

청구항 42

제41항에 있어서, 페로브스카이트는 바륨 티타네이트, 스트론튬 티타네이트, 바륨 스트론튬 티타네이트, 납 지르코네이트 티타네이트, 납 마그네슘 나이오베이트-납 티타네이트, 또는 이들의 조합을 포함하는 복합 재료.

청구항 43

고 유전상수 및 고 절연 강도를 가지는 복합 재료이되, 다음을 포함하는 복합 재료:

중합체 재료에 의해 함께 결합된 고 유전상수 세라믹 입자의 삼중모드 분배물, 여기서 삼중모드 분배물은 40 μm 내지 220 μm 의 제1 범위의 제1 직경을 가지는 적어도 하나의 제1 세라믹 입자, 500 nm 내지 5 μm 의 제2 범위의 제2 직경을 가지는 적어도 하나의 제2 세라믹 입자, 및 2 nm 내지 500 nm의 제3 범위의 제3 직경을 가지는 적어도 하나의 제3 세라믹 입자를 포함함; 및,

중합체 재료는 겔화 중합체임, 여기서 중합체 재료는 용매와 혼합되고 중합체 재료는 용매의 적어도 일부를 흡수하여 겔을 형성함.

청구항 44

제43항에 있어서, 중합체 재료는 용매에 용해되고 이후 냉각되어 겔을 형성하는 복합 재료.

청구항 45

제44항에 있어서, 중합체 재료는 아가, 젤라틴, 카라긴, 및 이들의 조합으로부터 선택되는 복합 재료.

청구항 46

제43항에 있어서, 중합체는 복합 재료가 형성된 후 냉각되어 고체화되는 복합 재료.

청구항 47

제43항에 있어서, 용매는 복합 재료가 형성된 후 겔로부터 제거되는 복합 재료.

청구항 48

제43항에 있어서, 복합물질에 유전성 액체가 스며들어 임의의 잔여하는 공극이 제거되는 복합 재료.

청구항 49

제48항에 있어서, 유전성 액체는 물, 알킬렌 카르보네이트, 오일, 또는 이들의 조합로부터 선택되는 복합 재료.

청구항 50

제43항에 있어서, 세라믹 입자는 페로브스카이트인 복합 재료.

청구항 51

제50항에 있어서, 페로브스카이트는 바륨 티타네이트, 스트론튬 티타네이트, 바륨 스트론튬 티타네이트, 납 지르코네이트 티타네이트, 납 마그네슘 나이오베이트-납 티타네이트, 또는 이들의 조합을 포함하는 복합 재료.

청구항 52

고 유전상수 및 고 절연 강도를 가지는 복합 재료를 제조하기 위한 방법이되, 다음을 포함하는 방법:

액체 중합체 전구체와 세라믹 분말 분배물을 페이스트로 혼합하는 단계;

페이스트를 다이에 배치하는 단계;

상기 페이스트를 압축하는 단계; 및,

중합체 전구체를 중합하여 세라믹 분말 분배물의 세라믹 입자에 직접 결합하는 중합체를 형성하는 단계; 여기서 고 유전상수 복합 재료는 세라믹 분말 분배물 및 중합체를 포함함.

청구항 53

제52항에 있어서 다음을 추가로 포함하는 방법:

대형 세라믹 입자의 제1 분배물, 중간 세라믹 입자의 제2 분배물, 및 소형 세라믹 입자의 제3 분배물을 혼합하여 세라믹 분말 분배물을 형성하는 단계.

청구항 54

제53항에 있어서, 대형 세라믹 입자의 직경은 40 μm 내지 220 μm 인 방법.

청구항 55

제53항에 있어서, 중간 세라믹 입자의 직경은 500 nm 내지 5 μm 인 방법.

청구항 56

제53항에 있어서, 소형 세라믹 입자의 직경은 2 nm 내지 500 nm인 방법.

청구항 57

제52항에 있어서, 세라믹 분말 분배물은 40 μm 내지 220 μm 의 제1 범위의 제1 직경을 가지는 적어도 하나의 제1 세라믹 입자, 500 nm 내지 5 μm 의 제2 범위의 제2 직경을 가지는 적어도 하나의 제2 세라믹 입자, 및 2 nm 내지 500 nm의 제3 범위의 제3 직경을 가지는 적어도 하나의 제3 세라믹 입자를 포함하는 방법.

청구항 58

제52항에 있어서, 세라믹 분말 분배물은 의 제1 범위의 제1 직경을 가지는 적어도 하나의 제1 세라믹 입자 0.5 μm 내지 3 μm , 의 제2 범위의 제2 직경을 가지는 적어도 하나의 제2 세라믹 입자 65 μm 내지 150 μm , 및 2 nm 내지 200 nm의 제3 범위의 제3 직경을 가지는 적어도 하나의 제3 세라믹 입자를 포함하는 방법.

청구항 59

제52항에 있어서 다음을 추가로 포함하는 방법:

압축된 분배물이 적어도 80%의 충전율을 가지도록 세라믹 분말 분배물을 압축하는 단계.

청구항 60

제52항에 있어서 다음을 추가로 포함하는 방법:

복합 재료에 유전성 액체를 스며들게 하여 복합 재료 내의 공극을 채우고 복합 재료로부터 공기를 제거하는 단계.

청구항 61

제52항에 있어서, 페이스트는 다이 프레스에 의해 압축되는 방법.

청구항 62

제61항에 있어서, 페이스트는 평방 인치당 약 30톤의 압력으로 압축되는 방법.

청구항 63

제52항에 있어서, 다음을 추가로 포함하는 방법:

복합 재료를 회전 코팅하는 단계.

청구항 64

제52항에 있어서 다음을 추가로 포함하는 방법:

복합 재료를 용해 주조(solution casting)하는 단계.

청구항 65

제52항에 있어서, 중합체 전구체를 중합하여 중합체를 형성하는 단계는 가압된 페이스트를 내포하는 다이를 적어도 30분간 가열하고 고 유전상수 복합 재료를 냉각하는 단계, 화학적 촉매를 제공하는 단계, 또는 중합체 전구체를 자외선에 노출시키는 단계 중 적어도 하나를 포함하는 방법.

청구항 66

제52항에 있어서 다음을 추가로 포함하는 방법:

다이로부터 복합 재료를 제거하는 단계;

복합 재료를 원하는 모양으로 가공하는 단계;

복합 재료를 연마하는 단계; 및,

하나 이상의 전극을 복합 재료에 인가하는 단계.

청구항 67

고 유전상수를 가지고 세라믹 분말 분배물 및 중합체 결합제를 포함하는 복합 재료를 제조하기 위한 방법이되, 다음을 포함하는 방법:

대형 세라믹 입자의 제1 분배물, 중간 세라믹 입자의 제2 분배물, 및 소형 세라믹 입자의 제3 분배물을 혼합하여 세라믹 분말 분배물을 형성하는 단계;

압축된 분배물이 적어도 80%의 충전율을 가지도록 세라믹 분말 분배물을 압축하는 단계;

세라믹 분말 분배물을 액체 중합체 전구체와 혼합하여 페이스트를 형성하는 단계;

페이스트를 다이에 배치하는 단계;

페이스트를 압축하는 단계; 및,

중합체 전구체를 중합하여 세라믹 분말 분배물의 각각의 세라믹 입자의 표면에 직접 결합하는 중합체 결합제를 형성하는 단계, 여기서 중합체 전구체는 가압된 페이스트를 내포하는 다이를 적어도 30분간 가열하고 고 유전상수 복합 재료를 냉각하는 단계, 화학적 촉매를 제공하는 단계, 중합체 전구체를 자외선에 노출시키는 단계, 또는 이들의 조합에 의해 중합됨.

청구항 68

제67항에 있어서 다음을 추가로 포함하는 방법:

다이로부터 복합 재료를 제거하는 단계;

복합 재료를 원하는 모양으로 가공하는 단계;

복합 재료를 연마하는 단계; 및,

하나 이상의 전극을 복합 재료에 인가하는 단계.

청구항 69

고 유전상수 및 고 절연 강도를 가지는 복합 재료를 제조하기 위한 방법이되, 다음을 포함하는 방법:

세라믹 분말 분배물을 용매에 용해된 중합체와 혼합하여 페이스트를 형성하는 단계;

페이스트를 다이에 배치하는 단계;

페이스트를 압축하는 단계; 및,

용해된 중합체가 고체화되게 하기 위해 혼합물을 냉각시키는 단계; 여기서 고 유전 상수 복합 재료는 세라믹 분말 분배물 및 중합체를 포함함.

청구항 70

제69항에 있어서 다음을 추가로 포함하는 방법:

대형 세라믹 입자의 제1 분배물, 중간 세라믹 입자의 제2 분배물, 및 소형 세라믹 입자의 제3 분배물을 혼합하여 세라믹 분말 분배물을 형성하는 단계.

청구항 71

제70항에 있어서, 대형 세라믹 입자의 직경은 40 μm 내지 220 μm 인 방법.

청구항 72

제70항에 있어서, 중간 세라믹 입자의 직경은 500 nm 내지 5 μm 인 방법.

청구항 73

제70항에 있어서, 소형 세라믹 입자의 직경은 2 nm 미만 내지 500 nm인 방법.

청구항 74

제69항에 있어서, 세라믹 분말 분배물은 40 μm 내지 220 μm 의 제1 범위의 제1 직경을 가지는 적어도 하나의 제1 세라믹 입자, 500 nm 내지 5 μm 의 제2 범위의 제2 직경을 가지는 적어도 하나의 제2 세라믹 입자, 및 2 nm 내지 500 nm의 제3 범위의 제3 직경을 가지는 적어도 하나의 제3 세라믹 입자를 포함하는 방법.

청구항 75

제69항에 있어서, 세라믹 분말 분배물은 0.5 μm 내지 3 μm 의 제1 범위의 제1 직경을 가지는 적어도 하나의 제1 세라믹 입자, 65 μm 내지 150 μm 의 제2 범위의 제2 직경을 가지는 적어도 하나의 제2 세라믹 입자, 및 2 nm 내지 200 nm의 제3 범위의 제3 직경을 가지는 적어도 하나의 제3 세라믹 입자를 포함하는 방법.

청구항 76

제69항에 있어서 다음을 추가로 포함하는 방법:

압축된 분배물이 적어도 80%의 충전율을 가지도록 세라믹 분말 분배물을 압축하는 단계.

청구항 77

제69항에 있어서 다음을 추가로 포함하는 방법:

복합 재료에 유전성 액체를 스며들게 하여 복합 재료 내의 공극을 채우고 복합 재료로부터 공기를 제거하는 단계.

청구항 78

제69항에 있어서, 페이스트는 다이 프레스에 의해 압축되는 방법.

청구항 79

제78항에 있어서, 페이스트는 평방 인치당 약 30톤의 압력으로 압축되는 방법.

청구항 80

제69항에 있어서 다음을 추가로 포함하는 방법:

복합 재료를 회전 코팅하는 단계.

청구항 81

제69항에 있어서 다음을 추가로 포함하는 방법:

복합 재료를 용해 주조하는 단계.

청구항 82

제69항에 있어서 다음을 추가로 포함하는 방법:

다이로부터 복합 재료를 제거하는 단계;

복합 재료를 중합체의 용해 온도 미만으로 가열하여 용매를 제거하는 단계;

복합물질에 유전성 유체가 스며들게 하여 공극을 채우는 단계;

복합 재료를 원하는 모양으로 가공하는 단계;

복합 재료를 연마하는 단계;

하나 이상의 전극을 복합 재료에 인가하는 단계; 및

복합물질을 밀봉하는 단계.

청구항 83

고 유전상수를 가지는 복합 재료를 포함하는 안테나 조립체이되:

복합 재료는 다음을 추가로 포함하는 안테나 조립체:

고 유전상수 세라믹 입자의 분배물; 및, 중합체 재료;

및, 전도성 전극.

청구항 84

제83항에 있어서, 유전 상수는 20을 초과하는 안테나 조립체.

청구항 85

제83항에 있어서, 고 유전상수 세라믹 입자의 분배물은 삼중모드 분배물인 안테나 조립체.

청구항 86

제85항에 있어서, 삼중모드 분배물 중 가장 작은 분배물의 세라믹 입자의 직경은 2 nm 내지 500 nm인 안테나 조립체.

청구항 87

제85항에 있어서, 삼중모드 분배물은 40 μm 내지 220 μm 의 제1 범위의 제1 직경을 가지는 적어도 하나의 제1 세라믹 입자, 500 nm 내지 5 μm 의 제2 범위의 제2 직경을 가지는 적어도 하나의 제2 세라믹 입자, 및 50 nm 내지 500 nm의 제3 범위의 제3 직경을 가지는 적어도 하나의 제3 세라믹 입자를 포함하는 안테나 조립체.

청구항 88

제83항에 있어서, 고 유전상수 세라믹 입자의 분배물은 50% 이상의 제1 부피율을 가지고 중합체 재료는 50% 이하의 제2 부피율을 가지는 안테나 조립체.

청구항 89

제83항에 있어서, 세라믹 입자는 페로브스카이트인 안테나 조립체.

청구항 90

제83항에 있어서, 중합체 재료는 둘 이상의 고 유전상수 세라믹 입자 사이의 공극 공간을 실질적으로 채우는 안테나 조립체.

청구항 91

제83항에 있어서, 중합체 재료는 고 유전상수 세라믹 입자의 표면에 직접 결합하는 안테나 조립체.

청구항 92

제83항에 있어서, 전구체는 인-시추(in-situ)로 중합되고 가교-연결되는 안테나 조립체.

청구항 93

제83항에 있어서 추가로 유전성 유체를 포함하는 안테나 조립체.

청구항 94

제83항에 있어서, 전도성 전극은 구리 와이어 또는 구리 시트(sheet)를 포함하는 안테나 조립체.

청구항 95

제83항에 있어서, 안테나 조립체는 나선형 안테나인 안테나 조립체.

청구항 96

제83항에 있어서, 안테나 조립체는 유전성 공명기 안테나인 안테나 조립체.

청구항 97

고 유전상수를 가지는 복합 재료를 포함하는 커패시터 조립체이되:

복합 재료는 추가로 다음을 포함하는 커패시터 조립체:

고 유전상수 세라믹 입자의 분배물;

및, 중합체 재료; 및,

둘 이상의 전도성 전극.

청구항 98

제97항에 있어서, 유전 상수는 20을 초과하는 커패시터 조립체.

청구항 99

제97항에 있어서, 고 유전상수 세라믹 입자의 분배물은 삼중모드 분배물인 커패시터 조립체.

청구항 100

제99항에 있어서, 삼중모드 분배물 중 가장 작은 분배물의 세라믹 입자의 직경은 2 nm 내지 500 nm인 커패시터 조립체.

청구항 101

제99항에 있어서, 삼중모드 분배물은 40 μm 내지 220 μm 의 제1 범위의 제1 직경을 가지는 적어도 하나의 제1 세라믹 입자, 500 nm 내지 5 μm 의 제2 범위의 제2 직경을 가지는 적어도 하나의 제2 세라믹 입자, 및 50 nm 내지 500 nm의 제3 범위의 제3 직경을 가지는 적어도 하나의 제3 세라믹 입자를 포함하는 커패시터 조립체.

청구항 102

제97항에 있어서, 고 유전상수 세라믹 입자의 분배물은 50% 이상의 제1 부피율을 가지고 중합체 재료는 50% 이하의 제2 부피율을 가지는 커패시터 조립체.

청구항 103

제97항에 있어서, 세라믹 입자는 페로브스카이트인 커패시터 조립체.

청구항 104

제97항에 있어서, 중합체 재료는 둘 이상의 고 유전상수 세라믹 입자 사이의 공극 공간을 실질적으로 채우는 커패시터 조립체.

청구항 105

제97항에 있어서, 중합체 재료는 고 유전상수 세라믹 입자의 표면에 직접 결합하는 커패시터 조립체.

청구항 106

제97항에 있어서, 전구체는 인-시추(in-situ)로 중합되고 가교-연결되는 커패시터 조립체.

청구항 107

제97항에 있어서 추가로 유전성 유체를 포함하는 커패시터 조립체.

청구항 108

제97항에 있어서, 전도성 전극은 구리 와이어 또는 구리 시트를 포함하는 커패시터 조립체.

청구항 109

제97항에 있어서, 커패시터는 단일 유전 층 및 두 가지 전극으로 구성되는 커패시터 조립체.

청구항 110

제97항에 있어서, 커패시터는 유전 층 및 전극의 다중층 조립체로 구성되는 커패시터 조립체.

청구항 111

제97항에 있어서, 복합 재료는 200 J/cm^3 를 초과하는 에너지 저장 밀도를 가지는 커패시터 조립체.

청구항 112

제97항에 있어서, 복합 재료는 최대 1000 J/cm^3 의 에너지 저장 밀도를 가지는 복합 재료.

청구항 113

고 유전상수 및 고 절연 강도를 가지는 복합 재료이되, 다음을 포함하는 복합 재료:

중합체 재료에 의해 함께 결합된 고 유전상수 세라믹 입자의 삼중모드 분배물, 여기서 삼중모드 분배물은 65 내지 80%의 $40 \mu\text{m}$ 내지 $220 \mu\text{m}$ 의 제1 범위의 제1 직경을 가지는 적어도 하나의 제1 세라믹 입자, 15% 내지 20%의 500 nm 내지 $5 \mu\text{m}$ 의 제2 범위의 제2 직경을 가지는 적어도 하나의 제2 세라믹 입자, 및 5% 내지 15%의 2 nm 내지 500 nm 의 제3 범위의 제3 직경을 가지는 적어도 하나의 제3 세라믹 입자를 포함함; 및,

여기서 중합체 재료는 중합체 전구체로부터 인-시추(in-situ)로 중합되고 각각의 고 유전상수 세라믹 입자의 표면에 직접 결합함.

청구항 114

고 유전상수 및 고 절연 강도를 가지는 복합 재료이되, 다음을 포함하는 복합 재료:

중합체 재료에 의해 함께 결합된 고 유전상수 세라믹 입자의 삼중모드 분배물, 여기서 삼중모드 분배물은 65 내지 80%의 $40 \mu\text{m}$ 내지 $220 \mu\text{m}$ 의 제1 범위의 제1 직경을 가지는 적어도 하나의 제1 세라믹 입자, 15% 내지 20%의 500 nm 내지 $5 \mu\text{m}$ 의 제2 범위의 제2 직경을 가지는 적어도 하나의 제2 세라믹 입자, 및 5% 내지 15%의 2 nm 내지 500 nm 의 제3 범위의 제3 직경을 가지는 적어도 하나의 제3 세라믹 입자를 포함함; 및,

중합체 재료는 겔화 중합체임, 여기서 중합체 재료는 용매와 혼합되고 중합체 재료는 용매의 적어도 일부를 흡수하여 중합체 재료의 부피가 증가함.

명세서

기술분야

[0001] 관련 출원과의 상호 참조

[0002] 본 출원은 2011년 3월 23일자로 출원된 "고 유전상수 복합 재료(HIGH DIELECTRIC CONSTANT COMPOSITE MATERIAL)"라는 명칭의 미국 가출원 특허 제61/466,604호에 대해 우선권을 주장하며 상기 문헌은 그 전체로서 본 명세서에 참고문헌으로 포함된다.

[0003] 연방 지원 연구 또는 개발

[0004] 본 발명은 해군 연구 사무소(Office of Naval Research)로부터 교부 번호 제N000-14-08-1-0267호 하의 정부 지원을 받아 이루어졌다. 미 정부가 본 발명에 대한 특정한 권리를 보유한다.

[0005] 발명의 분야

[0006] 본 발명은 일반적으로 복합 재료의 분야, 더 상세하게는, 고 유전상수를 갖는 복합 재료에 관한 것이다. 이 복합 재료는 특히 안테나, 커패시터(capacitor), 및 고전압 절연체를 비롯하여, 고-유전성 재료를 필요로 하는 다양한 응용 분야에서 사용될 수 있다. 본 발명은 또한 고 유전상수 복합 재료를 제조하는 방법 및 상기 복합 재료를 포함하는 장치에 관한 것이다.

배경 기술

[0007] 세라믹은 흔히 커패시터 및 에너지 저장 장치와 같은 고 유전상수를 갖는 재료를 필요로 하는 응용 분야에서 사용된다.

[0008] 통상적인 세라믹 재료는, 그러나, 전형적으로 취성이며 인장 및 비틀림 응력 하에 파쇄되기 쉽다. 게다가, 통상적인 세라믹 재료는 저 유전 강도를 나타내며, 고전압, 고전력, 또는 고에너지 저장 시스템에서 이들을 적용하는 것에 제약을 준다.

[0009] 세라믹 재료의 고유한 취성 성질 및 저 유전 강도를 보강하기 위한 기존의 노력은 에폭시 또는 다른 중합체 고분자를 고 유전상수 세라믹 입자를 갖는 혼합물에 포함시키는 것에 의존적이다. 기존의 노력은 그러나, 복합 물질에 있어서 높은 유효 유전 상수를 얻기 위해 요구되는 세라믹 입자 비질량 편차(packing fraction)를 얻지 못한다. 현재의 노력은 또한 공극(void)을 내포하는 복합물질을 제조하며, 이는 복합물질의 유전 상수 및 유전 강도를 감소시킨다.

[0010] 그러므로, 고주파 범위에서 고 유전상수를 가지고 또한 고 절연강도를 보유하고 견고한 기계적 특성 및 강도를 갖는 유전 재료에 대한 필요성이 존재한다.

발명의 내용

[0011] 본 발명은 고 유전상수 및 고 절연강도를 갖는 복합 재료, 상기 복합재료를 제조하는 방법, 그리고 복합 재료를 포함하는 다양한 장치 및 구조, 가령 안테나, 커패시터, 및 고-전압 절연체 조립체에 관한 것이다. 한 구체예에서, 고 유전상수 복합 재료는 고 유전상수 세라믹 입자 및 상기 입자와 혼합되고 인-시추(in-situ)로 중합되는 중합체 재료의 분배물을 포함한다. 다양한 구체예에서, 유전 상수는 20을 초과한다.

[0012] 세라믹 입자는 약 2 nm 내지 약 220 μm 범위의 단일 입자 크기를 가질 수 있다. 대안적으로, 고 유전상수 세라믹 입자의 분배물은 이중모드 분배물, 삼중모드 분배물, 사중모드 분배물, 또는 그 이상의 모드일 수 있다. 고 유전상수 세라믹 입자의 분배물은 50% 이상의 제1 부피율을 가지고 중합체 재료는 50% 이하의 제2 부피율을 갖는다.

[0013] 삼중모드 분배물 중 가장 큰 분배물의 세라믹 입자의 직경은 약 10 μm 내지 약 220 μm 일 수 있고, 중간 분배물의 세라믹 입자의 직경은 약 500 μm 내지 약 5 μm 일 수 있고, 삼중모드 분배물 중 가장 작은 분배물의 세라믹 입자의 직경은 약 500 nm 미만, 및 2 nm만큼 작을 수 있다. 한 구체예에서, 삼중모드 분배물은 10 μm 내지 220 μm 의 제1 범위의 제1 직경을 가지는 적어도 하나의 제1 세라믹 입자, 500 nm 내지 5 μm 의 제2 범위의 제2 직경

을 가지는 적어도 하나의 제2 세라믹 입자, 및 50 nm 내지 500 nm의 제3 범위의 제3 직경을 가지는 적어도 하나의 제3 세라믹 입자를 포함한다. 또다른 구체예에서, 삼중모드 분배물은 0.5 μm 내지 3 μm 의 제1 범위의 제1 직경을 가지는 적어도 하나의 제1 세라믹 입자, 65 μm 내지 150 μm 의 제2 범위의 제2 직경을 가지는 적어도 하나의 제2 세라믹 입자, 및 150 μm 내지 500 μm 의 제3 범위의 제3 직경을 가지는 적어도 하나의 제3 세라믹 입자를 포함한다.

- [0014] 세라믹 입자를 포함하는 임의의 고유전 입자가 복합 재료에서 사용될 수 있다. 다양한 구체예에서, 세라믹 입자는 페로브스카이트(perovskite), 가령 이의 화합물이다. 더 상세하게는, 페로브스카이트는 바륨 티타네이트, 스트론튬 티타네이트, 바륨 스트론튬 티타네이트, 납 지르코네이트 티타네이트, 납 마그네슘 나이오베이트-납 티타네이트, 및 이들의 조합을 포함할 수 있다. 또한, 또다른 세라믹 입자의 표면에 접촉되어 있지 않은 각각의 세라믹 입자의 표면 부분은 중합체 재료 또는 액체 충전물과 접촉된다.
- [0015] 중합체 재료는 둘 이상의 고 유전상수 세라믹 입자 사이의 공극 공간을 실질적으로 채우며, 한 구체예에서, 중합체 재료는 고 유전상수 세라믹 입자의 표면에 직접 결합한다. 한 구체예에서, 중합체 재료는 무기-유기 커플링제(coupling agent)이다. 상세하게는, 결합제 재료는 실란, 티타네이트, 지르코네이트, 또는 이들의 조합을 포함하는 커플링제로부터 형성된 폴리실세스퀴옥산일 수 있다. 예를 들면, 실란 커플링제는 비닐트리메톡시실란, 트리에톡시비닐실란, 아미노프로피트리에톡시실란, 또는 이들의 조합으로 이루어진 군에서 선택된 것들을 비롯한 임의의 트리아록시실란일 수 있다.
- [0016] 제조 도중에, 복합 재료는 한 구체예에 따라 다이 프레스(die press)에서 압축된다. 다양한 구체예에서, 이러한 압축은 중합체 재료와 세라믹 입자 사이의 접촉 및 결합을 더욱 촉진할 수 있다. 중합체 재료의 전구체는 다이 프레스에서 압축되기 전에 고 유전상수 세라믹 입자의 분배물과 혼합될 수 있다. 또한, 전구체는 열, 화학적 촉매, 또는 자외선 중 적어도 하나에 의해 인-시추(in-situ)로 중합되고 가교-연결될 수 있다.
- [0017] 다양한 구체예에서, 복합 재료는 추가로 세라믹 입자 및 중합체 재료 혼합물로부터 분리되고 구별될 수 있는 유전성 유체를 포함한다. 유전성 유체 또는 유전성 유체의 혼합물은 중합체 재료의 중합 후에 복합 재료에 포함될 수 있다. 임의로, 유전성 유체는 또한 고 유전상수를 가질 수 있다. 유전성 유체는 물, 알킬렌 카르보네이트, 오일, 또는 이들의 조합으로 이루어진 군에서 선택될 수 있고 유전성 유체는 실란, 티타네이트, 지르코네이트, 또는 이들의 조합을 포함할 수 있다.
- [0018] 중합체 결합제의 중합 또는 다른 형성 후에, 유전성 유체는 복합 재료에 스며들어 복합 재료에 잔여하는 임의의 공극을 채우거나 제거하고, 이를 통해 복합 재료의 유전 상수 및 유전 강도 둘 다를 증가시킨다. 복합 재료는 유전성 유체 내에 침지 및/또는 중탕될 수 있다. 대안적으로, 유전성 유체는 진공 또는 다른 가압 시스템을 이용하여 세라믹 재료의 공극 내로 들어갈 수 있다.
- [0019] 고 유전상수를 가지는 복합 재료를 제조하기 위한 방법은 세라믹 입자의 분배물을 가지는 세라믹 분말을 액체 중합체 전구체와 함께 페이스트로 혼합하는 단계, 페이스트를 다이에 배치하는 단계, 페이스트를 압축하는 단계, 및 중합체 전구체를 중합하여 세라믹 분말 분배물의 세라믹 입자에 직접 결합하는 중합체 결합제를 형성하는 단계를 포함한다. 상기 방법은 추가로 압축된 분배물이 적어도 80%의 충전율을 가지도록 세라믹 분말 분배물을 압축하는 단계, 및 복합 재료에 유전성 액체를 스며들게 하여 복합 재료 내 공극을 채우고 복합 재료에서 공기를 제거하는 단계를 포함할 수 있다. 한 구체예에서, 유전성 유체는 진공과 같은 가압 시스템에 의해 세라믹 재료의 공극에 주입되거나 들어간다.
- [0020] 다양한 구체예에서, 페이스트는 다이 프레스에서 평방 인치당 약 30톤의 압력에 의해 압축된다. 중합체 전구체를 중합하여 고 유전상수 중합체를 형성하는 단계는 추가로 가압된 페이스트를 내포하는 다이를 적어도 30분간 가열하고 고 유전상수 복합 재료를 냉각하는 단계, 화학적 촉매를 제공하는 단계, 또는 중합체 전구체를 자외선에 노출하는 단계 중 적어도 하나를 포함한다. 중합 후에, 상기 방법은 다이로부터 복합 재료를 제거하는 단계, 복합 재료를 원하는 모양으로 가공하는 단계, 복합 재료를 연마하는 단계, 및 하나 이상의 전극을 복합 재료에 인가하는 단계를 포함할 수 있다.
- [0021] 한 구체예에서, 안테나 조립체는 고 유전상수를 갖는 복합 재료를 포함하고, 여기서 복합 재료는 추가로 고 유전상수 세라믹 입자 및 중합체 재료의 분배물을 포함한다. 안테나 조립체는 또한 구리를 포함할 수 있는 전도성 시트(sheet) 또는 와이어를 포함한다. 안테나 조립체는 나선형 안테나, 유전 공명기 안테나, 또는 임의의 다른 적절한 안테나일 수 있다. 전형적으로, 본 명세서에 개시된 고 유전상수 복합 재료를 포함하는 안테나는 유사한 통상적인 안테나에 비해 더 작은 규모로 제작될 수 있다.

[0022] 또다른 구체예에서, 고 유전상수 복합 재료는 정전용량성 또는 고-에너지 저장 장치에 포함될 수 있다. 정전용량성 장치는 고 유전상수 및 고 절연강도를 갖는다. 또한, 정전용량성 장치는 고 유전상수 복합 재료에 의해 분리되는 둘 이상의 전극을 포함한다. 정전용량성 장치는 단일 층 또는 다중-층 구조로서 형성될 수 있고, 정전용량성 장치는 고-밀도 에너지 저장 및 필터링(filtering)을 위해 사용될 수 있다. 또한, 고 유전상수 복합 재료를 포함하는 정전용량성 장치는 다양한 적용분야에서 통상적인 커패시터에 대한 대체물로서 사용될 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0023] 도 1A-C는 다양한 구체예에 따른 고 유전상수 복합 재료의 단면도이다.
 도 2는 한 구체예에 따른 고 유전상수 복합 재료의 단면도이다.
 도 4는 한 구체예에 따른 고 유전상수 복합 재료 혼합물의 단면도이다.
 도 5A-C는 한 구체예에 따른 고 유전상수 복합 재료의 입자를 관능화 및 결합하는 순서를 도시한다.
 도 6은 한 구체예에 따른 가공된 고 유전상수 복합 재료의 평면도이다.
 도 7은 한 구체예에 따른 가공된 고 유전상수 복합 재료의 평면도이다.
 도 8A-B는 한 구체예에 따른 가공된 고 유전상수 복합 재료의 평면도이다.
 도 9는 한 구체예에 따른 가공된 고 유전상수 복합 재료의 평면도이다.
 도 10은 한 구체예에 따른 고 유전상수 복합 재료에 대한 유전 상수 범위 및 손실 탄젠트(loss tangent) 범위를 예시하는 그래프이다.
 도 11은 한 구체예에 따른 고 유전상수 복합 재료에 대한 유전 상수 범위 및 손실 탄젠트 범위를 예시하는 그래프이다.
 도 12는 한 구체예에 따른 고 유전상수 복합 재료에 대한 유전 상수 범위 및 손실 탄젠트 범위를 예시하는 그래프이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0024] 본 발명은 고 유전상수를 가지는 복합 재료에 관한 것이다. 특히, 본 발명은 고주파 범위에 걸쳐 고 유전상수, 고 절연강도를 가지며, 복잡한 기하학으로 형성되거나 가공될 수 있는 복합물질에 관한 것이다. 세라믹 복합 재료는 안테나, 무선주파수 전송 부품, 마이크로파 전송 부품, 고에너지 밀도 커패시터, 고-전압 절연체를 제조하기 위해, 및 고 유전상수를 갖는 복합 재료에서 이익을 얻을 수 있는 다른 용도로 사용될 수 있다. 본 명세서에 사용된, 고 유전상수는 약 20 이상의 유전 상수를 가지는 재료를 지칭한다.

[0025] 다양한 구체예에서, 고 유전상수 복합 재료는 약 2 nm 내지 약 2000 μm 범위의 세라믹 입자의 분배물을 포함한다. 다른 구체예는 약 10 nm 내지 약 1000 μm, 50 nm 내지 약 500 μm, 또는 200nm 내지 약 220 μm 범위의 세라믹 입자의 분배물을 포함한다. 다른 구체예에서, 고 유전상수 복합 재료는 균일한 크기의 세라믹 입자를 내포한다. 유사하게, 고 유전상수 복합 재료는 입자의 이중모드, 삼중모드, 또는 그 이상 모드의 분배물을 내포할 수 있다. 바람직하게는, 고 유전상수 복합 재료는 세라믹 입자의 삼중모드 분배물을 갖는다. 모든 구체예에서, 세라믹 입자 분배물은 세라믹 충전율(즉 복합 구조에서 세라믹 입자에 의해 점유된 부피의 비율), 유전 상수, 및 세라믹 복합 재료의 다른 유익한 특성을 증가시키도록 구성된다.

[0026] 한 구체예에서, 고 유전상수 복합 재료는, 중합체 전구체가 전구체의 중합 및 가교-연결 전에 세라믹 입자와 혼합되고 압축되는 인-시추(in-situ) 중합을 이용하여 제조된다. 인-시추(in-situ) 중합은 추가로 세라믹 복합물질의 충전율을 증가시킨다. 또한, 인-시추(in-situ) 중합은 중합체와 무기 세라믹 입자의 표면 사이의 직접적인 결합을 가능하게 한다. 전형적으로, 중합체는 어떠한 금속도 내포하지 않는, 실질적으로 절연성 또는 비-전도성인 유전성 중합체이다. 따라서, 중합 후 형성된 비-금속성 유전성 중합체의 매트릭스는 더 높은 파괴 전압을 가능하게 하고 복합 재료의 수명을 연장시킨다.

[0027] 한 구체예에서, 고 유전상수 복합 재료에는 유전성 유체, 및 바람직하게는 고 유전상수를 갖는 유체가 스며들 수 있다. 유전성 유체는 복합 재료 내 임의의 잔여 공극을 채워서 공기가 점유한 죽은 공간을 제거하고, 이를 통해 복합 재료의 유전 특성을 향상시킨다.

- [0028] 본 명세서에 개시된 고 유전상수 복합물질은 견고한 기계적 특성, 고 절연강도, 복잡한 모양, 또는 저온 형성 환경을 가지는 가공가능한 유전 재료를 필요로 하는 용도로 사용하기 위해 적절하다.
- [0029] 세라믹 입자
- [0030] 이제 도 1A-C를 참조하면, 고 유전상수 복합 재료(100A-C)에 있어서 입자 분배물의 다양한 구체예가 도시된다. 보이는 바와 같이 복합 재료(100A-C)는 중합체 결합체(108)에 의해 함께 결합된 다양한 유전 입자(102-106) 중 적어도 하나의 분배물을 포함한다. 예시의 목적을 위해, 입자(102-106)는 도 1A-C에서 일반적인 패턴의 분배를 가지는 것으로 나타난다. 다양한 구체예에서, 입자(102-106)는 무작위로 배열되어 무작위 입자 충전을 야기할 수 있다. 입자(102-106)의 무작위 배열에도 불구하고, 복합물질의 입자 밀도 및, 유전 상수 및 유전 강도를 비롯한 다른 특성이 재료 전체에 걸쳐 균일하도록, 입자는 교반 및 혼합에 의해 복합 재료 전체에 걸쳐 균일하게 분산된다.
- [0031] 복합 재료는 임의의 고 유전상수의 입자를 이용하여 제조될 수 있다. 바람직하게는, 입자(102-106)는 식 $Ba_{(1-x)}Sr_xTiO_3$ 를 갖는 바륨 티타네이트($BaTiO_3$), 스트론튬 티타네이트($SrTiO_3$), 또는 바륨 스트론튬 티타네이트(BST) 입자를 포함하지만, 이에 제한되지 않는 세라믹이다. BST 입자는 독립적인 입자로서 포함될 수 있거나 복합 재료(100) 내에 $BaTiO_3$ 입자 복합물질의 구성성분으로서 포함될 수 있다. 복합물질 입자를 위한 다른 적절한 재료는 식 $Pb[Zr_xTi_{1-x}]O_3$ (여기서 $0 \leq x \leq 1$)를 갖는 세라믹 페로브스카이트인 납 지르코네이트 티타네이트(PZT)를 포함한다. 또한, 다른 페로브스카이트 재료, 비-페로브스카이트 재료, 및 비-선형 강유전성(ferroelectric) 또는 항-강유전성 재료가 또한 사용될 수 있다.
- [0032] 페로브스카이트 입자가 바람직하며, 이는 이들이 자기저항성(magnetoresistance), 견고한 유전 특성, 및 특히 단위 셀이 정방정계 구조를 가지는 경우 격자 구조의 고유한 극성과 같은 많은 특징을 보유하기 때문이다. 게다가, 페로브스카이트 구조에 내재된 결합각의 유연성은 특정한 전기 분야에서 요망될 수 있는 안-텔러(Jahn-Teller) 뒤틀림을 비롯한 다양한 분자의 뒤틀림을 허용한다.
- [0033] 또한, 입자(102-106)는 내화성 세라믹 입자, 비-내화성 세라믹 입자, 또는 이들의 조합일 수 있다. 세라믹 입자(102-106)는 복합 재료의 유전율의 비교 안정성을 보장하기 위해, 입자의 퀴리(Curie) 온도가 복합 재료(100A-C)에 대해 고려되는 작업 온도와 크게 차이하도록 선택될 수 있다. 예를 들면, 최종 복합 재료의 작업 온도와 약 20°C 이상 차이나는 퀴리(Curie) 온도를 가지는 입자(102-106)가 선택될 수 있다. 대안적으로, 세라믹 입자(102-106)는 복합 재료의 유전 상수를 최대화하기 위해, 입자의 퀴리(Curie) 온도가 복합 재료(100A-C)에 대해 고려되는 작업 온도이거나 그 부근이 되도록 선택될 수 있다. 게다가, 복합 재료의 유전 강도 및 유전 상수가 피크값이거나 아니면 안정하게 되는 온도 범위를 넓히기 위해, 다양한 퀴리(Curie) 온도를 가지는 세라믹 입자(102-106)가 선택될 수 있다.
- [0034] 비록 도 1A-C에서는 구체(spherical)로 나타나지만, 세라믹 입자(102-106)는 구체 및 불규칙적인 모양을 포함하지만 이에 제한되지 않는 다양한 모양을 가질 수 있다. 도 2-3은 각각 입방체 및 구체 입자의 분배물을 가지는 복합 재료(100D) 및 (100E)를 도시한다. 도 4는 복합 재료(100B)와 유사한 복합 재료를 제조하기 위해 사용될 수 있는 입자(102 및 104)의 혼합물(200)을 도시한다. 모든 입자(102-106)에 있어서 불규칙적인 모양이 바람직하며, 이는 불규칙적인 모양이 전형적으로 높은 충전 밀도를 가져오며, 이는 다시 복합 재료(100A-E)에 대해 더 높은 유전 상수를 생성하기 때문이다. 입자(102-106)가 임의의 모양일 수 있기 때문에, 입자 크기를 언급할 때 사용되는 용어 직경은 입자의 명목적 규모를 가리킬 수 있다. 예를 들면, 불규칙적인 모양의 입자의 직경은 입자의 평균 직경을 가리킬 수 있다. 유사하게, 뚜렷한-입방체인 입자의 직경은 입자 모서리의 길이를 가리킬 수 있다. 타원체와 같은 다른 입자 모양에 있어서, 직경은 가장 긴 축 또는 가로 길이를 가리킬 수 있다.
- [0035] 도 1A에 나타난 바와 같은 복합 재료(100A)는 직경으로 대략 2 nm 미만부터 대략 2000 μm 초과에 달하는 유전 입자(102-106)의 삼중모드 분배를 갖는다. 각각의 크기 범위 내의 입자(102-106)는 균일할 수 있다. 대안적으로, 각각의 크기 범위 내의 입자는 그 크기 범위 이내에서의 임의의 다양한 크기일 수 있다. 유사하게, 각각의 크기 범위 이내(즉 소형, 중간, 및 대형) 및 각각의 크기 범위에 걸치는 입자(102-106)는 동일한 재료 또는 상이한 재료 및 조성을 가질 수 있다. 예를 들면, 바륨 티타네이트, 스트론튬 티타네이트, 및 바륨 스트론튬 티타네이트 입자의 조합이 각각의 크기 범위 이내 및 크기 범위에 걸쳐서 사용될 수 있다.
- [0036] 입자 크기의 분배 및 범위는 복합물질(100A-C)의 세라믹 충전율 및 유전 상수를 증가시키기 위해 선택된다. 임의의 크기의 세라믹 입자가 사용될 수 있는 반면, 가장 작은 입자(102)에 대한 범위는 제조 한계에 의해, 그리

고 소형 입자의 응집이 복합 재료(100A-C)의 유전 특성을 저하시킬 것이므로, 소형 입자가 응집하지 않게 하려는 요구에 의해 제약될 수 있다. 한 구체예에서, 소형 입자(102)는 대략 50 nm 직경이며; 그렇지만, 2 nm 만큼 작은 더 작은 입자가 사용될 수 있다. 반대로, 50 nm보다 더 큰 입자가 소형 입자(102)로서 사용될 수 있다. 그렇지만, 입자의 충전을 최대화하기 위해 가장 작은 수득가능한 나노입자가 사용되는 것이 바람직하다.

[0037] 전형적으로, 가장 큰 입자(106)는 최종 복합 재료(100A-C)의 두께와 관련한 실용적인 고려에 의해서만 제한된다. 예를 들면, 임의의 단일 대형 입자(106)가 복합 재료(100A-C)의 총 두께의 약 10% 미만이거나 이와 동일한 것이 바람직하다. 예를 들면, 대략 2-2.5mm 두께의 복합 재료는 대략 220 μm 크기의 대형 입자(106)를 이용하여 제작될 수 있다. 유사하게, 얇은 복합물질 막은 더 작은 규모를 갖는 대형 입자(106)를 이용하여 제조될 수 있다.

[0038] 한 구체예에서, 중간 입자(104)를 위한 크기 범위는 중간 입자 크기의 범위가 가장 작은 입자(102)에 대한 크기 범위 및 대형 입자(106)에 대한 크기 범위로부터의 공통 인자에 의해 구별되도록 계산된다. 예를 들면, 50 nm 소형 입자(102) 및 50 μm 대형 입자(106)를 이용하는 경우, 대형 입자 크기 대 소형 입자 크기의 비는 1000이다. 중간 입자(104)의 크기 범위를 결정하기 위해, 1000의 제곱근(대략 31.6)이 대략 1.58 μm 의 중간 입자 크기를 결정하기 위한 인자로서 사용된다(즉 50 nm x 31.6 또는 50 μm / 31.6). 다른 구체예에서, 중간 입자(104)에 대한 크기 범위는 대형 입자(106)의 크기 범위에 가깝거나 소형 입자(102)의 크기 범위에 가까울 수 있다.

[0039] 각각의 요망되는 크기 분배 내의 세라믹 입자(102-106)는 상업적으로 구매할 수 있거나, 대안적으로, 대형 세라믹 입자를 요망되는 크기로 분쇄함에 의해 제조될 수 있다. 다양한 구체예에서, 입자 크기의 분배는 다양한 응결적이거나 폭발적인 제조 공정에서 사용되는 것들과 유사한 식을 이용하여 최적화될 수 있다. 또한, 세라믹 입자는 사용 전에 소결될 수 있다.

[0040] 예시이며 제한이 아닌 방식으로, 복합 재료(100A)는 약 40 μm 내지 약 220 μm 의 직경을 가지는 BaTiO₃ 대형 입자(106), 약 500 μm 내지 약 5 μm 의 직경을 가지는 BaTiO₃ 중간 입자(104) 및 약 500 nm 미만의 직경을 갖는 BaTiO₃ 또는 BST로 구성된 소형 입자(102)로 이루어진 세라믹 입자의 삼중모드 분배물을 내포할 수 있다. 한 구체예에서, 가장 작은 입자는 대략 2 nm 이하의 직경을 가질 수 있다.

[0041] 바람직하게는, 각각의 크기 분배 비율 그리고 각각의 입자 크기에 대한 부피율은 복합 재료(100A-C) 내의 최대 충전율을 얻고 중합체 결합체(108)의 부피를 최소화하기 위해 계산된다. 본 명세서에 사용된, 부피율은 구성성분(예컨대 입자(들) 또는 중합체)의 부피를 혼합물의 모든 구성성분의 부피로 나눈 것을 가리킨다. 예를 들면, 입자의 삼중모드 분배를 가지는 복합 재료(100A)의 한 구체예에서, 대형 입자(106), 중간 입자(104), 및 소형 입자(102)의 비는, 각각, 대략 65:25:10이고 여기서 대형 입자가 복합물질 질량 및 부피의 가장 큰 비율을 차지한다. 또다른 예에서, 대략 65-80 %의 대형 입자, 대략 15-20%의 중간 입자, 및 대략 5-15%의 소형 입자의 비율이 사용될 수 있다. 임의의 다른 비율이 사용될 수 있지만, 입자의 분배를 위한 비율은 입자의 크기 및 입자의 각각의 분배에 대한 공극율을 기초로 결정되는 것이 바람직하다. 따라서, 가장 큰 입자(106)는 전형적으로 가장 큰 비율의 질량 및 부피를 가지는 반면, 중간 크기 입자는 두 번째로 가장 큰 비율을 갖는다.

[0042] 다양한 다른 구체예에서, 복합 재료는 도 1C에 나타난 바와 같은 단일 크기 범위 이내의 입자로 이루어질 수 있거나, 복합 재료는 도 1B에 나타난 바와 같은 입자의 이중 모드 분배를 가질 수 있다. 사중모드 이상을 포함하는 다른 분배물이 사용될 수 있다. 또한, 복합 재료를 형성하기 위해 사용되는 입자들의 크기가 "인접한(adjacent)" 크기 범위일 필요는 없다. 예를 들면, 복합 재료는 도 4에 나타나는 바와 같이, 대형 입자(106) 및 소형 입자(102)의 혼합물을 이용하여 형성될 수 있다.

[0043] 다양한 구체예에서, 세라믹 입자(102-106)의 표면은 입자와 중합체 결합체 사이의 직접 결합이 증가되도록 관능화된다. 표면이 관능화될 수 있는 다수의 방식이 존재한다. 예를 들면, 각각의 입자(102-106)는 도 5A-C에 나타나는 바와 같이, 표면(300)을 히드록실화하여 히드록실(-OH) 기(302)를 도입함으로써 관능화될 수 있다. 히드록실 기(302)는 입자(102-106)를 과산화수소로 처리함으로써 도입될 수 있으며; 하지만, 입자를 과도하게 개질함 없이 입자 표면을 히드록실화하기 위한 임의의 다른 적절한 방법이 사용될 수 있다.

[0044] 세라믹 입자(102-106)의 표면이 히드록실화되었으면, 예를 들어, 실란 및 지르코네이트가 세라믹 입자의 표면을 관능화하기 위해 사용될 수 있다. 예시이며 제한이 아닌 방식으로, 비닐트리메톡시실란 및 물(306)의 부산물과 같은 실란-계 중합체 전구체(304)의 가열된 용액이 입자 표면 및 결합 재료를 관능화하고 직접 결합되게 하는 두 가지 표면 처리로서 작용하여 모든 세라믹 표면(102-106) 사이에 고도로 가교-연결된 구조(308)를 형성할 수

있다.

[0045] 중합체 결합체

[0046] 중합체 결합체(108)는 시아네이트 에스테르 또는 폴리시아누레이드를 포함하지만 이에 제한되지 않는 임의의 유전성 중합체일 수 있다. 바람직하게는, 중합체 결합체(108)는, 비록 다른 중합체 재료가 사용될 수 있지만, 비가역적으로 경화될 수 있는 중합체 재료이다. 중합체 결합체(108)는 또한 바람직하게는, 작은 분자 크기를 가지고, 입자 표면에 직접 결합할 수 있고, 고도로 가교-연결된 중합체 네트워크를 형성할 수 있는 임의의 중합체 또는 중합체 전구체일 수 있다. 대안적으로, 다른 구체에는 이들 특징이 반드시 있지는 않은 중합체 또는 중합체 전구체를 사용할 수 있다. 이들은 특히 겔화 중합체 및 셀룰로오스-계 중합체를 포함한다.

[0047] 한 구체예에서, 중합체 결합체(108)는 인-시추(in-situ)로 중합되어 세라믹 입자(102-106)에 직접 결합하는 중합체 전구체로부터 형성된다. 다른 구체예에서, 중합체 결합체(108)는 물과 같은 특정 용매의 존재에서 팽윤하는 아가(agar)와 같은 겔화 중합체 전구체의 용해로부터 형성된다. 이들 구체예에서, 중합체 결합체(108)는 겔화 중합체 전구체, 용매, 및 입자(102-106)의 혼합물이 냉각되고 용매가 제거될 때 형성된다.

[0048] 바람직하게는, 중합체 결합체(108) 또는 중합체 전구체는 금속 입자를 내포하지 않는다. 비-금속성 중합체 매트릭스를 가지는 복합 재료는 복합 재료의 더 높은 파괴 전압 및 더 긴 수명을 가능하게 한다.

[0049] 중합체 전구체를 사용하는 경우에, 중합체 전구체는 세라믹 입자(102-106)의 분배물과 혼합되고 분배물을 통해 침투하여 각각의 입자 표면에 접촉되게 된다. 예를 들면, 실란-계 중합체 전구체, 가령 트리알콕시실란 및 더 상세하게는 비닐트리메톡시실란, 트리메톡시비닐실란, 아미노프로피트리에톡시실란, 또는 이들의 조합이, 중합체 결합체(108)를 형성하기 위해 사용될 수 있다. 또한, 중합되어 폴리실세스퀴옥산을 형성하는 다른 실란, 지르코네이트 또는 티타네이트-계 커플링제 또는 중합체 전구체가 사용될 수 있다. 바람직하게는, 중합체 전구체는 이들이 혼합물을 통해 입자 표면(300)으로 침투하여 입자(102-106)의 표면에 직접 결합할 수 있게 하는 물리적 및 화학적 특징을 갖는다. 바람직하게는, 중합체 전구체는 세라믹 입자 사이로 유동하여 입자 표면(300)을 코팅하기에 충분히 낮은 점도를 갖는다. 복합 재료(100A-E)의 형성 동안 가해지는 압력 및 임의로, 열 하에서, 중합체 결합체(108) 및/또는 중합체 전구체는 세라믹 입자 표면(300) 상의 나노미터 및 나노미터-미만 수준의 결합부분에 침투한다. 중합체 결합체(104)는 따라서 입자(102-106)의 표면 경계에 있는 임의의 기공을 제거한다. 예시이며 제한이 아닌 방식으로, 실란, 티타네이트, 및/또는 지르코네이트-계 중합체 전구체가 세라믹 입자 표면(300) 사이의 직접 결합을 촉진하고, 매트릭스(308)와 같은 고도로 가교-연결된 중합체 매트릭스를 형성하기 위해 사용된다.

[0050] 다양한 구체예에서, 최종 복합 재료(100A-E)의 유전 상수는 선택된 중합체 결합체(104)에 따라 사용을 위해 최적화될 수 있다. 한 예에서, 바람직한 실란-계 중합체 전구체는 무기 세라믹 입자(102-106)에의 결합을 위한 추가적인 커플링제가 필요하지 않도록 전형적인 실란-계 중합체 전구체보다 더 높은 실란 농도를 갖는다. 추가적인 중합체 고분자와 같은 외부 결합 첨가제의 제거는 세라믹 충전율을 더욱 향상시키며, 이를 통해 복합 재료(100A-E)의 유전 상수를 증가시킨다.

[0051] 한 구체예에서, 중합체 결합체(108)는 시아노레진으로 구성된다. 시아노레진 결합체는 수백 MHz의 주파수에서 약 10 내지 약 55로 달라질 수 있는 유전 상수를 가지는 복합 재료(100A-E)를 생성할 것이다. 예를 들면, 중합체 결합체는 일본 도쿄의 Shin-Etsu Chemical Co., Ltd에 의해 제조되는 CR-S와 같은 시판되는 제품일 수 있다. CR-S는 고 유전상수, 양호한 강도를 가지는 시아노에틸화 셀룰로오스 중합체이고 가공이 가능하다.

[0052] 또다른 구체예에서, 복합 재료(100A-E)의 유전 상수는 전형적으로 아가의 형태인 겔화 중합체 전구체, 바람직하게는 아가로스를 사용함으로써 증가된다. 겔화 중합체는 자연 유래이거나 합성으로 제조된 바이오중합체일 수 있다. 겔화 중합체 전구체는 용매에 용해되고 세라믹 입자(102-106)의 분배물과 함께 복합물질 몰드 내에 압축된다. 복합물질 몰드는 이후 용매의 존재에서 겔화 중합체 전구체가 팽윤되게 하는 압력 하에서 냉각된다. 복합물질 몰드는 이후 용매를 제거하기 위해 중합체 전구체의 용해 온도 미만의 온도로 재가열되고, 이를 통해 중합체 결합체(108)가 형성된다. 그 결과, 중합체 결합체(108)의 부피는, 복합 재료의 전체 구조의 변화 없이, 앞서 팽윤된 중합체 전구체의 부피보다 작아진다.

[0053] 감소된 부피의 중합체 결합체(108)는 세라믹 입자(102-106) 주변에 공극 또는 공동을 형성할 수 있다. 유전성 액체는 이후 복합 재료 내부에 스며들어 복합 재료 내부의 모든 공동 또는 공극을 채우고 제거하며 세라믹 입자(102-106)의 표면(300)을 둘러싼다. 젤라틴, 카라긴(carrageen), 또는 유전성 액체의 존재에서는 흡수하거나 팽윤되지 않지만, 용매의 존재에서 팽윤될, 중합체 결합체(108)를 위한 임의의 다른 전구체를 포함하는 다른 중합

체 전구체가 또한 사용될 수 있다.

[0054] 유전성 액체

[0055] 유전성 액체는 복합 재료에 스며들어 복합 재료 내에서 임의의 잔여 공극에 침투하고 채울 수 있는 충전 유체다. 유전성 유체는 또한 세라믹 입자의 임의의 노출된 표면(300)을 나노미터 및 나노미터-미만 수준으로 코팅한다. 유전성 액체의 부가는 재료에서 공극을 제거함으로써, 복합 재료의 다공성을 줄임으로써, 그리고 세라믹 입자의 경계 계면을 향상시킴으로써, 복합물질의 유전 상수 및 유전 강도 둘다를 증가시킬 수 있다. 유전성 유체는 재료를 유전성 유체 내에 침지시킴으로써 형성된 복합 재료 내에 스며들 수 있다. 유전성 유체는 모세관 작용 단독을 통해 복합 재료에 더욱 스며들 수 있거나, 진공 또는 다른 가압 시스템의 보조로 재료에 들어갈 수 있다.

[0056] 한 구체예에서, 유전성 유체는 고 유전상수를 갖는다. 예를 들면, 고 유전상수는 물, 글리세린, 및 알킬렌 카르보네이트 가령 에틸렌 카르보네이트, 프로필렌 카르보네이트, 글리세린 카르보네이트, 부틸렌 카르보네이트, 및 이들의 조합일 수 있으나, 이에 제한되지 않는다. 역으로, 저 유전 상수를 가지는 유전성 유체가 사용되어 복합 물질의 유전 강도를 증가시킬 수 있는 반면, 더 적은 정도로, 복합 재료의 유전 상수를 증가시킨다. 저 유전 상수를 갖는 예시적인 유전성 유체는 전기 절연체에서 사용되는 것들과 같은 오일을 포함한다. 바람직하게는, 유전성 액체는 고 유전상수, 저 점도, 저 유전성 손실, 및 저 증발률을 갖는다.

[0057] 유전성 유체는 중합체 결합체의 인-시추(in-situ) 중합에 의해 형성된 복합 재료, 그리고 겔화 중합체 전구체로부터 형성된 복합 재료 내에 스며들 수 있다. 또한, 유전성 액체가 스며든 복합 재료는 유전성 액체의 증발을 방지 또는 감소시키기 위해 임의로 임의의 적절한 기체-불투과성 재료로 코팅될 수 있다. 예를 들면, 복합 재료는 실란, 티타네이트, 및/또는 지르코네이트-계 중합체로 코팅될 수 있다.

[0058] 또다른 구체예에서, 100 내지 1000 MHz의 주파수에서 대략 100의 유전 상수를 가지는 복합 재료는 인-시추(in-situ) 중합 후에 폴리실세스퀴옥산을 형성하는 실란, 티타네이트, 및 지르코네이트 화합물을 이용하여 제조될 수 있다. 이들 화합물을 내포하고 폴리실세스퀴옥산을 생성하는 중합체 전구체는 작은 분자 크기를 가지며 세라믹 입자 표면에 직접 결합되고 고도로 가교-연결된 중합체 네트워크를 형성하기에 적절하다.

[0059] 또다른 구체예에서, 100 내지 1000 MHz의 주파수에서 대략 550의 유전 상수를 가지는 복합 재료는 물의 존재에서 팽윤하는 겔화 중합체 전구체를 이용하여 제조될 수 있다. 바람직하게는, 겔화 중합체 전구체는 물의 존재에서 팽윤하지만 알킬렌 카르보네이트의 존재에서는 팽윤하지 않는다. 게다가, 바람직한 겔화 중합체 전구체는 세라믹 입자(102-106)와 혼합되기 전에 용해될 수 있고, 건조되면 높은 강도를 가지고, 높은 용해 온도를 가지며, 바이오재료이다.

[0060] 복합 재료의 제작

[0061] 진술한 바와 같이, 세라믹 입자(102-106)는 상업적으로 입수될 수 있거나 분쇄 공정 동안 형성될 수 있다. 한 구체예에서, 세라믹 입자가 분쇄에 의해 형성되는 경우, 메틸 에틸 케톤과 같은 용매가 입자의 응집을 막기 위해 사용된다. 아세톤, 메틸 프로필 케톤, 폴리메틸메타크릴레이트, 또는 디클로로메틸렌을 포함하지만, 이에 제한되지 않는 추가적인 용매가 또한 사용될 수 있다. 또한, 응집을 막기 위해 계면활성제가 분쇄 공정에 추가될 수 있다. 예시이며 제한이 아닌 방식으로, 계면활성제는 올레산, 알킬벤젠-설폰산, 또는 포스페이트 에스테르일 수 있다. 바람직하게는, 계면활성제는 극성 첨가제이다. 또한, 계면활성제는 중합체 결합체와의 결합을 증진하기 위해 세라믹 입자의 표면을 관능화하도록 작용할 수 있다.

[0062] 다양한 구체예에서, 세라믹 입자는 중합체 전구체 또는 결합체와 혼합되기 전에 소결되어 경화된 입자를 생성할 수 있다. 소결된 입자는 감소된 다공성을 가지고, 이는 입자 내 공극을 감소시키고, 입자의 입자 비질량 편차를 증가시키며, 입자에 중합체 전구체 또는 결합체가 침투하는 것을 방지하거나 적어도 최소화할 것이다.

[0063] 한 구체예에서, 세라믹 입자 및 실란, 티타네이트, 또는 지르코네이트, 가령 비닐트리메톡시실란 또는 트리에톡시비닐실란을 내포하는 중합체 전구체의 혼합물은 추가로 물과 혼합되고 교반되면서 약불로 제조된다. 예를 들면, 혼합물은 약 100°C 내지 약 200°C의 온도에서 제조될 수 있다. 혼합물의 가열은 세라믹 입자의 표면이 관능화되는 속도를 증가시키며 폴리실세스퀴옥산 네트워크의 형성 속도를 증가시킨다.

[0064] 복합 재료는 추가로 재료를 성형하기 위한 다이에서 건조 가압에 의해 형성된다. 예를 들면, 세라믹 입자(102-106), 중합체 전구체, 및 임의의 계면활성제로 구성된 페이스트가 다이에서 가압된다. 전형적으로, 다이는 기계식 또는 유압식 수단을 이용하여 가압되어 페이스트를 다이의 모양으로 압축한다. 다른 구체예에서, 복합 재료

는 등방향 가압에 의해 형성될 수 있고, 여기서 페이스트는 몰드로서 기능하는 유연한 막을 이용하여 등방향으로 가압된다. 복합물질 페이스트를 가압하는 것이 바람직한 제조 방법이지만, 복합 재료는 또한 회전 코팅 또는 용해 주조(solution casting)에 의해 형성될 수 있다.

[0065] 다양한 구체예에서, 복합 재료는 평방 인치당 (PSI) 약 100 파운드 내지 평방 인치당 30 메트릭 톤(metric ton)을 훨씬 넘는 압력으로 가압된다. 복합 재료(100)는 비록 다른 가압 기술이 사용될 수 있지만, 이중방향 또는 단방향 가압 기술에 의해 형성될 수 있다. 한 구체예에서, 이중방향 가압은 복합 재료 내에 형성될 수 있는 밀도 구배를 제거하고 복합 재료 전체에 걸쳐 균일한 유전 상수를 제공한다. 역으로, 구배 밀도가 바람직한 경우, 입자의 밀도는 복합 재료를 제조하기 위해 단방향 가압 공정을 이용함으로써 복합 재료 전반에 걸쳐 달라질 수 있다.

[0066] 페이스트를 가압한 후에 또는 동시에, 다이는 중합체 전구체의 인-시추(in-situ) 중합을 촉진하기 위해 가열되어, 이를 통해 중합체 결합제(104)를 형성할 수 있다. 다른 구체예에서, 중합체 전구체는 자외선(UV) 복사를 이용하거나 또는 촉매를 부가하여 화학적인 중합을 일으켜서 중합되거나 경화될 수 있다. 한 구체예에서, 중합체 결합제(108)는 세라믹 입자(102-106)의 표면에 직접 결합하고 고도로-가교연결된 구조를 형성한다. 따라서, 결합제로서 기능하는 추가적인 중합체가 필요하지 않다.

[0067] 다양한 구체예에서, 고 유전상수를 가지는 유전성 유체는 중합체 전구체의 중합 후에 부가되어 중합체 결합제(108)와 세라믹 입자(102-106) 사이에 잔여할 수 있는 임의의 공간을 채운다. 특히, 충전 액체는 세라믹 입자(102-106)의 표면(300) 상에서 경계 계면을 나노미터 및 나노미터-미만 수준으로 향상시킨다.

[0068] 최종 복합 재료는 스며든 유전성 액체의 증발을 방지하고 복합 재료의 다공성을 감소시키기 위해 코팅될 수 있다. 복합 재료는 이후 바람직한 크기로 절단, 가공, 및 또는 연마될 수 있다. 추가적인 마감공정은 하나 이상의 전극을 최종 복합 재료에 부가하는 것을 포함할 수 있다. 예시의 방식으로, 전극은 백금, 금, 또는 임의의 적절한 전도성 재료일 수 있다. 한 구체예에서, 전극은 복합 재료 상에 직접 스퍼터링(sputtering)되어 전극과 복합 재료 사이의 임의의 공기 간극을 제거한다.

[0069] 다양한 구체예에서, 인-시추(in-situ) 중합 공정은 적어도 80%의 입자 충전율이 성취되게 하고 상응하게 더 높은 유전 상수가 관찰되게 한다. 인-시추(in-situ) 중합 공정은 또한 손실 탄젠트 및 유전 상수가 동시에 복합 재료(100)의 최종 적용분야에 의해 결정되는 요망되는 요건으로 조정되도록 한다. 입자의 매트릭스에 결합하기 위해 사용되는 폴리실세스퀴옥산은 입자에 결합하기 위한 고점도 중합체 및 에폭시에 대한 필요성을 제거한다.

[0070] 복합 재료

[0071] 가공된 고 유전상수 복합 재료의 예가 도 6-9에 나타난다. 도 6에 나타나는 바와 같이, 복합 재료(100A-E)는 고체 디스크(400)로 절단되고 가공될 수 있다. 눈금자(402)가 규모감을 제공하기 위해 도시되고; 하지만, 복합 재료는 임의의 크기 및 배치로 제조될 수 있다. 도 7은 추가적인 요소를 수용하기 위한 기재(500)로 가공된 복합 재료의 사진이다. 도 8A는 많은 고리형 디스크(600A-G)로 가공된 복합 재료를 도시한다. 도 8B에 나타나는 바와 같이, 고리형 디스크(600A-G)는 봉(602)에 끼워지고 잠금장치(604A-B)에 의해 함께 고정될 수 있다. 도 9는 디스크(700)로서 제조된 복합 재료를 도시한다. 또한, 단일 박막 층 시트 또는 다중-층 복합물질 커패시터가 또한 고 유전 복합 재료를 이용하여 제조될 수 있다.

[0072] 도 10에 나타나는 바와 같이, 대략 100의 평균 유전 상수를 가지는 복합 재료에 대한 유전 상수의 프로파일(1000)은 실제로 200 MHz 내지 4.5 GHz의 주파수 범위에 걸쳐 대략 108 내지 대략 90 또는 +/-10%로 변화한다. 보이는 바와 같이, 전체 주파수 범위에 걸쳐 손실 탄젠트의 프로파일(1002)은 0.12 미만이고 500 MHz 아래에서, 손실 탄젠트는 0.05 미만이다. 진술한 바와 같이, 손실 탄젠트 및 유전 상수는 선택된 입자 혼합물, 제작 도중 가해지는 열 및 압력, 및 열 및 압력이 가해지는 기간에 의해 예정될 수 있다. 한 구체예에서, 2 GHz에서 0.08 미만의 손실 탄젠트가 수득되었지만, 다른 구체예에서, 0.001 미만의 손실 탄젠트가 가능하다. 낮은 손실 탄젠트는 고 유전상수 복합 재료를 이용하기 위한 적용범위의 다양성을 크게 확장한다.

[0073] 대략 45의 평균 유전 상수를 가지는 복합 재료에 대한 유전 상수 및 손실 탄젠트의 범위가 도 11에 나타난다. 보이는 바와 같이, 유전 상수의 프로파일(1100)은 200 MHz 내지 4.5 GHz의 주파수 범위에 걸쳐 대략 49부터 대략 39까지 달라진다. 전체 주파수 범위에 걸쳐 손실 탄젠트의 프로파일(1102)은 0.14 미만이고 500 MHz 아래에서, 손실 탄젠트는 0.08 미만이다. 도 12는 대략 550의 피크 유전 상수를 가지는 복합 재료에 대한 유전 상수 범위 및 손실 탄젠트 범위의 프로파일(1200)을 도시한다. 보이는 바와 같이, 유전 상수는 200 MHz 내지 4.5 GHz의 주파수 범위에 걸쳐 대략 550부터 대략 400까지 변화한다. 전체 주파수 범위에 걸쳐 손실 탄젠트의 프로파일

(1202)은 0.35 미만이고 500 MHz 아래에서, 손실 탄젠트는 대략 0.125 미만이다. 도 10-12에 나타나는 바와 같은 복합 재료의 실제 유전 상수는, 부분적으로는, 측정 방법의 불완전성 및 시험된 복합 재료 및 시험 기기의 표면 결함부분으로 인해, 보이는 것보다 대략 10% 더 높을 수 있다고 생각된다.

[0074] 가동시, 고 유전상수 복합 재료의 전기장은 단일 파괴에 대해 약 1 - 1.84 MV/cm의 범위인 것으로 발견되었다. 본 명세서에 개시된 바와 같은 혼합 기술의 다양함으로 인해, 전기장 파괴 특징은 일부 구체예에서 4 MV/cm를 초과하여 훨씬 향상될 수 있다. 그러므로, 고 유전상수 복합 재료는 200 J/cm³를 초과하여 최대 1000 J/cm³의 에너지 저장 밀도를 가질 수 있다. 한 구체예에서, 고 유전상수 복합 재료는 실온에서 대략 20 J/cm³의 에너지 밀도를 갖는다. 따라서, 단일 층이든 다중층이든, 낮은 손실 커패시터가 본 명세서에 개시된 인 시추(in situ) 중합 공정을 이용하여 제작될 수 있다. 또한, 200 MHz에서 550을 초과하고 20 KHz에서 56000만큼 높은 유전 상수를 가지는 복합 재료가 제조되었다.

[0075] 복합 재료에 대한 예시적 용도

[0076] 고 유전상수 복합 재료(100A-E, 400, 500, 600A-G, 및 700)는 안테나, 커패시터, 고-에너지 저장 장치, 및 고-전압 절연체를 포함하지만 이에 제한되지 않는 다양한 응용분야를 위해 적절하다. 고 유전상수 복합 재료의 고 주파 특성은 이들 재료를 안테나 및 마이크로파 기계를 포함하지만 이에 제한되지 않는 무선주파 및 마이크로파 전송 부품을 위한 이상적인 재료가 되게 한다. 고 유전상수 재료는 또한 마이크로파 공동, 고에너지 밀도 커패시터, 및 고주파 커패시터를 조정하기 위해 사용될 수 있다. 예시이며 제한이 아닌 방식으로, 고 유전 복합 재료는 고전력 안테나에서 사용하기에 적절하다. 따라서, 유전성 로딩된 안테나의 크기는 본 개시의 고 유전상수 복합 재료를 포함시킴으로써 최소화될 수 있다. 특히, 복합 재료는 나선형 안테나, 유전 공명기 안테나, 또는 상기 복합 재료의 포함으로 인해 이익이 될 수 있고 그 크기가 줄어들 수 있는 임의의 안테나에 포함될 수 있다. 예를 들면, 한 구체예에 따른, 본 명세서에 개시된 고 유전상수 복합물질을 포함하는 안테나는 크기를 6 배 내지 10-배 줄여 제작될 수 있다. 다른 구체예에서, 고 유전상수 복합 재료를 포함하는 안테나는 추-헤링톤(Chu-Harrington) 한계(추(Chu)-한계)에 가까운 규모로 더욱더 작아질 수 있다.

[0077] 전형적으로, 안테나의 하나 이상의 규모는 안테나 재료에서 송출하는 전자기파의 파장의 함수이다. 따라서, 주어진 주파수에 있어서 안테나 크기는 대략적으로 유전 상수의 제곱근 분의 일에 비례한다. 또다른 양태에서, 복합 재료(100)는 광대역 안테나를 비롯한 안테나를, 공기 유전체를 이용하는 종래의 안테나의 대략 10분의 1 크기 이하로 제작하기 위해 사용될 수 있다.

[0078] 안테나 외에, 복합 재료는 종래의 커패시터의 기능을 향상시키고 크기를 줄이기 위해 사용될 수 있다. 두 점 사이의 정전용량은 이들 두 점을 분리하는 재료의 유전 상수에 비례한다. 고 유전상수를 갖는 복합 재료를 포함함으로써, 주어진 정전용량을 위해 필요한 전극의 면적은 종래의 유전체에 대한 유전 상수의 증가에 비례하여 감소한다. 그러므로, 고 유전상수 복합 재료를 포함하는 커패시터는 종래의 커패시터보다 더 소형으로 제조될 수 있다. 게다가, 커패시터에 저장되는 에너지는 이를 통과하는 전압의 제곱만큼 증가한다. 종래의 고 유전상수 세라믹 재료에 비해 고 절연강도를 갖는 고 유전상수 재료를 포함함으로써, 동일 부피에 저장될 수 있는 에너지가 종래의 고 유전상수 재료보다 유전 강도의 증가의 제곱만큼 증가한다. 커패시터의 에너지 밀도가 유전 상수 및 유전체 내부 전기장의 제곱에 비례하기 때문에, 고 유전상수 및 고 절연강도를 갖는 복합 재료를 포함하는 커패시터 내 에너지 밀도는 종래의 저 유전 상수 재료 및 종래의 고 유전상수 세라믹으로 성취되는 것보다 수십 배 더 높을 수 있다.

[0079] 복합 재료는 또한 고-전압 절연체 내에 포함될 수 있다. 복합 재료는 전기장의 더 우수한 제어 및 장 성형(field shaping)을 가능하게 한다. 장 성형은 추가로 절연체의 크기가, 특히 길이가, 크게 감소하도록 할 수 있다.

[0080] 고 유전상수 복합 재료 제조 방법

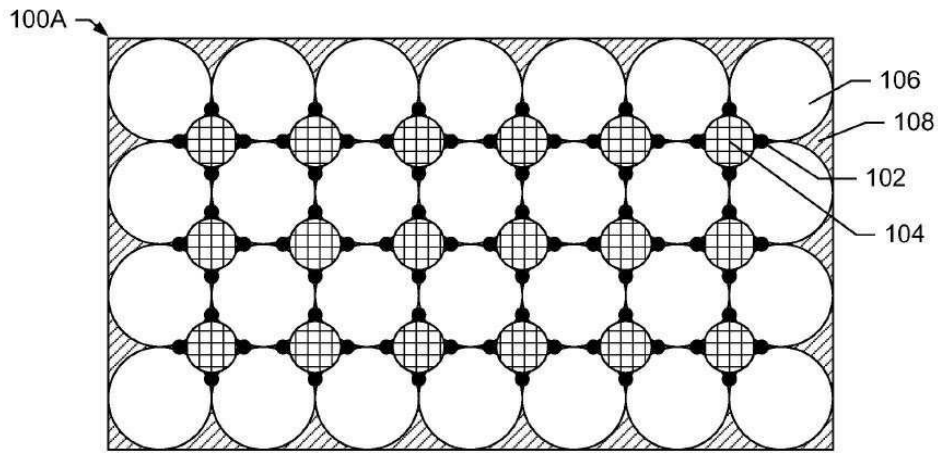
[0081] 실시예 1

[0082] 예시이며 제한이 아닌 방식으로, 200 MHz 내지 4.5 GHz 범위의 주파수에서 약 75-140의 확인된 유전 상수를 가지는 고 유전상수 복합 재료를 제조하기 위해 사용되는 예시적인 방법이 제공된다. 먼저, 대략 250 ml의 물 및 250 ml의 트리에톡시비닐실란을 흡 후드(fume hood)에서 개방된 비이커에 쏟았다. 액체를 혼합물의 비점 바로 아래의 온도에서 자석 교반막대를 이용하여 혼합하였다. 혼합물을 가열원에서 제거하고 혼합물이 혼화가능해지면 교반으로 현탁하였다.

- [0083] 상기 용액을 즉시 사용하기 위해 실온까지 냉각하였다. 대안적으로, 상기 용액을 장기 저장을 위해 식힐 수 있다. 용액을 실온까지 냉각하는 동안, 세라믹 분말의 혼합물을 제조하였다. 혼합물을 65 μm 내지 150 μm 의 직경을 갖는 65 wt% BaTiO₃ 입자, 0.5 μm 내지 3 μm 의 직경을 갖는 25 wt% BaTiO₃ 입자, 및 100 nm 미만의 직경을 갖는 10 wt% BaTiO₃ 및 BST 입자로 구성하였다. 세라믹 분말을 믹서밀을 이용하여 대략 2분간 혼합하였다. 더 큰 입자가 더 작은 크기로 분쇄될 수도 있는 과도한 혼합 시간을 막기 위해 주의하였다.
- [0084] 실온까지 냉각된 혼화성 용액을 수동으로 교반하면서 상기 분말 혼합물에 부가하였다. 페이스트가 형성될 때까지 혼화성 용액을 부가하였다. 페이스트는 약한 점도를 가졌으나 그의 모양을 유지하기에 충분히 점성이었다. 페이스트를 이후 건조 가압 다이에 배치하고 가볍게 눌러 재료가 균등하게 분배되도록 하였다.
- [0085] 다이를 실험실 프레스 스탠드 위에 배치하고 프레스를 가동하여 다이 조립체의 상단 및 하단 피스톤에 힘을 가하였다. 대략, 평방 인치당 30 메트릭 톤이 다이에 가해졌다. 다이에 힘을 가하는 동안, 다이로부터 빠져나오는 임의의 과량의 유체는 제거하였다. 힘을 계속 가하는 동안, 다이를 발열체에 의해 대략 100°F의 온도까지 가열하였다.
- [0086] 다이의 온도를 원하는 수준에 대략 30분간 유지하고, 이후 발열체를 끄고, 그 동안 다이 및 가압된 복합물질을 실온까지 냉각되게 하였다. 냉각 후에, 복합물질을 다이로부터 제거하고, 가공하고, 원하는 크기로 연마하였다. 마지막으로, 전극을 복합 재료(100)에 인가하고 많은 시험을 수행하여 복합 재료의 유전 상수 및 손실 탄젠트를 측정하였다.
- [0087] 실시예 2
- [0088] 예시이며 제한이 아닌 방식으로, 200 MHz 내지 4.5 GHz의 주파수에서 400 내지 600의 유전 상수를 가지는 복합 재료를 제조하기 위한 또다른 예시적인 방법이 제공된다. 먼저, 페로브스카이트 세라믹 입자의 혼합물을 제조하였다. 혼합물을 65 μm 내지 150 μm 의 직경을 갖는 72 wt% BaTiO₃ 입자, 0.5 μm 내지 3 μm 의 직경을 갖는 21 wt% BaTiO₃ 입자, 및 100 nm 미만의 직경을 갖는 7 wt% BaTiO₃ 및 BST 입자로 구성하였다. 세라믹 분말을 믹서밀을 이용하여 대략 2분간 혼합하였다. 더 큰 입자가 더 작은 크기로 분쇄될 수도 있는 과도한 혼합 시간을 막기 위해 주의하였다.
- [0089] 주로 아가로스로서 아가는 중합체 결합체로서 사용하였다. 교반하면서, 아가를 가열하고 물에 고농도로 용해하였다. 가열되면서, 아가 및 물 용액을 예열한 용기 내 세라믹 입자에 천천히 부가하고 혼합하였다. 혼합물을 이후 예열한 다이에서 가열하고 가압하였다. 가압 후에, 압축된 복합 재료를 그대로 압력하에서 냉각되게 하였다.
- [0090] 추가로 아가 결합체의 용해 온도 미만의 온도까지 압축된 복합 재료를 가열하고, 이를 통해 임의의 잔여하는 물이 증발되게 하여 복합 재료 내부의 아가를 건조시켰다. 물로 더이상 팽윤되지 않는 아가 결합체는 감소된 부피를 가지고, 이를 통해 복합 재료 내부에 많은 통로를 생성한다. 중합체 결합체의 부피 감소에도 불구하고, 고도로 충전된 세라믹 입자의 구조적 완전성은 복합 재료의 전체 구조가 수축하는 것을 방지한다. 복합 재료에 이후 유전성 유체에 복합물질을 침지시킴으로써 유전성 유체를 스며들게 하여 중합체 결합체 및 세라믹 입자 표면에 잔여하는 임의의 공극을 채웠다. 유전성 유체는 50% 에틸렌 카르보네이트 및 50% 프로필렌 카르보네이트로 이루어진 알킬렌 카르보네이트의 혼합물이었다.
- [0091] 본 발명의 재료, 장치, 및 방법이 다양한 구체예의 형태로 포함될 수 있으며, 이 중 단지 몇 가지만 상기에 예시되고 기술되었음이 이해될 것이다. 본 발명은 그의 사상 또는 본질적인 특징으로부터 벗어나지 않고 다른 특정한 형태로 구체화될 수 있다. 기술된 구체예는 모든 측면에서 단지 예시적이며 제한이 아닌 것으로 간주되고 본 발명의 범위는, 그러므로 상술된 설명보다는 첨부된 청구범위에 의해 지정된다. 청구범위와 동등한 의미 및 범위 내에 속하는 모든 변화가 본 발명의 범위 내에 포괄된다.

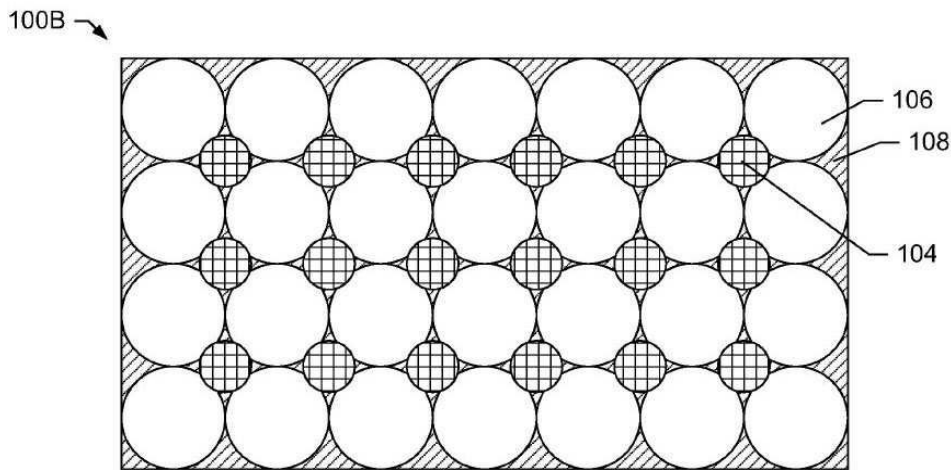
도면

도면1a



도 1A

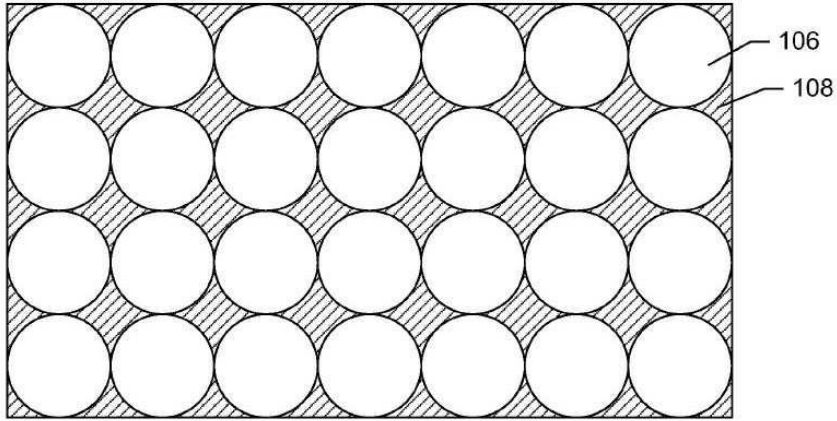
도면1b



도 1B

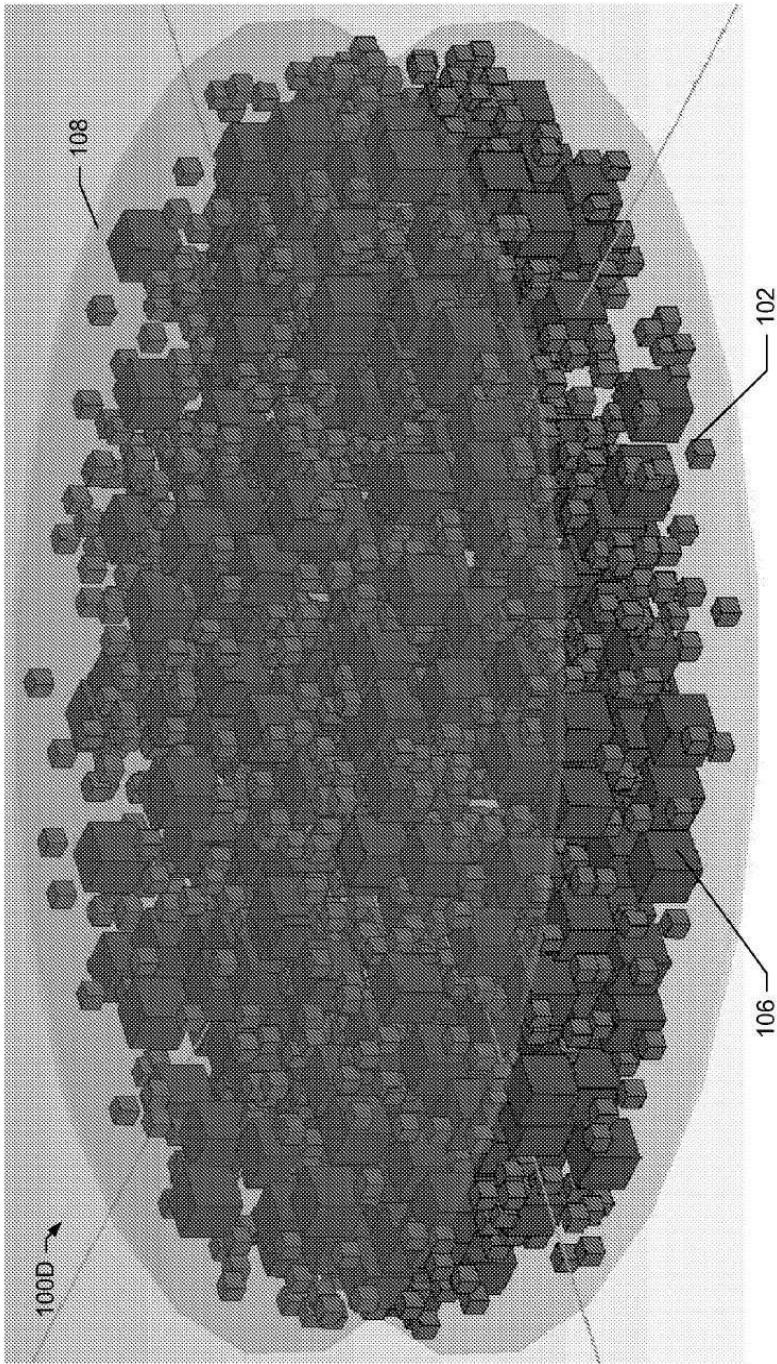
도면1c

100C

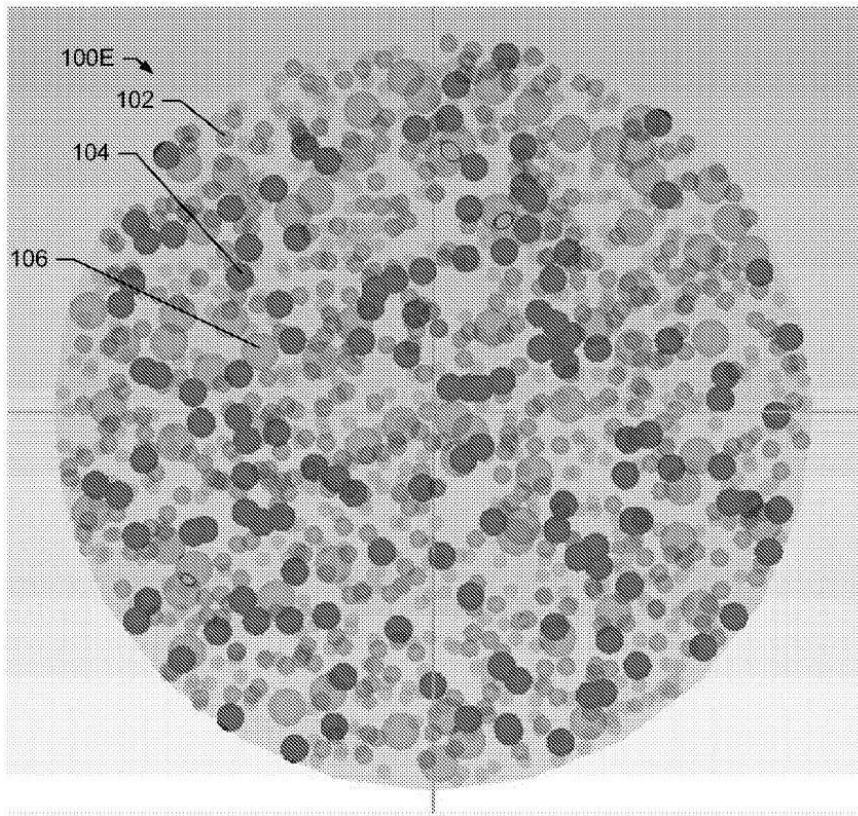


도 1C

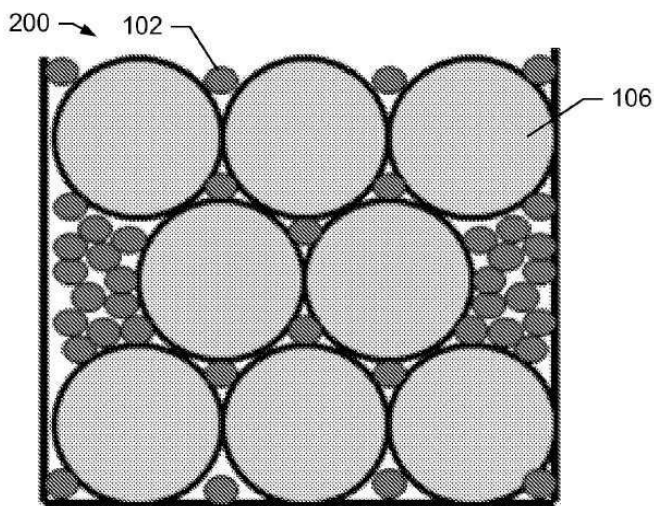
도면2



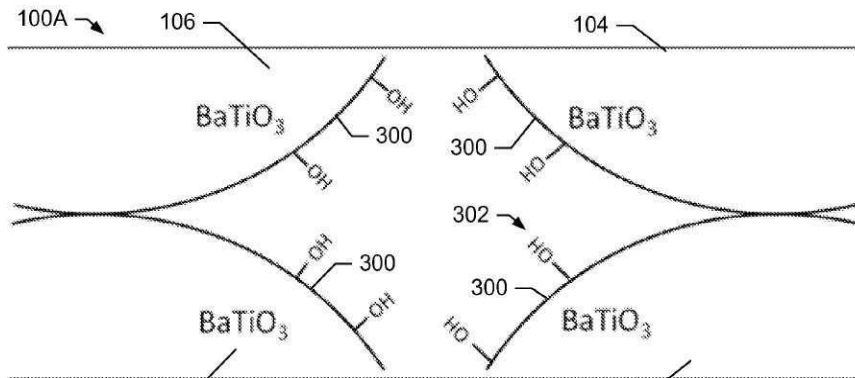
도면3



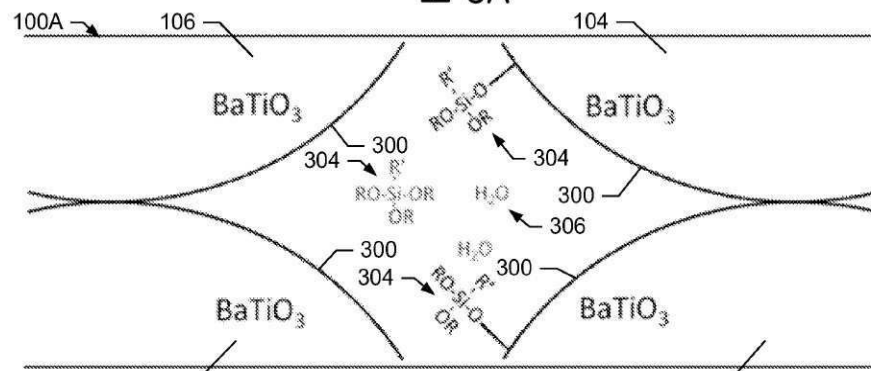
도면4



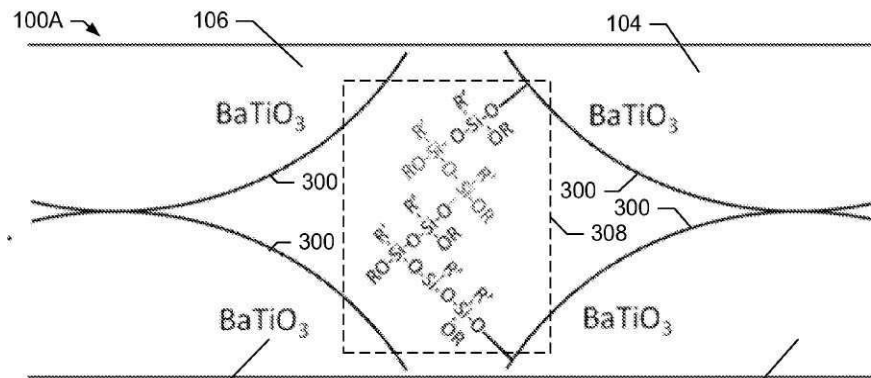
도면5



도 5A

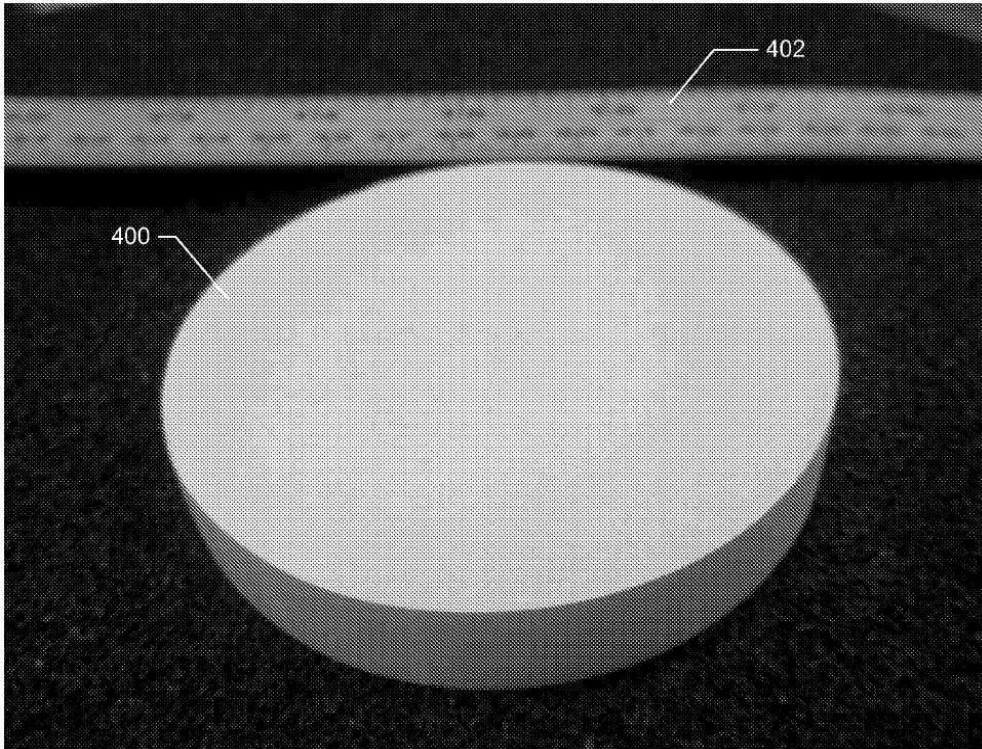


도 5B

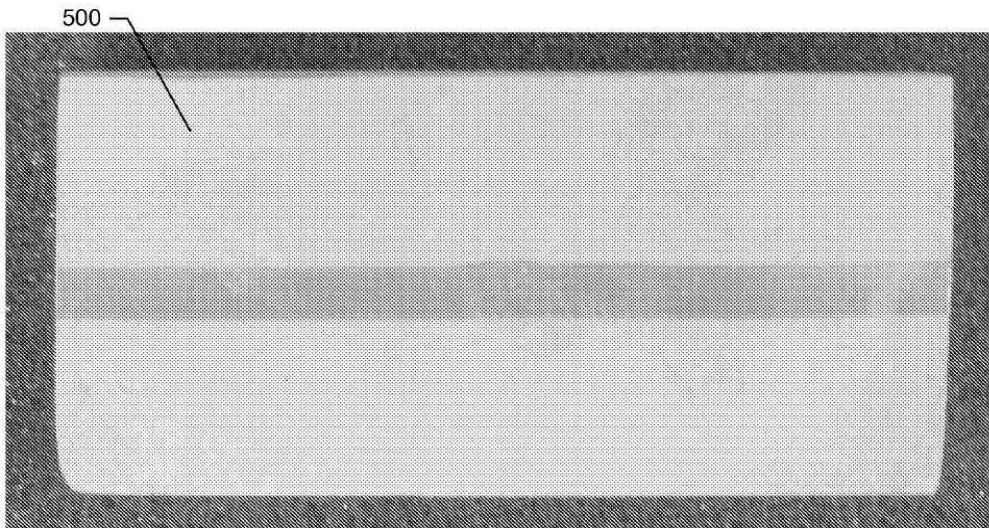


도 5C

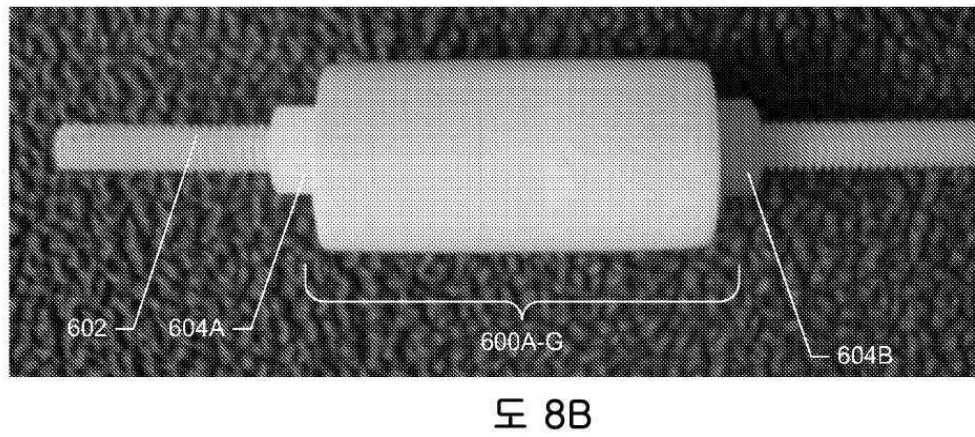
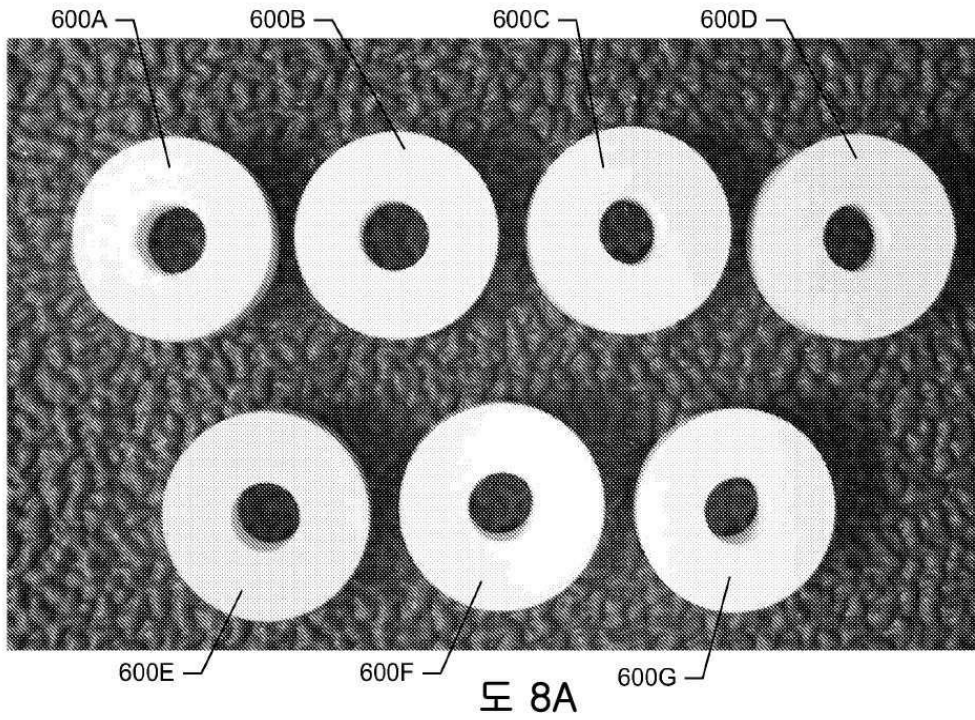
도면6



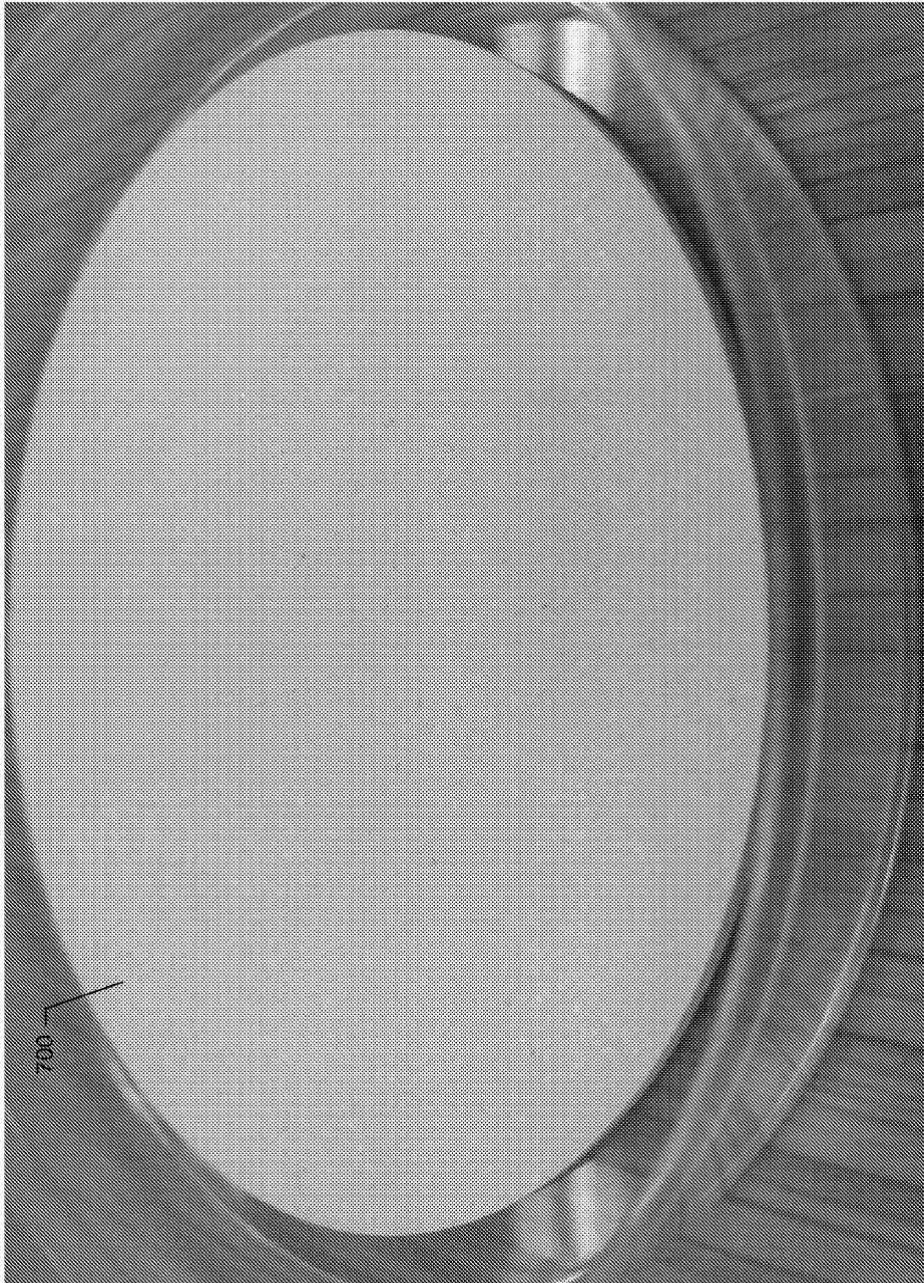
도면7



도면8

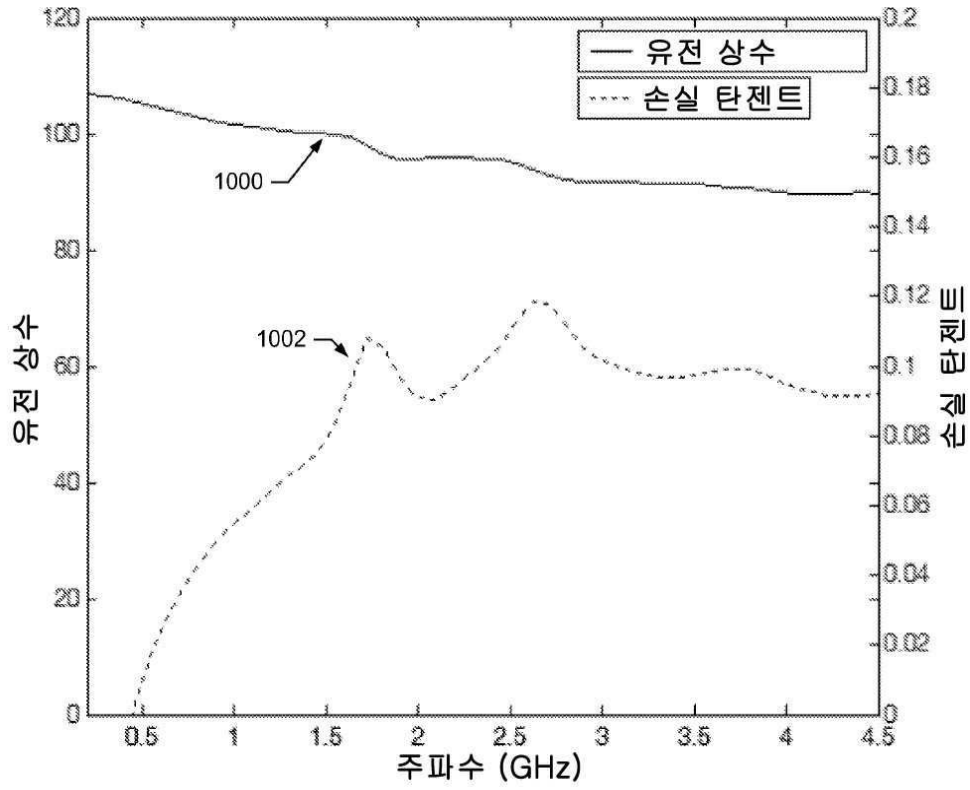


도면9



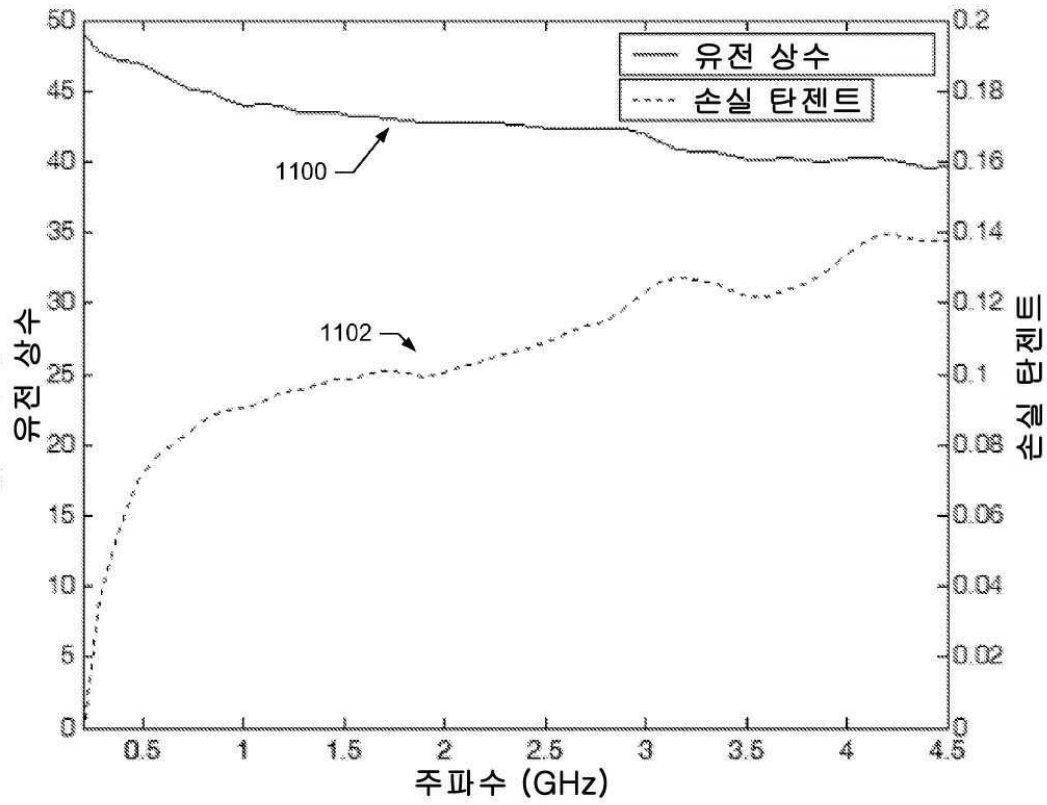
도면10

대략 100의 유전 상수를 갖는 복합 재료



도면11

대략 45의 유전 상수를 갖는 복합 재료



도면12

대략 550의 유전 상수를 갖는 복합 재료

